HAL
open science

Étude de deux nouvelles configurations pour la génération de triplets de photons

Augustin Vernay

▶ **To cite this version:**

Augustin Vernay. Étude de deux nouvelles configurations pour la génération de triplets de photons. Optique / photonique. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2021. Français. NNT : 2021GRALT019 . tel-03331851

HAL Id: tel-03331851

https://theses.hal.science/tel-03331851v1

Submitted on 2 Sep 2021

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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE GRENOBLE ALPES

Spécialité : **OPTIQUE ET RADIOFREQUENCES**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Augustin VERNAY

Thèse dirigée par **Benoît BOULANGER, Professeur à l'Université Grenoble Alpes, Institut Néel CNRS**, et codirigée par **Véronique BOUTOU, Chargée de Recherche CNRS à l'Université Grenoble Alpes, Institut Néel CNRS**

préparée au sein de **L'Institut Néel CNRS**
dans **l'École Doctorale EEATS**

Étude de deux nouvelles configurations pour la génération de triplets de photons

Thèse soutenue publiquement le **26 Mars 2021**,
devant le jury composé de :

Monsieur Ariel LEVENSON
Directeur de Recherche CNRS, Université Paris-Saclay, C2N, Rapporteur
Madame Inka MANEK-HONNIGER
Professeure à l'Université de Bordeaux, LOMA, Rapportrice
Monsieur Patrice CAMY
Professeur à l'Université de Caen, ENSICAEN, Président du jury
Monsieur Mathieu CHAUVET
Professeur à l'Université Bourgogne-Franche Comté, Femto-ST, Examinateur
Monsieur Benoît BOULANGER
Professeur à l'Université Grenoble Alpes, Institut Néel, Directeur de thèse
Madame Véronique BOUTOU
Chargée de Recherche CNRS, Université Grenoble Alpes, Institut Néel,
Co-Directrice de thèse

Remerciements

Table des matières

Introduction **6**

I Eléments de théorie **8**

I.1 INTRODUCTION **8**
I.2 ELEMENTS D'OPTIQUE LINEAIRE **11**
I.2.1 INTRODUCTION 11
I.2.2 OPTIQUE CRISTALLINE 13
I.2.3 DEPENDANCE SPECTRALE 16
I.2.4 DEPENDANCE THERMIQUE 17
I.3 ELEMENTS D'OPTIQUE NON LINEAIRE **19**
I.3.1 POLARISATION NON LINEAIRE 19
I.3.2 INTERACTIONS DU SECOND ORDRE 20
I.3.2.1 Symétries et propriétés du cristal 20
I.3.2.2 Processus non linéaires quadratiques 23
I.3.2.3 Equations de propagation des champs 24
I.3.2.4 Accord de phase par biréfringence 27
I.3.2.5 Quasi-accord de phase 30
I.3.3 INTERACTIONS DU TROISIEME ORDRE 33
I.3.3.1 Symétries et propriétés du cristal 33
I.3.3.2 Processus non linéaires du troisième ordre 35
I.3.3.3 Equations de propagation des champs 37
I.3.3.4 Accord de phase par biréfringence 38
I.4 FAISCEAUX GAUSSIENS **42**
I.5 OPTIQUE QUANTIQUE **46**

II État de l'Art **48**

II.1 PHOTONS JUMEAUX **48**
II.1.1 NOTION D'INTRICATION 48
II.1.2 APPLICATIONS ASSOCIEES 49
II.2 TRIPLETS DE PHOTONS **51**
II.2.1 INTRODUCTION 51
II.2.2 HISTORIQUE DES TRAVAUX MENES PAR LE GROUPE SUR LA GENERATION DE TRIPLETS DE PHOTONS 52
II.2.2.1 Conception du générateur de triplets de photons originel 52
II.2.2.2 Développement des théories semi-classiques et quantiques de la génération de triplets de photon 53
II.2.3 PROPRIETES DES ETATS A 3 PARTICULES INTRIQUEES 55
II.2.3.1 Etude des corrélations et tomographie quantique 56
II.2.3.2 Mesures de coïncidences 58
II.2.4 ALTERNATIVES A LA GENERATION DIRECTE DANS DES CRISTAUX DE KTP MASSIFS 59

III Caractérisation optique des guides d'onde monocristallins taillés en arête 61

III.1 INTRODUCTION 61
III.2 ETAT DE L'ART DES GUIDES D'ONDE ARETE 61
III.2.1 MODIFICATION DE L'INDICE EN SURFACE 62
III.2.2 FORMATION DE GUIDES D'ONDES DANS DES COUCHES MINCES PAR TRACE 63
III.3 METHODES DE FABRICATION DES GUIDES D'ONDE MONOCRISTALLINS 64
III.4 CALCUL DES INDICES EFFECTIFS ET PREDICTIONS D'ACCORD DE PHASE 68
III.4.1 OUTILS THEORIQUES POUR L'OPTIQUE GUIDEE 68
III.4.2 MODIFICATIONS THEORIQUES INDUITES PAR LE CONFINEMENT OPTIQUE DANS KTP ... 70
III.4.3 PREDICTIONS THEORIQUES D'ACCORD DE PHASE 73
III.4.3.1 Calcul d'accord de phase de la SHG 73
III.4.3.2 Calcul d'accord de phase de la THG et de la TPG dégénérée en longueur d'onde. 74
III.5 ETUDE DE LA GENERATION DE SECOND HARMONIQUE 78
III.5.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL 78
III.5.2 MESURES DE TRANSMISSION 80
III.5.3 MESURES D'ACCEPTANCE SPECTRALE 82
III.5.3.1 Acceptance spectrale d'un guide taillé selon l'axe X du cristal de KTP 82
III.5.3.2 Acceptance spectrale d'un guide taillé selon l'axe Y du cristal de KTP 85
III.5.4 ETUDE DU RENDEMENT DE CONVERSION DANS UN GUIDE TAILLE SELON L'AXE X DU CRISTAL DE KTP 86
III.6 ETUDE DE LA GENERATION TROISIEME HARMONIQUE 89
III.6.1 ETUDES PRELIMINAIRES 89
III.6.2 ACCEPTANCE SPECTRALE 92
III.6.3 RENDEMENT DE CONVERSION 94
III.6.3.1 Prise en compte des pertes optiques par évanescence dans la couche d'or 94
III.6.3.2 Mesure de l'énergie du faisceau de troisième harmonique 98
III.7 CONCLUSION 99

IV Caractérisation optique des cristaux à domaines ferroélectriques inversés quasi-périodiquement 100

IV.1 INTRODUCTION 100
IV.2 ETAT DE L'ART DE LA GENERATION DE TIERCE HARMONIQUE PAR CASCADE QUADRATIQUE 101
IV.3 ELEMENTS DE THEORIE DE LA METHODE LAB DE CONCEPTION DE CRISTAUX PHOTONIQUES QUASI-PERIODIQUES 105
IV.4 CONCEPTION D'UN CRISTAL DE KTP A DOMAINES FERROELECTRIQUES INVERSES QUASI-PERIODIQUEMENT 107
IV.5 DISPOSITIF EXPERIMENTAL POUR LA CARACTERISATION DE LA SHG ET DE LA THG 113
IV.6 CARACTERISATION OPTIQUE NON LINEAIRE 118
IV.6.1 DETERMINATION EXPERIMENTALE DES CONDITIONS OPTIMALES DE LA THG DANS LA ZONE 4 118
IV.6.1.1 Etude de l'acceptance thermique des deux étapes de la cascade 118
IV.6.1.2 Etude de l'acceptance spectrale 121

IV.6.2 INFLUENCE DE LA REPARTITION EN POLARISATION DES PHOTONS POMPE 124
IV.6.2.1 Éléments de théorie 125
IV.6.3 RENDEMENTS DE CONVERSION POUR LA SHG ET LA THG EN ACCORD DE PHASE 127
IV.6.3.1 Eléments de théorie 127
IV.6.3.2 Mesure des efficacités de la Génération de Second Harmonique 131
IV.6.3.3 Efficacité de la Génération de Troisième Harmonique 133
IV.7 CONCLUSION 135

V Mesures de coïncidences 136

V.1 INTRODUCTION 136
V.2 NANOFILS SUPRACONDUCTEURS DETECTEURS DE PHOTONS UNIQUES 138
V.2.1 PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT D'UN SNSPD 138
V.2.2 CARACTERISTIQUES DES SNSPD CONÇUS AU GAP 139
V.2.3 DEPENDANCE SPECTRALE DE L'EFFICACITE DE DETECTION 142
V.3 MESURES PRELIMINAIRES DE PAIRES DE PHOTONS 144
V.3.1 CONDITIONS D'ACCORD DE PHASE DE LA FLUORESCENCE PARAMETRIQUE D'ORDRE 2 DANS UN CRISTAL DE KTP 144
V.3.2 DISPOSITIF EXPERIMENTAL POUR LA GENERATION DE PAIRES DE PHOTONS. 145
V.3.3 MESURES DES COÏNCIDENCES DE PHOTONS JUMEAUX 147
V.3.3.1 Histogramme de coïncidences pour un laser de pompe en modes bloqués 147
V.3.3.2 Histogramme de coïncidences pour un laser de pompe en mode continu 148
V.3.4 ETUDE DU NOMBRE DE PAIRES EN FONCTION DE LA PUISSANCE DE POMPE 149
V.3.5 ETUDE DU NOMBRE DE PAIRES EN FONCTION DE LA POLARISATION DE LA POMPE 151
V.4 COMPARAISON AVEC LES PREVISIONS THEORIQUES DE LA REGLE D'OR DE FERMI .. 153
V.5 CONCLUSION 154

Conclusion 155

Bibliographie 172

Introduction

Il semblait au jeune homme que la vie avait un but unique : savoir.
Victor Hugo, *Notre-Dame de Paris*

L'objectif principal de cette thèse est la conception et la caractérisation d'un générateur de triplets de photons par interaction optique non linéaire du troisième ordre. Ce processus consiste en la scission d'un photon pompe en trois photons d'énergie moindre et qui partagent la même fonction d'onde. Le principal intérêt d'un tel état de la lumière réside dans ses propriétés quantiques, en particulier l'intrication. Celle-ci est différente de celle des photons jumeaux qui proviennent de la scission d'un photon en deux. Ces derniers ont donné pléthore d'applications en optique quantique qui ont émergés ces 30 dernières années. Le nouvel état de la lumière que constituent les triplets de photons est par conséquent très prometteur pour des applications dans le domaine de la communication et de l'information quantique. Il sera donc important de pouvoir les générer dans la bande télécom au voisinage de 1500 nm.

Cette thèse effectuée à l'Institut Néel s'inscrit dans le cadre de l'ANR internationale Franco-Suisse « TriQuI », pour Triple photons for Quantum Information, coordonnée par Benoît Boulanger côté français et Hugo Zbinden côté suisse : l'objectif est la génération et l'étude quantique des triplets de photons. Ce projet réunit quatre équipes réparties dans différents laboratoires : l'Institut Néel à l'Université Grenoble-Alpes travaille à la génération paramétrique de triplets de photons (TPG) ainsi qu'à une partie des mesures quantiques afférentes ; le Groupe de Physique Appliquée (GAP) de l'Université de Genève conçoit et fabrique des détecteurs de photons uniques de haute efficacité qui ont été utilisés en fin de thèse, et travaille également à l'élaboration de protocoles d'information quantique ; le Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N) de l'Université Paris-Saclay s'attache à l'étude tant théorique qu'expérimentale des propriétés quantiques des triplets ; l'Institut Femto-ST de l'Université de Franche-Comté conçoit et fabrique les guides d'onde cristallins taillés en arête qui sont un des deux milieux choisis ici pour la génération des triplets. La caractérisation optique non linéaire de ces guides et les expériences de génération de triplets qui en découlent est l'objectif principal de cette thèse.

Le chapitre I est la boîte à outils théoriques de la thèse. Il présente les notions de base nécessaires à la compréhension des travaux effectués. Les calculs d'optique linéaire cristalline sont détaillés pour le cristal de $KTiOPO_4$ (KTP) qui est le milieu de base à partir duquel sont réalisées toutes les expériences de la thèse. Dans la même philosophie, ne sont présentés que les éléments d'optique non linéaire et d'optique quantique qui ont servi à la conception et l'analyse des mesures.

Le chapitre II a pour objectif de rappeler le contexte dans lequel s'inscrit ce travail. Il rappelle dans un premier temps les motivations à travers l'historique des travaux fondamentaux et l'émergence des applications basées sur les photons jumeaux. Puis vient un bilan de l'ensemble des travaux qui ont été effectués dans l'équipe, tant au niveau expérimental que théorique. Ainsi, la première expérience de génération de triplets de photons réalisée par différence de fréquences effectuée lors de la thèse de Julien Douady en 2004 est rappelée. Sont résumés

également les travaux réalisés lors des thèses de Fabien Gravier (2007), Audrey Dot (2011) et Adrien Borne (2014) sur la modélisation de la génération de triplets en régime spontanée ou stimulé dans les régimes semi-classique et quantique, et sur la confrontation aux expériences. Finalement, les méthodes de caractérisation des états triplets et les travaux alternatifs inspirés par les résultats précurseurs de l'équipe sont détaillés.

Toutefois, la génération de triplets de photons en régime spontané, c'est-à-dire par fluorescence paramétrique du troisième ordre, n'a à ce jour jamais été rapportée, et les propriétés quantiques des états triplets générés n'ont pu être étudiés que théoriquement. Deux principaux obstacles ont été identifiés : la faiblesse de la non-linéarité du troisième ordre et l'efficacité jusqu'alors médiocre des détecteurs aux longueurs d'onde considérées.

C'est pour palier au premier obstacle que nous avons considéré des guides d'onde monocristallins de KTP taillés en arête. Leur étude est décrite dans le chapitre III. Ces guides sont fabriqués au laboratoire Femto-ST : ils permettent un fort confinement du rayonnement tout en autorisant un accord de phase par biréfringence. La modélisation des interactions optiques non linéaires nécessaire à la conception d'un guide adapté à la génération de triplets de photons dans la bande télécom est présentée. Elle est basée sur une utilisation novatrice des indices effectifs. Les calculs sur lesquels repose la conception du générateur de triplets de photons sont ensuite confrontés avec succès aux expériences préliminaires de génération de second harmonique. Ces travaux ont conduit à la publication d'un article dans la revue *Optics Letters*, qui est donné en Annexe A. Puis les expériences de génération de troisième harmonique, processus inverse de la génération de triplets de photon, sont présentées et ont permis d'identifier les conditions d'accord de phase optimales qui sont les mêmes pour les deux interactions.

Le chapitre IV s'inscrit également dans la recherche d'une solution alternative pour palier à la faiblesse de la non-linéarité du troisième ordre. Il s'agit ici de la caractérisation complète d'un cristal conçu pour la génération indirecte de triplets de photon par cascade de deux interactions optiques non linéaires du second ordre. Deux générations de paires de photons successives sont utilisées pour obtenir un triplet : le photon « parent » est scindé en deux, puis la scission d'un deux photons jumeaux obtenus génère deux autres photons qui complètent le triplet. Le matériau que nous avons considéré et étudié est un cristal de QPPKTP, pour Quasi Periodically-Poled KTP conçu par Ady Arie de l'Université de Tel Aviv dans le cadre d'une collaboration au sein du Laboratoire International Associé Franco-Israélien Imaginano. Les échantillons de QPPKTP ont été étudiés par le biais de la génération de troisième harmonique. La recherche de paramètres expérimentaux optimaux a conduit à l'établissement du record de rendement pour ce processus. Ces résultats ont été publiés dans *OSA Continuum* ; l'article correspondant est donné en Annexe B.

Le chapitre V porte sur la prise en main des détecteurs fournis par l'équipe du GAP. Ces détecteurs sont des nanofils supraconducteurs qui permettent le comptage de photons uniques avec des efficacités supérieures à 70% aux longueurs d'onde de travail. La conception d'un dispositif expérimental qui permettra la mesure des coïncidences des temps d'arrivée des photons triplets est présentée. Un générateur de paires de photons basé sur un cristal massif de KTP pompé aux alentours de 800 nm a été conçu et mis en œuvre par une expérience de coïncidence pour tester les détecteurs. Les résultats sont comparés avec la théorie. La conclusion dresse un bilan des principaux résultats obtenus et ouvre sur quelques perspectives.

I Eléments de théorie

It can scarcely be denied that the supreme goal of all theory is to make the irreducible basic elements as simple and as few as possible without having to surrender the adequate representation of a single datum of experience.
Albert Einstein, *Philosophy of Science*

I.1 Introduction

Il nous faut penser chaque jour à tant de choses, nous familiariser en permanence avec de nouveaux styles, de nouvelles connaissances, de nouveaux mots…
Haruki Murakami, *Kafka sur le rivage*

Ce premier chapitre est dévolu à développer les outils théoriques nécessaires à la compréhension des notions et expériences abordées dans ce manuscrit. Dans un premier temps sera décrit le cadre général dans lequel s'inscrit ce travail. Ensuite, les éléments d'optique linéaire seront abordés sous l'angle d'une propagation de la lumière dans un cristal de KTP. Enfin, les notions requises d'optique non linéaire et d'optique quantique seront présentées.

Le cadre général de ce travail s'appuie à la fois sur l'électromagnétisme classique, le modèle semi-classique d'interaction entre une onde électromagnétique et un milieu homogène, et le modèle quantique décrivant les interactions non linéaires au sein de ce même milieu. Les ondes électromagnétiques, constituées d'un champ électrique de vecteur noté $\vec{E}$ et d'un champ magnétique de vecteur noté $\vec{H}$, seront considérées sous l'approximation de l'onde monochromatique, c'est-à-dire caractérisées par une unique longueur d'onde λ. Il est alors possible de définir la pulsation de telles ondes comme $\omega = \frac{2\pi c}{\lambda}$, où $c = 3\times10^{8} m.s^{-1}$ est la vitesse de la lumière dans le vide. L'ensemble du formalisme décrit ci-dessous n'est à considérer que pour des longueurs d'onde comprises entre $0{,}1\mu m$ et $10\mu m$, ce qui correspond à la plage du spectre électromagnétique allant de l'ultraviolet à l'infrarouge moyen. En outre, les éclairements qui seront mis en jeu ne seront pas suffisants pour que les effets relativistes de la lumière sur la matière soient à prendre en compte [1]. Interviendront dans ce travail uniquement des champs électriques de direction de vibration unique, ce qui correspond à une polarisation dite rectiligne. Le vecteur d'onde $\vec{k}$, dont la direction est celle de la vitesse de phase, peut alors aisément être projeté : son module est défini par $k = \frac{n\omega}{c}$ où n est l'indice de réfraction du milieu, grandeur sans dimension qui décrit le comportement de la lumière dans le milieu considéré. Les milieux de propagation qui seront considérés dans cette étude seront des diélectriques non magnétiques. Il sera donc supposé qu'aucune aimantation induite ni densité de courant induite ne prendra part aux interactions. Ce sont finalement des phénomènes

purement électriques qui seront étudiés. Ces milieux seront également considérés comme sans perte, de sorte que l'indice de réfraction *n* sera une quantité réelle.

L'interaction entre lumière et matière sera décrite par le couplage entre le champ électrique de la lumière et celui des électrons de valence. Cela fait entrer en jeu la polarisation électrique macroscopique $\vec{P}$ correspondant au déplacement des électrons de valence induit par le champ électrique de la lumière via la force de Coulomb. Les interactions au niveau microscopique ne seront pas décrites dans le cadre de cette étude. Le retour à l'équilibre des électrons de valence produit un rayonnement décrit par les équations de Maxwell [2]:

$$\begin{cases} \overrightarrow{rot}\left(\vec{E}(\omega)\right) = -\dfrac{\partial \vec{B}(\omega)}{\partial t} \\ \overrightarrow{rot}\left(\vec{H}(\omega)\right) = \dfrac{\partial \vec{D}(\omega)}{\partial t} \\ div\left(\vec{D}(\omega)\right) = 0 \\ div\left(\vec{B}(\omega)\right) = 0 \end{cases} \tag{I.1}$$

où $\vec{D}$ est le vecteur déplacement électrique et $\vec{B}$ le vecteur induction magnétique. Ils se calculent à partir des relations constitutives suivantes :

$$\begin{cases} \vec{D} = \overrightarrow{\varepsilon_0 E} + \vec{P} \\ \vec{B} = \mu_0 \vec{H} \end{cases} \tag{I.2}$$

ε_0 est la permittivité diélectrique du vide et μ_0 la perméabilité magnétique du vide.

L'onde plane progressive est une solution des équations de Maxwell. Elle permet également de décrire fidèlement la réalité. Elle s'écrit pour une onde polarisée rectilignement

$$\vec{E}(\omega, z) = E(\omega, z)\vec{e}(\omega) = \zeta(\omega, z)e^{ik(\omega)z}\vec{e}(\omega) \tag{I.3}$$

où ζ est l'amplitude complexe scalaire du champ électrique de pulsation ω à la côte z, ϕ est la phase initiale, $\vec{e}(\omega)$ est le vecteur unitaire de la direction de polarisation.

Le vecteur de Poynting $\vec{\pi}$, dont la direction est celle la vitesse de groupe, renseigne sur les propriétés énergétiques d'une onde. Il est défini par

$$\vec{\pi} = \vec{E} \wedge \vec{H} \tag{I.4}$$

Ce vecteur permet aussi de définir la notion d'éclairement qui est fondamentale pour cette étude. Appelé aussi *intensité*, l'éclairement correspond à la puissance rayonnée par unité de surface. Il sera défini comme [3]-[4] :

$$I = \left\langle \left\| \vec{\pi} \right\| \right\rangle_T = \frac{n}{2}\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}\left|E\right|^2 \tag{I.5}$$

Pour une onde excitatrice de pulsation ω_0, la composante de Fourier de la polarisation induite peut être décrite par une décomposition en série de Taylor [5]:

$$\vec{P}(\omega_0) = \vec{P}^{(1)}(\omega_0) + \vec{P}^{(2)}(\omega_0) + \vec{P}^{(3)}(\omega_0) + ... \tag{I.6}$$

avec :

$$\vec{P}^{(1)}(\omega_0) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_0).\vec{E}(\omega_0) \tag{I.7}$$

où ε_0 est la permittivité diélectrique du vide, $\chi^{(1)}$ est le tenseur susceptibilité électrique d'ordre 1, ω_0 est la pulsation du champ. $\vec{P}^{(1)}$ est la *polarisation linéaire*, $\vec{P}^{(2)}$ la polarisation non linéaire d'ordre 2 et $\vec{P}^{(3)}$ la polarisation non linéaire d'ordre 3. Ces deux derniers termes seront explicités dans la section I.3.

En combinant les équations de Maxwell (I.1) pour des milieux non magnétiques et non conducteurs avec l'équation (I.7), l'équation de propagation s'écrit [4]:

$$\overrightarrow{rot}\left(\overrightarrow{rot}\left(\vec{E}(\omega)\right)\right) + \mu_0\varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}(\omega)}{\partial t} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{P}(\omega)}{\partial t} \tag{I.8}$$

L'interaction lumière matière se résume par l'algorithme présenté en Figure I.1, la longueur d'interaction étant la longueur d'onde [6].

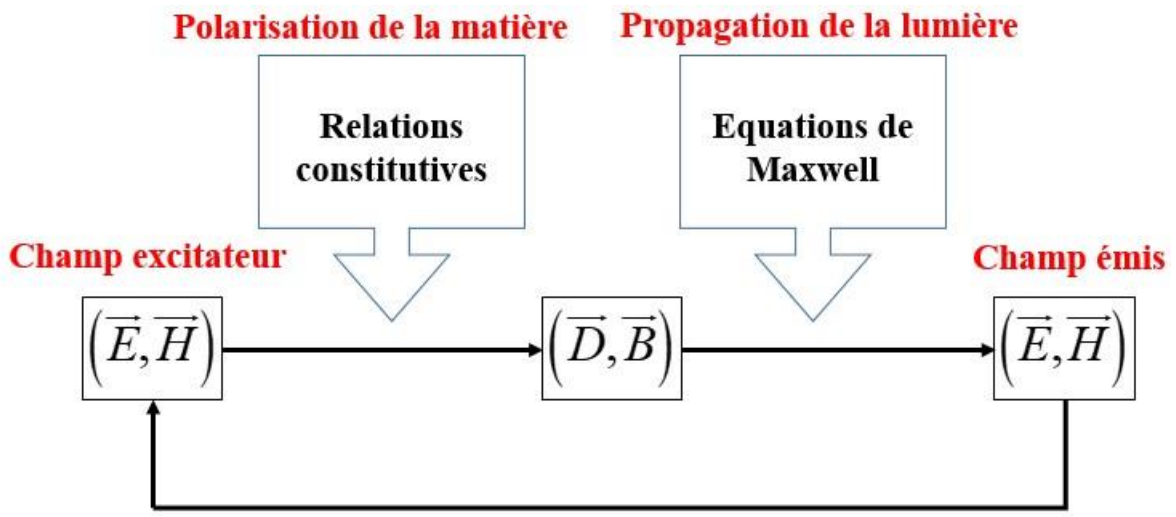


Figure I.1 : Algorithme de propagation de la lumière.

La résolution de l'équation de propagation conduit à la description de l'évolution spatiale des champs mis en jeu, ce qui sera fondamental dans les parties suivantes d'optique linéaire et non linéaire.

I.2 Eléments d'Optique linéaire

Nature uses only the longest threads to weave her patterns, so each small piece of her fabric reveals the organization of the entire tapestry
Richard Feynman, *The Character of Physical Law*

I.2.1 Introduction

Il sera démontré dans ce chapitre que les propriétés d'optique linéaire jouent un rôle particulièrement important au sein des processus d'optique non linéaire.

Vis-à-vis de l'équation (I.6), seule la polarisation d'ordre 1 sera prise en compte. Ce tenseur de rang 2 s'exprime dans le repère qui le diagonalise et qui est appelé *repère diélectrique*, noté (O,x,y,z) [7] :

$$\vec{P}^{(1)}(\omega) = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} \chi_{xx}^{(1)}(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{yy}^{(1)}(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{zz}^{(1)}(\omega) \end{pmatrix} . \vec{E}(\omega) \qquad \text{(I.9)}$$

Le repère diélectrique sera utilisé dans de nombreux calculs lors de cette étude.

En combinant les équations. (I.9),(I.2) et (I.7), il vient :

$$\vec{D}(\omega) = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} 1+\chi_{xx}^{(1)}(\omega) & 0 & 0 \\ 0 & 1+\chi_{yy}^{(1)}(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & 1+\chi_{zz}^{(1)}(\omega) \end{pmatrix} .\vec{E}(\omega) \qquad \text{(I.10)}$$

C'est à partir de cette expression que sont définis les indices principaux de réfraction :

$$\begin{cases} n_x(\omega) = \sqrt{1+\chi_{xx}^{(1)}(\omega)} \\ n_y(\omega) = \sqrt{1+\chi_{yy}^{(1)}(\omega)} \\ n_z(\omega) = \sqrt{1+\chi_{zz}^{(1)}(\omega)} \end{cases} \qquad \text{(I.11)}$$

Il est utile de représenter le vecteur d'onde dans le repère diélectrique, repéré par les angles de coordonnées sphériques θ et φ, comme montré en Figure I.2.

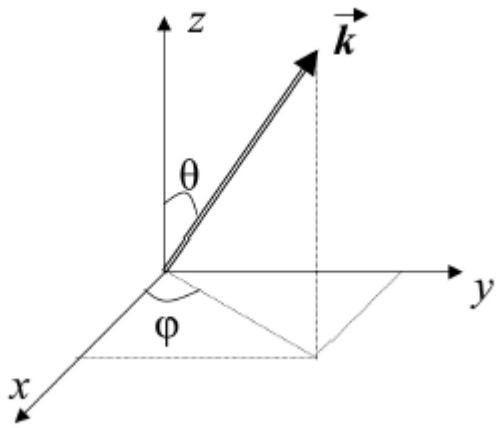


Figure I.2 : Convention de repérage du vecteur d'onde $\vec{k}$ dans le repère diélectrique.

Les cristaux qui seront utilisés sont anisotropes, ils ont par conséquent des indices principaux de réfraction différents. L'indice de réfraction « vu » par une onde va donc dépendre de la direction de propagation ainsi que de la direction de polarisation. L'optique cristalline, qui sera développée dans la partie suivante, donne les outils permettant d'appréhender ces caractéristiques. Elle donne ainsi accès à une modélisation fiable des variations des indices de réfraction en fonction des différentes situations expérimentales.

I.2.2 Optique Cristalline

En combinant les équations de Maxwell et les équations constitutives vient une relation donnant la dépendance en direction de propagation de l'indice de réfraction [2] :

$$\frac{\sin^2(\theta)\cos^2(\varphi)}{n^{-2}(\omega)-n_x^{-2}(\omega)}+\frac{\sin^2(\theta)\sin^2(\varphi)}{n^{-2}(\omega)-n_y^{-2}(\omega)}+\frac{\cos^2(\theta)}{n^{-2}(\omega)-n_z^{-2}(\omega)}=0 \qquad \text{(I.12)}$$

Cette relation est appelée *équation de Fresnel* ; elle admet deux solutions notées $n^+(\theta,\varphi)$ et $n^-(\theta,\varphi)$, par convention l'ordre $n^+(\theta,\varphi)\geq n^-(\theta,\varphi)$ est défini. Ces solutions valent [5] :

$$n^{(\pm)}(\theta,\varphi)=\sqrt{\frac{2}{\alpha\mp\sqrt{\alpha^2-4\beta}}} \qquad \text{(I.13)}$$

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

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

L'indice vu par l'onde peut donc prendre deux valeurs différentes. Cette propriété des matériaux anisotropes est appelée *biréfringence*, caractérisée par la quantité relative à chaque direction de propagation $\Delta n(\theta,\varphi)=n^+(\theta,\varphi)-n^-(\theta,\varphi)$. Plusieurs classes sont alors définies en fonction des indices principaux donnés par l'équation (I.11).

- Si tous les indices sont égaux, le matériau est *isotrope*.
- Dans le cas où deux indices principaux sont égaux mais différents du troisième, le matériau appartient à la classe optique dite *uniaxe.*
- Lorsque les indices principaux sont tous les trois différents, le matériau est dit *biaxe*.

Le cristal de KTP qui est l'objet central de cette étude appartenant à cette dernière classe, l'accent sera mis sur ses spécificités. La représentation géométrique de l'équation (I.13) dans le repère diélectrique est appelée surface des indices. Elle permet de visualiser la distribution angulaire des indices de réfraction en fonction de la direction du vecteur d'onde. Une représentation de cette surface dans le cas de KTP est proposée en Figure I.3. Il est à noter que l'ensemble des directions de propagation choisies dans le cadre de la thèse seront dans les plans

principaux xOy et xOz. La section de la surface des indices correspondante donne une trace circulaire ainsi qu'une trace elliptique.

Pour une direction de propagation dans le plan xOy d'un biaxe donnée par le vecteur unitaire du vecteur d'onde $\vec{s}(\theta = \pi/2, \varphi)$, deux ondes solutions de l'équation de propagation peuvent se propager [5]. Leurs vecteurs unitaires de déplacement électrique $\overrightarrow{d^+}$ et $\overrightarrow{d^-}$ sont orthogonaux entre eux et définissent avec $\vec{s}$ les deux plans de polarisation. Les deux vecteurs unitaires des champs électriques correspondants $\overrightarrow{e^+}$ et $\overrightarrow{e^-}$ ne sont pas orthogonaux entre eux dans le cas général, et les vecteurs de Poynting $\overrightarrow{\pi^+}$ et $\overrightarrow{\pi^-}$ ne sont pas colinéaires. De plus dans le cas général, $\overrightarrow{e^+}$ et $\overrightarrow{e^-}$ ne sont pas orthogonaux à $\vec{s}$, et $\overrightarrow{\pi^+}$ et $\overrightarrow{\pi^-}$ ne lui sont pas colinéaires, sachant que $\overrightarrow{e^+}$ est perpendiculaire à $\overrightarrow{\pi^+}$ et $\overrightarrow{e^-}$ est perpendiculaire à $\overrightarrow{\pi^-}$. La non-colinéarité entre $\overrightarrow{\pi^+}$ et $\overrightarrow{\pi^-}$ correspond au phénomène de double réfraction, responsable de la séparation spatiale latérale des faisceaux, appelée *« spatial walk-off »* en anglais. Les différents faisceaux en interaction s'écartent donc les uns des autres au fil de la propagation dans le cristal. Minimiser ce phénomène s'avère donc fondamental. Dans le plan xOy d'un cristal biaxe comme KTP, où $n_x < n_y < n_z$, l'angle entre $\overrightarrow{\pi^+}$ et $\overrightarrow{\pi^-}$ est donné par [5] :

$$\rho(\varphi) = \arccos\left(\frac{n_y^{-2}\cos^2(\varphi) + n_x^{-2}\sin^2(\varphi)}{\sqrt{n_y^{-4}\cos^2(\varphi) + n_x^{-4}\sin^2(\varphi)}}\right) \tag{I.14}$$

Cet angle, appelé « angle de double réfraction », est donc nul lorsque la propagation a lieu selon les axes principaux x et y, ce qui sera utilisé dans le cadre de nos expériences.

Une représentation de la configuration vectorielle des modes propres de polarisation dans le plan xOy est donnée en Figure I.4.

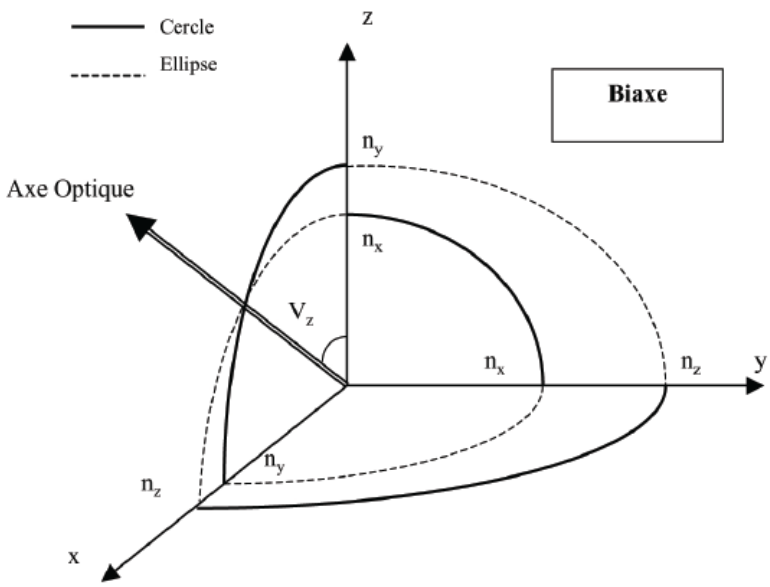


Figure I.3 : Représentation de la surface des indices dans le repère diélectrique pour un milieu biaxe. L'intersection des nappes dans le plan xz à l'angle Vz définit l'Axe Optique.

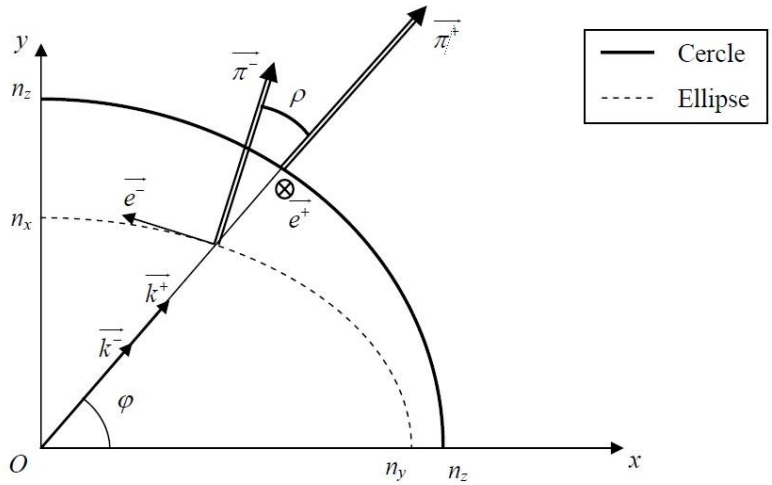


Figure I.4 : Configuration vectorielle pour une propagation dans le plan xOy d'un cristal biaxe.

La dépendance des indices de réfraction étant établie en fonction de la direction de propagation et de la direction de vibration de l'onde, il s'agit maintenant de décrire la dépendance spectrale de ces indices puisque les expériences d'optique non linéaire vont faire intervenir des ondes de fréquences différentes au sein de milieux dispersifs. C'est ce sur quoi la partie suivante va se focaliser.

I.2.3 Dépendance Spectrale

La modélisation de la dépendance spectrale de l'indice de réfraction est réalisée dans le cadre du modèle classique de Lorentz. L'électron y est considéré en tant qu'oscillateur lié à l'atome. Entrent en jeu 3 forces : la force de Coulomb, une force de rappel qui provient du potentiel des électrons de valence, et une force de friction qui témoigne de l'absorption dans le milieu. Ce modèle aboutit à plusieurs formes possibles d'équations de dispersion en longueur d'onde des indices principaux des matériaux. Dans le domaine de transparence de KTP, l'équation de Sellmeier suivante donne une bonne description du phénomène [8] :

$$n_i(\lambda) = \sqrt{A_i + \frac{B_i}{\lambda^2 - C_i} - D_i\lambda^2} \qquad \text{(I.15)}$$

où l'indice $i = \{x, y, z\}$, et la longueur d'onde est exprimée en µm.

L'équation de Sellmeier permet de bien interpoler les courbes expérimentales, sachant qu'une précision relative $\Delta n/n \sim 10^{-4}$ sera requise pour une bonne description des propriétés optiques non linéaires. Le Tableau I.1 donne les coefficients de Sellmeier pour KTP qui sont les plus fiables pour les cristaux utilisés dans ce travail [9]. La dispersion des indices principaux est donnée en Figure I.5.

i	A_i	B_i	C_i	D_i
x	3,0065	0,03901	0,04251	0,01327
y	3,0333	0,04154	0,04547	0,01408
z	3,3134	0,05694	0,05658	0,01682

Tableau I.1 : Coefficients de Sellmeier de KTP [9].

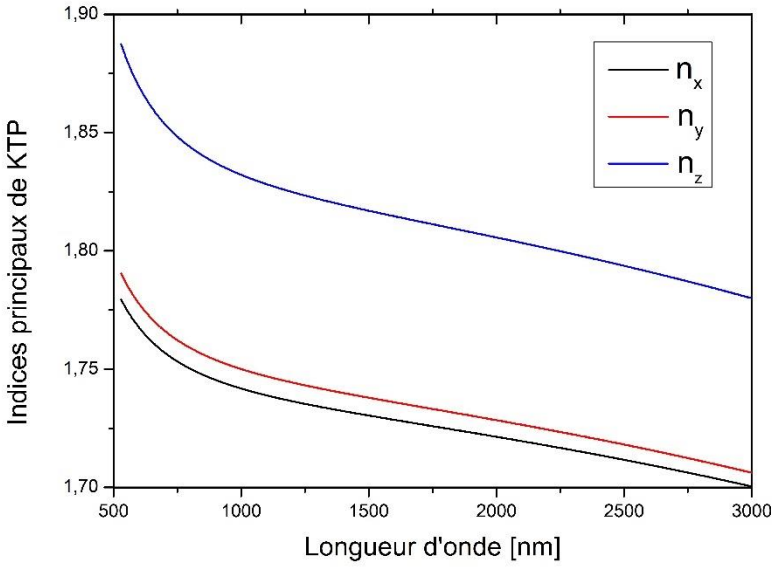


Figure I.5 : Dispersion spectrale des indices principaux du cristal de KTP donnée par l'étude de Kato et al. [9].

La dispersion est dite normale lorsque l'indice de groupe décroît en fonction de la longueur d'onde, ce qui est toujours le cas dans le domaine de transparence de tout matériau. Les indices de réfraction dépendent à la fois de la direction de propagation et de la longueur d'onde, mais aussi de la température du milieu. La modélisation de cette dépendance est décrite dans la partie suivante.

I.2.4 Dépendance thermique

La variation de l'indice de réfraction en fonction de la température est le plus souvent modélisée par un terme correctif polynomial d'ordre 2 qui s'ajoute à la variation spectrale [9,10]. L'équation qui a été retenue pour cette étude s'écrit [10] :

$$n_i(\lambda,T) = n_{p,i}(\lambda) + \delta n_i(\lambda,T) \quad , \quad i = \{x, y, z\} \tag{I.16}$$

T est la température du cristal, $n_{p,i}$ l'indice principal de réfraction pour une certaine longueur d'onde obtenu via l'équation de Sellmeier. Le terme correctif δn_i, variant avec la température et la longueur d'onde, est donné par :

$$\delta n_i(\lambda,T) = n_{1,i}(\lambda)(T-25) + n_{2,i}(\lambda)(T-25)^2 \quad , \quad i = \{x, y, z\} \tag{I.17}$$

La température est exprimée en degré Celsius, et les fonctions $n_{1,i}(\lambda)$ et $n_{2,i}(\lambda)$, $i=\{x,y,z\}$ sont prises comme variant de façon polynomiale avec la longueur d'onde. Ainsi il vient :

$$n_{1,2}(\lambda)=\sum_{m=0}^{3}\frac{\{a_m\}_{1,2}}{\{\lambda^m\}_{1,2}} \tag{I.18}$$

La longueur d'onde est exprimée en µm et les facteurs a_m, appelés coefficients thermo-optiques, sont exprimés en µm.°C^{-1}. Le Tableau I.2 donne les valeurs de ces coefficients pour le cristal de KTP ; elles ont été obtenues par interférométrie en utilisant le cristal comme une cavité Fabry-Perot.

	Δn_z		Δn_y	
	$n_1(10^{-6}\mu m/°C)$	$n_2(10^{-8}\mu m/°C)$	$n_1(10^{-6}\mu m/°C)$	$n_2(10^{-8}\mu m/°C)$
a_0	9,9587	-1,1882	6,2897	-0,14445
a_1	9,9228	10,459	6,3061	2,2244
a_2	-8,9603	-9,8136	-6,0629	-3,5770
a_3	4,1010	3,1481	2,6486	1,3470

Tableau I.2 : Coefficients thermo-optiques du cristal de KTP [10].

L'ensemble des outils théoriques d'optique linéaire sur lesquels sont fondés les calculs d'optique non linéaire étant maîtrisé, il est désormais possible de modéliser les interactions optiques non linéaires. C'est l'objet de la section I.3.

Les cristaux anisotropes qui seront les milieux d'interaction au cours de cette étude possèdent plusieurs indices de réfraction principaux. Les ondes interagissant au sein de ces milieux vont donc voir des indices différents en fonction de leur direction de propagation et de leur direction de polarisation. De plus, ces indices vont dépendre de la longueur d'onde et de la température. Ces dépendances sont décrites avec une précision satisfaisante pour KTP dans la bibliographie.

I.3 Eléments d'Optique non linéaire

All my life through, the new sights of Nature made me rejoice like a child
Marie Curie, *Pierre Curie*

La première observation d'un phénomène optique non linéaire [11] a été rendue possible par le développement des premiers lasers. En effet, les sources lumineuses antérieures n'avaient pas d'éclairement suffisant par rapport à l'intensité des champs internes relatifs aux électrons de valence. Il est communément admis qu'un éclairement de l'ordre du $MW.cm^{-2}$ est nécessaire pour que les termes de perturbation de l'équation (I.5) puissent donner naissance à des phénomènes accessibles par la mesure. Comme en optique linéaire, il est possible d'utiliser le modèle de Lorentz, mais avec un potentiel anharmonique, de sorte que les champs rayonnés peuvent alors avoir des fréquences différentes du champ excitateur [12].

I.3.1 Polarisation non linéaire

Les termes d'ordre supérieur ou égal à 2 dans l'équation (I.5) s'écrivent [5] :

$$\begin{cases} \vec{P}^{(2)}(\omega_0) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_0 = \omega_1 \pm \omega_2) : \vec{E}(\omega_1) \otimes \vec{E}(\pm\omega_2) \\ \vec{P}^{(3)}(\omega_0) = \varepsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_0 = \omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3) \vdots \vec{E}(\omega_1) \otimes \vec{E}(\pm\omega_2) \otimes \vec{E}(\pm\omega_3) \end{cases} \tag{I.19}$$

où $\{ .,:,\vdots \}$ sont des produits contractés, $\otimes$ est un produit tensoriel, $\chi^{(n)}$ est le tenseur susceptibilité électrique d'ordre *n*, $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ sont les pulsations des champs rayonnés qui proviennent des ordres de polarisation supérieurs à 1. Par convention, la relation d'ordre $\omega_0 \leq \omega_1 \leq \omega_2 \leq \omega_3$ sera respectée dans le cadre de cette étude. $\vec{P}^{(2)}$ est la polarisation induite du 2ème ordre, et $\vec{P}^{(3)}$ la polarisation induite du 3ème ordre. Il est important de remarquer que les différentes pulsations des champs générés obéissent à la conservation de l'énergie.

Les interactions d'ordre 2, gouvernées par le premier terme de l'équation (I.19) sont le sujet de la prochaine partie.

I.3.2 Interactions du second ordre

Egalement appelées processus quadratiques du fait de la dépendance quadratique en $\vec{E}$ de la polarisation non linéaire d'ordre 2 dans l'équation (I.19), ces interactions ont été les premières à être découvertes. Ceci s'explique par la différence d'efficacité inhérente aux ordres de perturbation. Les propriétés non linéaires du milieu interviennent par l'intermédiaire des éléments du tenseur $\chi^{(2)}$, qui sera décrit dans la partie ci-après.

I.3.2.1 Symétries et propriétés du cristal

Le tenseur $\chi^{(2)}$ est de rang 3, de sorte qu'il possède 27 coefficients non nuls et indépendants dans le cas général. Ces coefficients sont notés $\chi^{(2)}_{ijk}$. Trois considérations de symétrie permettent néanmoins de réduire le nombre de coefficients indépendants non nuls.

La symétrie de Kleinman stipule que le tenseur $\chi^{(2)}$ est invariant par permutation des indices cartésiens lorsque le milieu est sans perte et que la dispersion en longueur d'onde de la susceptibilité électrique peut être négligée [13].

La symétrie ABDP permet que le tenseur $\chi^{(2)}$ soit invariant par permutation concomitante de la pulsation et de l'indice cartésien correspondant, ceci n'étant valable que dans le cas où le milieu est sans perte [12].

Enfin, la symétrie d'orientation du milieu considéré vient, selon le principe de Neumman [14], réduire encore le nombre d'éléments indépendants du tenseur $\chi^{(2)}$ du fait de son invariance par chaque opération de symétrie présente dans le milieu [7].

Les symétries de Kleinman et ABDP sont généralement utilisées, même si le milieu possède des pertes et qu'il est faiblement dispersif. Ces approximations seront d'autant plus valables que les fréquences de travail seront situées loin des bandes d'absorption. Le principe de Neumann, quant à lui, ne nécessite aucune approximation.

En vertu de la symétrie de Kleinman et du principe de Neumann, le cristal de KTP de symétrie d'orientation orthorhombique mm2 possède 3 éléments de tenseur $\chi^{(2)}$ non nuls et indépendants [5]:

$$\begin{cases} \chi^{(2)}_{xzx} = \chi^{(2)}_{xxz} = \chi^{(2)}_{zxx} \\ \chi^{(2)}_{yyz} = \chi^{(2)}_{yzy} = \chi^{(2)}_{zyy} \\ \chi^{(2)}_{zzz} \end{cases} \tag{I.20}$$

Compte tenu des relations d'égalité précédentes, il est possible d'alléger une nouvelle fois l'écriture en employant une notation contractée où les termes $\chi_{ijk}^{(2)}$ sont écrits $\chi_{\mu m}^{(2)}$, avec une convention résumée dans le Tableau I.3.

	$\chi_{\mu m}^{(2)}$
μ	x→1 y→2 z→3
m	xx → 1
	yy → 2
	zz→ 3
	zy=yz → 4
	zx=xz → 5
	yx=xy → 6

Tableau I.3 Convention de la notation contractée du tenseur de susceptibilité électrique non linéaire d'ordre 2.

Le modèle de Lorenz conduit aussi aux relations de Miller, qui relient les éléments des tenseurs de susceptibilité électrique non linéaire aux éléments du tenseur linéaire [15] :

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_0 = \omega_1 \pm \omega_2) = \delta_{ijk}^{(2)} \chi_{ii}^{(1)}(\omega_0)\chi_{jj}^{(1)}(\omega_1)\chi_{kk}^{(1)}(\omega_2) \tag{I.21}$$

où $\delta_{ijk}{}^{(2)}$ est l'indice de Miller de second ordre, indépendant de la pulsation.

Ainsi, à partir de l'équation (I.21), il vient par exemple :

$$\frac{\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega_a = \omega_a + \omega_a)}{\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega_b = \omega_b + \omega_b)} = \frac{\chi_{ii}^{(1)}(2\omega_a)\chi_{jj}^{(1)}(\omega_a)\chi_{kk}^{(1)}(\omega_a)}{\chi_{ii}^{(1)}(2\omega_b)\chi_{jj}^{(1)}(\omega_b)\chi_{kk}^{(1)}(\omega_b)} \tag{I.22}$$

Soit compte tenu de l'équation (I.11) :

$$\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega_a = \omega_a + \omega_a) = \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega_b = \omega_b + \omega_b)\frac{\left[n_i^2(2\omega_a)-1\right]\left[n_j^2(\omega_a)-1\right]\left[n_k^2(\omega_a)-1\right]}{\left[n_i^2(2\omega_b)-1\right]\left[n_j^2(\omega_b)-1\right]\left[n_k^2(\omega_b)-1\right]} \tag{I.23}$$

Par conséquent, ayant mesuré par une expérience de génération de second harmonique (SHG) l'indice $\chi_{ijk}^{(2)}$ à la pulsation $2\omega_b$, et connaissant les indices de réfraction principaux à ω_a, ω_b,

$2\omega_a$ et $2\omega_b$, il est possible de calculer $\chi_{ijk}^{(2)}$ à la pulsation $2\omega_a$. Par exemple pour KTP, la mesure du coefficient $\chi_{24}^{(2)}(\lambda_{2\omega_b} = 660nm) = 4,94 \pm 0,2\, pm/V$ [16] peut permettre d'accéder à toute autre valeur possible de longueur d'onde $\lambda_{2\omega_a}$ dans le domaine de transparence de KTP.

Les propriétés optiques non linéaires d'ordre deux d'un milieu interviennent par l'intermédiaire des éléments du tenseur $\chi^{(2)}$. Le groupe de symétrie du milieu permet de réduire le nombre de termes non nuls et indépendants. La dépendance spectrale d'un coefficient du tenseur peut être obtenue à partir d'une unique mesure expérimentale et des relations de Miller.

Ce sont donc ces éléments qui vont être mis à contribution lors des différents processus non linéaires d'ordre 2 qui vont maintenant être détaillés.

I.3.2.2 Processus non linéaires quadratiques

La vision corpusculaire des interactions permet d'appréhender au mieux leur diversité.

Si historiquement, la génération de second harmonique fût la première interaction observée, elle n'est en fait que le cas dégénéré en fréquence du processus de fusion de deux photons donnant naissance à un photon d'énergie double [6]. A cette fusion de photons s'ajoutent la scission spontanée ou fluorescence paramétrique, ainsi que la scission stimulée. Ces trois cas sont visualisés sur les diagrammes photoniques de la Figure I.6.

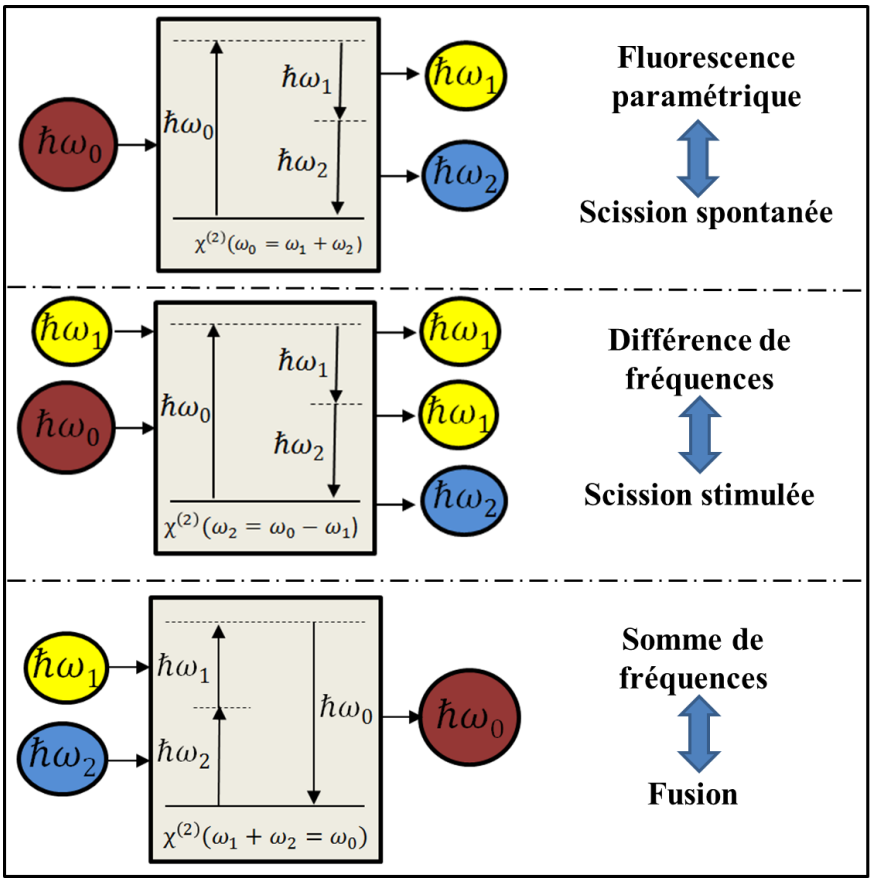


Figure I.6 : Diagrammes photoniques des différentes interactions optiques non linéaires quadratiques possibles. Le trait plein représente le niveau d'énergie fondamentale de la matière, les traits pointillés représentent les niveaux d'énergie du champ électromagnétique [6]. ħ est la constante de Planck réduite.

Ces diagrammes ont l'avantage de représenter de manière pédagogique les interactions non linéaires. Le modèle présenté dans la partie suivante permet d'expliciter les paramètres physiques sur lesquels reposent ces processus.

I.3.2.3 Equations de propagation des champs

En combinant les équations (I.2), (I.6), et le premier terme de l'équation (I.19), vient l'expression générale :

$$\vec{D}(\omega) = \varepsilon_0 \varepsilon_r(\omega).\vec{E}(\omega) + \vec{P}^{(2)}(\omega) \tag{I.24}$$

où $\varepsilon_r(\omega) = \left(I_3 + \chi^{(1)}(\omega)\right)$ est le tenseur de permittivité diélectrique relative, I_3 étant la matrice identité 3x3.

L'équation de propagation s'écrit alors pour chaque pulsation ω_i :

$$\overrightarrow{rot}\left(\overrightarrow{rot}\left(\vec{E}(\omega_i)\right)\right) + \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon_r(\omega_i) \frac{\partial \vec{E}(\omega_i)}{\partial t} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{P}^{(2)}(\omega_i)}{\partial t} \tag{I.25}$$

En considérant des ondes planes progressives à vecteurs d'onde colinéaires, un milieu sans perte, l'absence de diffraction ainsi que la dispersion des vitesses de groupe comme étant négligeable, vient le système d'équations couplées des amplitudes complexes des champs électriques par intégration de l'équation (I.25) [5] :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial E(\omega_0)}{\partial Z} = j \dfrac{\pi}{n(\omega_0)\lambda_0 \cos^2\left(\rho(\omega_0)\right)} \chi_{eff}^{(2)}(\omega_0) E(\omega_1) E(\omega_2) e^{-j\Delta kZ} \\ \dfrac{\partial E(\omega_1)}{\partial Z} = j \dfrac{\pi}{n(\omega_1)\lambda_1 \cos^2\left(\rho(\omega_1)\right)} \chi_{eff}^{(2)}(\omega_1) E(\omega_0) E^*(\omega_2) e^{+j\Delta kZ} \\ \dfrac{\partial E(\omega_2)}{\partial Z} = j \dfrac{\pi}{n(\omega_2)\lambda_2 \cos^2\left(\rho(\omega_2)\right)} \chi_{eff}^{(2)}(\omega_2) E(\omega_0) E^*(\omega_1) e^{+j\Delta kZ} \end{cases} \tag{I.26}$$

où E^* est le conjugué de E.

L'axe Z du repère du laboratoire, noté (X, Y, Z), est pris comme la direction de propagation commune aux trois ondes en interaction. L'intégration de ce système donne accès aux équations d'évolution des amplitudes complexes des différents champs mis en jeu. Les dépendances transverses en X et Y des champs électriques ne sont pas indiquées dans le système (I.26) à ce stade. Apparaissent dans ces expressions deux paramètres primordiaux quant à la propagation et l'efficacité des processus non linéaires : le coefficient effectif $\chi_{eff}^{(2)}$ et le désaccord de phase spatial Δk.

Le coefficient effectif concentre à la fois les propriétés intrinsèques du cristal et la configuration des directions de polarisation des champs mis en jeu. Il s'écrit [17] :

$$\chi_{eff}^{(2)} = \chi^{(2)}(\omega_0 = \omega_1 + \omega_2) \therefore \vec{e_0} \otimes \vec{e_1} \otimes \vec{e_2} \tag{I.27}$$

Pour réaliser une interaction efficace, il faut donc en premier lieu s'assurer que la combinaison de polarisation des champs intervenants maximise le coefficient effectif, et, qu'au minimum, il ne soit pas nul.

Le désaccord de phase spatial Δk correspond du point de vue corpusculaire à la différence entre les impulsions des photons. La condition $\Delta k = 0$ correspond donc à la conservation de l'impulsion des photons, appelée condition d'*accord de phase* dans une description ondulatoire. En effet, le produit ΔkZ correspond à la différence entre la phase spatiale de la polarisation non linéaire, $(k_1 + k_2)Z$, et la phase spatiale du champ qu'elle rayonne, $k_0 Z$. C'est la signature typique d'un phénomène interférentiel, qui s'exprime donc par :

$$\Delta k = k_0 - (k_1 + k_2) \tag{I.28}$$

Parmi toutes les interactions ayant lieu au niveau microscopique, seules celles très proches de l'accord de phase auront donc une manifestation macroscopique notable. En effet, hors accord de phase, le transfert d'énergie entre la polarisation non linéaire et le champ généré alterne de manière périodique selon une période spatiale $2l_c = \left|\frac{2\pi}{\Delta k}\right| 2$, où l_c est la longueur de cohérence. Cette notion sera davantage explicitée sur la Figure I.7 dans la section I.3.2.5.

Hors accord de phase, l'interaction considérée est donc peu efficace. En prenant l'exemple d'un processus pour lequel deux photons à ω_1 et ω_2 fusionnent pour donner un photon à ω_0, l'approximation dite de la pompe non dépeuplée s'applique. Ainsi, $\frac{\partial E(\omega_1)}{\partial Z} \simeq \frac{\partial E(\omega_2)}{\partial Z} \approx 0$, ce qui implique : $E(\omega_1, X, Y, Z) = E(\omega_1, X, Y, 0) = E(\omega_2, X, Y, Z)$.

L'intégration du système (I.26) conduit alors à l'expression de l'intensité générée à ω_0 [5] :

$$I(\omega_0, X, Y, Z = L) = 2\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \frac{\left(\frac{\pi \chi_{eff}^{(2)} L}{\lambda_0}\right)^2}{n(\omega_0) n(\omega_1) n(\omega_2)} I(\omega_2, X, Y, Z = 0) I(\omega_1, X, Y, Z = 0) \sin c^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \tag{I.29}$$

Le paramètre Δk dépend des indices de réfraction. Ces indices dépendent des variables expérimentales que sont la température, la longueur d'onde ou l'angle définit par la direction de propagation, comme il l'a été expliqué en section I.2. En notant ces paramètres $\xi = \{\lambda, T, (\theta, \varphi)\}$, l'intensité générée dans un cristal de longueur L, décrite par l'équation (I.29) peut s'écrire :

$$I(\xi) \alpha \sin c^2 \left(\frac{\Delta k(\xi) L}{2} \right) \tag{I.30}$$

Ainsi, il est souhaitable qu'une étude expérimentale d'un processus non linéaire de conversion de fréquence débute par l'établissement de courbes dites « d'acceptance », où la dépendance de l'intensité générée est étudiée en fonction du paramètre à optimiser. Un exemple de la forme d'une telle courbe théorique est donné en Figure I.7. Il est à noter que le pic n'est pas forcément symétrique puisque l'argument du sinus cardinal est non linéaire en ξ. La largeur à 0,405 du maximum vaut $\delta\xi$. La grandeur $L\delta\xi$ étant constante, il en résulte que plus la longueur du cristal sera grande, plus la courbe obtenue sera étroite.

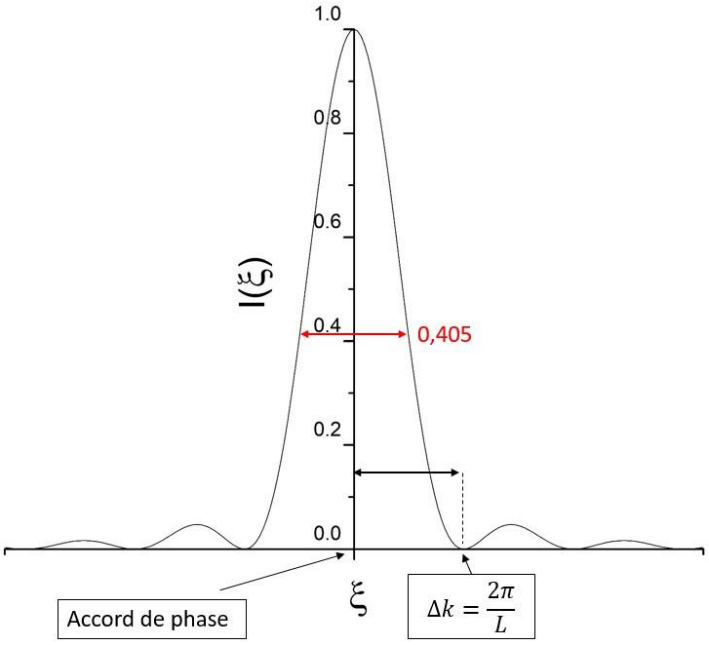


Figure I.7 : Courbe d'acceptance théorique, évolution de l'intensité normalisée en fonction d'un paramètre expérimental ξ.

L'évolution spatiale des champs en interaction est décrite par le système d'équation (I.26). Deux paramètres sont particulièrement importants. Il y a le coefficient effectif $\chi_{eff}^{(2)}$, qui dépend des polarisations des ondes mises en jeu, et des propriétés intrinsèques du cristal. Il y a aussi le désaccord de phase Δk, différence d'impulsion des photons, qui donne lieu à la condition d'accord de phase $\Delta k = 0$ pour laquelle l'efficacité de l'interaction est maximale.

I.3.2.4 Accord de phase par biréfringence

Le module du vecteur d'onde étant donnée par $k = \frac{n(\omega)\omega}{c}$, la condition d'accord de phase est obtenue à partir de l'équation (I.28) et s'écrit : $n(\omega_0)\omega_0 - n(\omega_1)\omega_1 - n(\omega_2)\omega_2 = 0$.

Pour illustrer le rôle que tient la biréfringence dans la réalisation de l'accord de phase au sein d'un milieu dispersif, considérons le cas d'une SHG dans un milieu isotrope, qui peut être un cristal cubique et non centrosymétrique comme GaAs par exemple. La condition d'accord de phase devient alors $n(\omega) = n(2\omega)$, ce qui est impossible à réaliser comme l'illustre bien la Figure I.8.

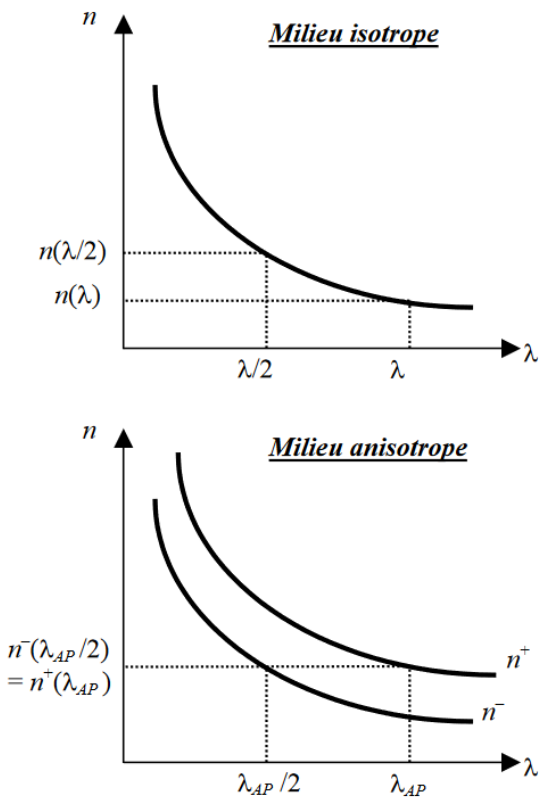


Figure I.8 : Comparaison des milieux isotropes et anisotropes concernant leur capacité à compenser la dispersion dans le cas d'une SHG de type I. Les indices n^- et n^+ sont les solutions de l'équation de Fresnel relatives à la direction d'accord de phase de coordonnées sphériques ($\theta_{AP}, \varphi_{AP}$).

La manière la plus « naturelle » d'atteindre l'accord de phase s'appuie donc sur le fait que la biréfringence des matériaux anisotropes peut, le cas échéant, compenser la dispersion du milieu, ce qui était le cas du quartz dans l'expérience pionnière de Franken [11].

L'accord de phase par biréfringence sera expliqué ici pour un milieu biaxe dont la surface des indices a été décrite en Figure I.3.

Lors de la conception d'une expérience, il est d'usage de commencer par choisir les configurations de polarisation des ondes afin de solliciter les nappes $n^{+}(\theta,\varphi)$ et $n^{-}(\theta,\varphi)$ de la surface des indices. Trois combinaisons d'accord de phase, appelées types, sont alors possibles pour les interactions quadratiques :

$$\begin{cases} I \ : \ n^{(-)}(\omega_0)\omega_0 - n^{(+)}(\omega_1)\omega_1 - n^{(+)}(\omega_2)\omega_2 = 0 \\ II \ : \ n^{(-)}(\omega_0)\omega_0 - n^{(+)}(\omega_1)\omega_1 - n^{(-)}(\omega_2)\omega_2 = 0 \\ III \ : \ n^{(-)}(\omega_0)\omega_0 - n^{(-)}(\omega_1)\omega_1 - n^{(+)}(\omega_2)\omega_2 = 0 \end{cases} \tag{I.31}$$

Pour une SHG de type I, la compensation de la dispersion est montrée en Figure I.8. L'intégration du système (I.26) sera ici effectuée dans le cas particulier de la SHG de type I ($\omega_1 = \omega_2 \equiv \omega$, $\omega_0 = 2\omega$) qui sera mise en œuvre expérimentalement dans les chapitres III et IV. Dans le cas général, les solutions sont données par des fonctions elliptiques de Jacobi [18,19] :

$$I(2\omega, X, Y, L) = I_{tot}(\omega, X, Y, 0) T^{2\omega} T^{\omega} \nu_b sn^2\left[\frac{\Gamma(X,Y)L}{\nu_b}, \nu_b^4\right] \tag{I.32}$$

où $I_{tot}(\omega, X, Y, 0) = 2I(\omega, X, Y, 0)$ est l'intensité de pompe totale, $T^{2\omega}$ et T^{ω} sont les coefficients de transmission de Fresnel en incidence normale, et

$$\frac{1}{\nu_b} = \frac{\Delta s}{4} + \left[1 + \left(\frac{\Delta s}{4}\right)^2\right]^{1/2} \quad \text{où } \Delta s = \frac{k^{2\omega} - k^{\omega}}{\Gamma}$$

avec

$$\Gamma(X,Y) = \frac{\omega \chi_{eff}^{(2)}(2\omega)}{2cn(2\omega)} (T^{\omega})^{1/2} \left|E_{tot}(\omega, X, Y, 0)\right| \tag{I.33}$$

Lorsque l'interaction est à l'accord de phase, soit $k^{2\omega} - k^{\omega} = 0$, alors il vient : $\Delta s = 0$, $\nu_b = 1$. La fonction sinus de Jacobi sn(x,1) tends alors vers la tangente hyperbolique *th(x)*. Dans ce cas, l'équation (I.32) s'écrit [5]:

$$I(2\omega, X, Y, L) = I(\omega, X, Y, 0) th^2 \left[\Gamma(X, Y) L\right] \tag{I.34}$$

$$\text{avec } \Gamma(X, Y) = \frac{\omega \chi_{eff}^{(2)}(2\omega)}{2cn(2\omega)} \left| E_{tot}(\omega, X, Y, 0) \right| \tag{I.35}$$

où $E(\omega, X, Y, 0)$ est le champ électrique fondamental initial, à Z = 0, et $I(\omega, X, Y, 0)$ l'intensité correspondante. X et Y sont les coordonnées transverses.

Lorsque l'interaction est peu efficace, la condition $\frac{\partial E(\omega, X, Y, Z)}{\partial Z} \simeq 0$ s'applique. C'est à nouveau l'approximation de la pompe non dépeuplée. Dans ce cas, la fonction tangente hyperbolique tend vers son argument, de sorte que l'intensité de second harmonique s'écrit [20]:

$$I(2\omega, X, Y, L) = \frac{2\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} \pi^2 Z^2 \left[\chi_{eff}^{(2)}(2\omega)\right]^2}{\left(\lambda_{2\omega}\right)^2 \left[n(\omega)\right]^2 n(2\omega)} \left(I(\omega, X, Y, 0)\right)^2 L^2 \tag{I.36}$$

Il apparaît dans ses conditions que plus le cristal est long, plus l'intensité du second harmonique sera grande. De même, plus le coefficient effectif est fort, plus l'interaction sera efficace.

L'accord de phase par biréfringence s'appuie sur le fait que les différents champs en interaction vont solliciter des indices de réfraction principaux différents. Une fois cette condition validée, l'intégration du système (I.26) est simplifiée. L'accord de phase peut aussi être réalisé autrement que grâce à la biréfringence. En effet, l'inversion périodique du signe de la susceptibilité électrique du second ordre le long de la direction de propagation des ondes en interaction peut conduire à mettre en phase la polarisation induite avec le champ rayonné. Il s'agit du *quasi-accord de phase* (QPM), qui fait l'objet de la partie suivante [12,21].

I.3.2.5 Quasi-accord de phase

Pour la plupart des milieux utilisés en optique non linéaire, le coefficient non linéaire le plus fort est le $\chi^{(2)}_{zzz}$. Même si le cristal considéré est biréfringent, il n'est pas possible d'exciter ce coefficient en situation d'accord de phase par biréfringence puisque seul l'indice n_z est sollicité pour les trois ondes en interaction.

Le quasi-accord de phase permet d'outrepasser cette limite et de s'affranchir des types I, II et III imposés par la biréfringence. Ceci est rendu possible grâce à une inversion périodique du signe de la susceptibilité électrique, qui a été technologiquement possible depuis les années 80 [21]. Le but est d'empêcher l'alternance du transfert d'énergie discuté en fin de section I.3.2.3 en remettant en phase la polarisation et le champ rayonné au bout de chaque longueur de cohérence [22]. Ce phénomène est illustré en Figure I.9.

Dans le cas simple d'une SHG, où les ondes se propagent selon la direction Z, avec une modulation périodique réalisée selon le même axe, l'équation d'évolution du champ à 2ω est donnée par la première ligne du système (I.26) :

$$\frac{\partial E(2\omega, X, Y, Z)}{\partial Z} = j\frac{\pi}{n(2\omega)\lambda_{2\omega}}\chi^{(2)}_{eff}(2\omega, Z)E^2\left(\omega, X, Y, 0\right).e^{-j\Delta kZ} \tag{I.37}$$

Pour un cristal de longueur L, l'intégration conduit à l'expression du champ à 2ω :

$$E_{2\omega}(L) = j\frac{\pi}{n(2\omega)\lambda_{2\omega}}E^2\left(\omega, X, Y, 0\right)\int_{-\infty}^{+\infty}\chi^{(2)}_{eff}(2\omega, Z)e^{-j\Delta kZ}dZ \tag{I.38}$$

Le champ obtenu en sortie du cristal est donc proportionnel à la transformée de Fourier de la susceptibilité électrique, où le coefficient effectif s'exprime en fonction de la modulation spatiale, notée g(Z), de son signe, soit [23] :

$$\chi^{(2)}_{eff}(2\omega, Z) = g(Z)\chi^{(2)}_{eff}(2\omega) \tag{I.39}$$

Dans le cas d'une modulation périodique du signe de la susceptibilité électronique de période Λ, l'expression de g(Z) peut être décrite selon :

$$g(Z)=\begin{cases} sign\left[\cos\left(\dfrac{2\pi Z}{\Lambda}\right)\right], & -L/2 \le Z \le L/2 \\ 0, \text{sinon} \end{cases} \tag{I.40}$$

Pour un cristal de longueur infinie, g(Z) peut se décomposer en série de Fourier et s'écrit :

$$g(Z)=\sum_{m=-\infty}^{m=+\infty} G_m e^{-j\frac{2\pi m}{\Lambda}Z} \tag{I.41}$$

où $G_m=\dfrac{2}{\pi m}\sin\left(\dfrac{\pi m}{2}\right)$ est non nul uniquement lorsque *m* est impair.

Le quasi-accord de phase est donc obtenu lorsque la condition $\Delta k=\dfrac{2\pi m}{\Lambda}$ est vérifiée [24]. En effet, en combinant les équations (I.41), (I.39) et (I.38), vient :

$$E(2\omega,X,Y,L)=j\frac{\pi}{n(2\omega)\lambda_{2\omega}}E^2\left(\omega,X,Y,0\right)\chi_{eff}^{(2)}(2\omega)\int_{-\infty}^{+\infty}\sum_{m=-\infty}^{m=+\infty}G_m e^{-j\frac{2\pi m}{\Lambda}Z}e^{-j\Delta kZ}dZ \tag{I.42}$$

Il apparaît clairement ici le fait que les termes pour lesquels l'accord de phase n'est pas obtenu vont être négligeables devant le terme en accord de phase. L'expression de l'intensité obtenue par intégration peut donc être approximée à :

$$I(2\omega,X,Y,L)\approx\frac{2\sqrt{\dfrac{\mu_0}{\varepsilon_0}}\pi^2 Z^2\left[\chi_{eff}^{(2)}(2\omega)\right]^2}{\left(\lambda_{2\omega}\right)^2\left[n(\omega)\right]^2 n(2\omega)}\left|G_m\right|^2\left(I(\omega,X,Y,0)\right)^2 L^2 \tag{I.43}$$

Par comparaison avec l'expression obtenue en accord de phase par biréfringence donnée en eq. (I.36), il apparait que l'intensité générée est réduite d'un facteur $\left|G_m\right|^2$, c'est la seule différence. Ce facteur vaut au maximum $4/\pi^2$, ce qui correspond au cas où $m=1$ qui est le premier ordre de la série de Fourier. Cette configuration sera donc privilégiée dans les choix qui seront à faire. Le gain en rendement de conversion est finalement obtenu en prenant en compte le fait que le

plus fort coefficient non linéaire peut être sollicité. Par exemple, dans le cas de KTP, $\chi_{33}^{(2)} \approx 4\chi_{24}^{(2)}$, le rendement est donc amélioré d'un facteur proche de 2,5.

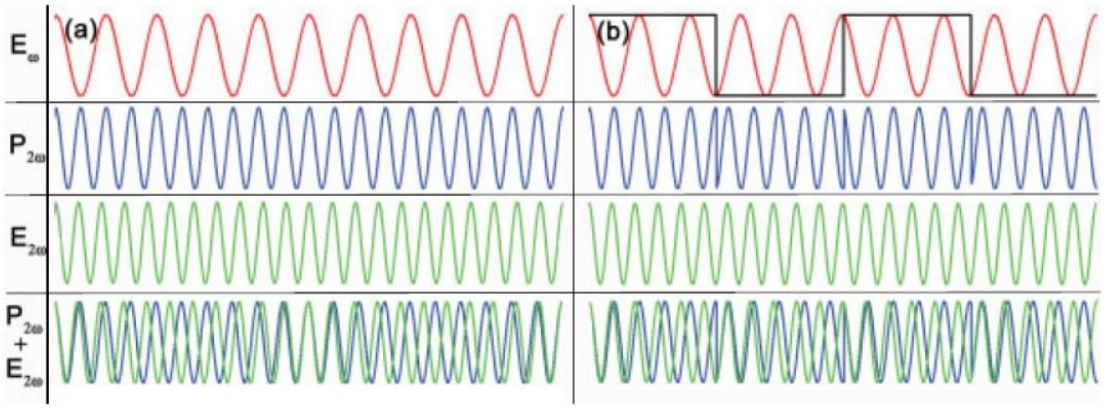


Figure I.9 : Champ pompe Eω, Polarisation induite P2ω, Champ rayonné E2ω au sein du cristal dans deux conditions différentes : (a) Cristal homogène pour lequel la polarisation induite n'est pas en phase avec le champ rayonné ; (b) Cristal à domaines ferroélectriques périodiquement inversés pour lequel la polarisation est ramenée en phase avec le champ rayonné.

L'évolution de l'intensité générée en fonction de la distance parcourue suivant les conditions d'accord de phase est résumé en Figure I.10.

Le quasi-accord de phase est donc une solution permettant d'éviter les contraintes inhérentes aux cristaux classiques et d'obtenir des interactions efficaces sans limitation des configurations de polarisation, ce qui permet par exemple de propager les ondes selon les axes principaux pour lesquels la double réfraction est nulle tout en excitant le plus fort coefficient du tenseur de susceptibilité électrique de second ordre.

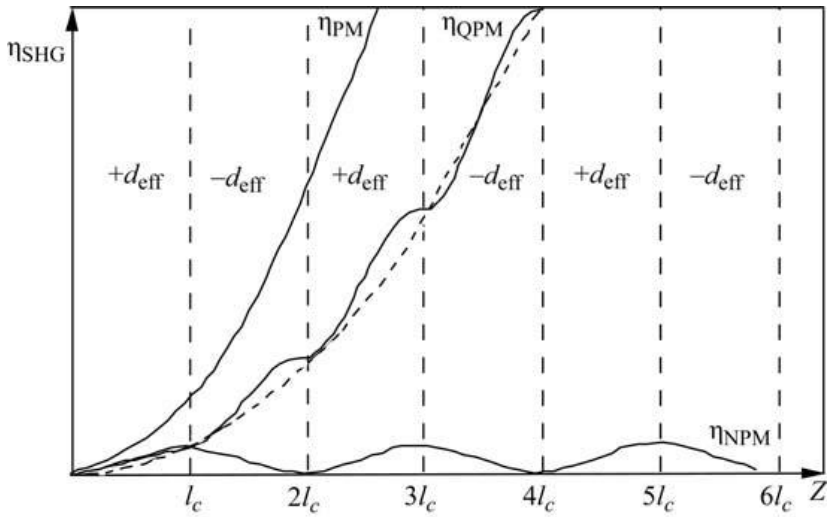


Figure I.10: Rendement de conversion de SHG en fonction de la distance parcourue dans le cristal, à l'accord de phase (PM), dans le cas d'un quasi-accord de phase (QPM), hors accord de phase (NPM) Tiré de [5].

Les processus quadratiques nécessitent donc une combinaison vectorielle des champs faisant intervenir des coefficients du tenseur susceptibilité électrique de second ordre non nuls. De plus, afin d'optimiser le rendement de conversion, l'accord de phase doit être atteint. Deux manières de le réaliser ont été présentées. L'accord de phase par biréfringence qui sollicite les propriétés intrinsèques du cristal et le quasi-accord de phase qui lui nécessite une ingénierie spécifique. Le cadre théorique associé sera élargi aux interactions du troisième ordre dans la partie suivante.

I.3.3 Interactions du troisième ordre

La dépendance de la polarisation non linéaire étant cette fois si cubique en $\vec{E}$, ces interactions sont aussi nommées « processus cubiques ». Moins efficaces que leurs homologues quadratiques, ils constituent cependant un vaste sujet de recherche et d'applications potentielles en information quantique. La Génération de Triplets de Photons, sujet de cette étude, s'inscrit dans ce cadre. Le modèle théorique associé au processus inverse, la génération de troisième harmonique, sera également développé dans cette partie.

I.3.3.1 Symétries et propriétés du cristal

Les considérations de symétrie développées au sein de la section I.3.2.1 sont toujours valables concernant la susceptibilité électrique non linéaire d'ordre 3. Ce tenseur étant de rang 4, il possède 81 coefficients non-nuls et indépendants dans le cas général. Dans le domaine de transparence du milieu non linéaire considéré, les symétries ABDP et Kleinmann associées au principe de Neumman réduisent le nombre de coefficients indépendants non nuls. Ils sont au nombre de 6 dans le cas de KTP, soit [5]:

$$\begin{cases} \chi^{(3)}_{xxxx} \\ \chi^{(3)}_{xxzz} = \chi^{(3)}_{xzxz} = \chi^{(3)}_{xzzx} = \chi^{(3)}_{zxxz} = \chi^{(3)}_{zxzx} = \chi^{(3)}_{zzxx} \\ \chi^{(3)}_{xxyy} = \chi^{(3)}_{xyxy} = \chi^{(3)}_{xyyx} = \chi^{(3)}_{yxxy} = \chi^{(3)}_{yxyx} = \chi^{(3)}_{yyxx} \\ \chi^{(3)}_{yyyy} \\ \chi^{(3)}_{yyzz} = \chi^{(3)}_{yzyz} = \chi^{(3)}_{yzzy} = \chi^{(3)}_{zyyz} = \chi^{(3)}_{zyzy} = \chi^{(3)}_{zzyy} \\ \chi^{(3)}_{zzzz} \end{cases} \tag{I.44}$$

Il est important de remarquer ici que le quasi-accord de phase n'est pas réalisable à l'ordre 3 pour le cristal de KTP. En effet, l'inversion des domaines ferroélectriques s'opère par une rotation de la structure cristallographique autour de l'axe $\overrightarrow{Ox}$ du cristal, de sorte que les axes

$\overrightarrow{Oy}$ et $\overrightarrow{Oz}$ changent de sens [6]. Ainsi, seuls les coefficients non linéaires présentant une série impaire d'indices cartésiens y ou z verront leur signe changer. Or pour KTP, tous les coefficients possèdent une combinaison paire de ces deux indices. C'est le cas en particulier de $\chi^{(3)}_{zzzz}$ qui est le coefficient de plus forte amplitude et que l'on souhaiterait vouloir utiliser dans un tel contexte. L'accord de phase par biréfringence est donc la seule alternative possible.

Compte tenu des relations d'égalité précédentes, il est une nouvelle fois possible d'alléger l'écriture en employant une notation contractée où les termes $\chi^{(3)}_{ijkl}$ sont écrits $\chi^{(3)}_{\mu m}$, de manière analogue à ce qui a été précédemment montré pour $\chi^{(2)}_{ijk}$. La convention utilisée est résumée en Tableau I.4.

	$\chi^{(3)}_{\mu m}$
p	
q	xxx → 1
	yyy → 2
	zzz → 3
	zzy=zyz=yzz → 4
	zyy=yzy=yyz → 5
	zzx=zxz=xzz → 6
	xxz=xzx=zxx → 7
	yyx=yxy=xyy → 8
	xxy=xyx=yxx → 9
	zyx=zxy=yzx=yxz=xzy=xyz → 0

Tableau I.4 : Convention de la notation contractée des indices des termes des tenseurs susceptibilité électrique non linéaire d'ordre 3.

Le modèle de Lorenz conduit une nouvelle fois aux relations de Miller, qui lient les éléments des tenseurs de susceptibilité électrique non linéaire aux éléments du tenseur linéaire [15], soit :

$$\chi^{(3)}_{ijkl}(\omega_0 = \omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3) = \delta^{(3)}_{ijkl}\chi^{(1)}_{ii}(\omega_0)\chi^{(1)}_{jj}(\omega_1)\chi^{(1)}_{kk}(\omega_2)\chi^{(1)}_{ll}(\omega_2) \qquad \text{(I.45)}$$

où $\delta_{ijkl}{}^{(3)}$ est l'indice de Miller de troisième ordre, indépendant de la pulsation.

A l'instar de ce qui a été fait à partir de l'équation (I.21) dans le cas du tenseur $\chi^{(2)}$, l'équation (I.45) conduit à :

$$\chi^{(3)}_{ijkl}(3\omega_a = \omega_a + \omega_a + \omega_a) = \chi^{(3)}_{ijkl}(3\omega_b = \omega_b + \omega_b + \omega_b)\frac{\left[n_i^2(2\omega_a)-1\right]\left[n_j^2(\omega_a)-1\right]\left[n_k^2(\omega_a)-1\right]\left[n_l^2(\omega_a)-1\right]}{\left[n_i^2(2\omega_b)-1\right]\left[n_j^2(\omega_b)-1\right]\left[n_k^2(\omega_b)-1\right]\left[n_l^2(\omega_b)-1\right]} \qquad \text{(I.46)}$$

Ainsi par exemple, la mesure du coefficient $\chi_{24}^{(3)}(\lambda_{3\omega_b} = 539nm) = 14,6.10^{-22} m^2.V^{-2}$ par une expérience de génération de tierce harmonique [25] nous permettra d'accéder à toutes les valeurs que prendra ce coefficient dans le domaine de transparence de KTP.

Les interactions du troisième ordre faisant appel aux éléments $\chi_{\mu m}^{(3)}$ du tenseur susceptibilité électrique sont décrites ci-après.

I.3.3.2 Processus non linéaires du troisième ordre

De manière analogue à la description des processus quadratiques, le modèle corpusculaire sera utilisé dans cette partie.

Le couplage à 4 ondes est soumis à deux expressions possibles de la conservation de l'énergie [26] :

$$\hbar\omega_0 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 + \hbar\omega_3 \tag{I.47}$$

Ou

$$\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 = \hbar\omega_3 + \hbar\omega_4 \tag{I.48}$$

Le premier schéma, noté A, rends compte des interactions cubiques qui interviendront dans ce manuscrit, à savoir :

- la somme de fréquences, fusion de trois photons dont le cas dégénéré est la génération de troisième harmonique (THG) ;
- la fluorescence paramétrique, qui est la scission spontanée d'un photon en trois, correspondant à la génération spontanée de triplets de photons (TPG);
- la différence de fréquences, cette interaction pouvant aussi être vue aussi comme une scission stimulée par un ou deux photons [6].

Le second schéma, noté B, correspond au processus appelé couramment « mélange à 4 ondes ». Il peut être interprété comme la fusion de deux photons d'énergie $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$, suivie de la scission en deux photons d'énergies respectives $\hbar\omega_3$ et $\hbar\omega_4$. Suivant les configurations, ce schéma est celui des diffusions Raman et Brillouin, de l'absorption à deux photons et de l'effet Kerr optique [27]. Ce dernier a pour effet la modification de l'indice de réfraction pour de fortes intensités, typiquement de l'ordre de grandeur de la dizaine de GW.cm^{-2}.

Les diagrammes photoniques de la Figure I.11 illustrent ces différents cas. La modélisation théorique de l'évolution des champs mis en jeu sera développée dans la partie à venir.

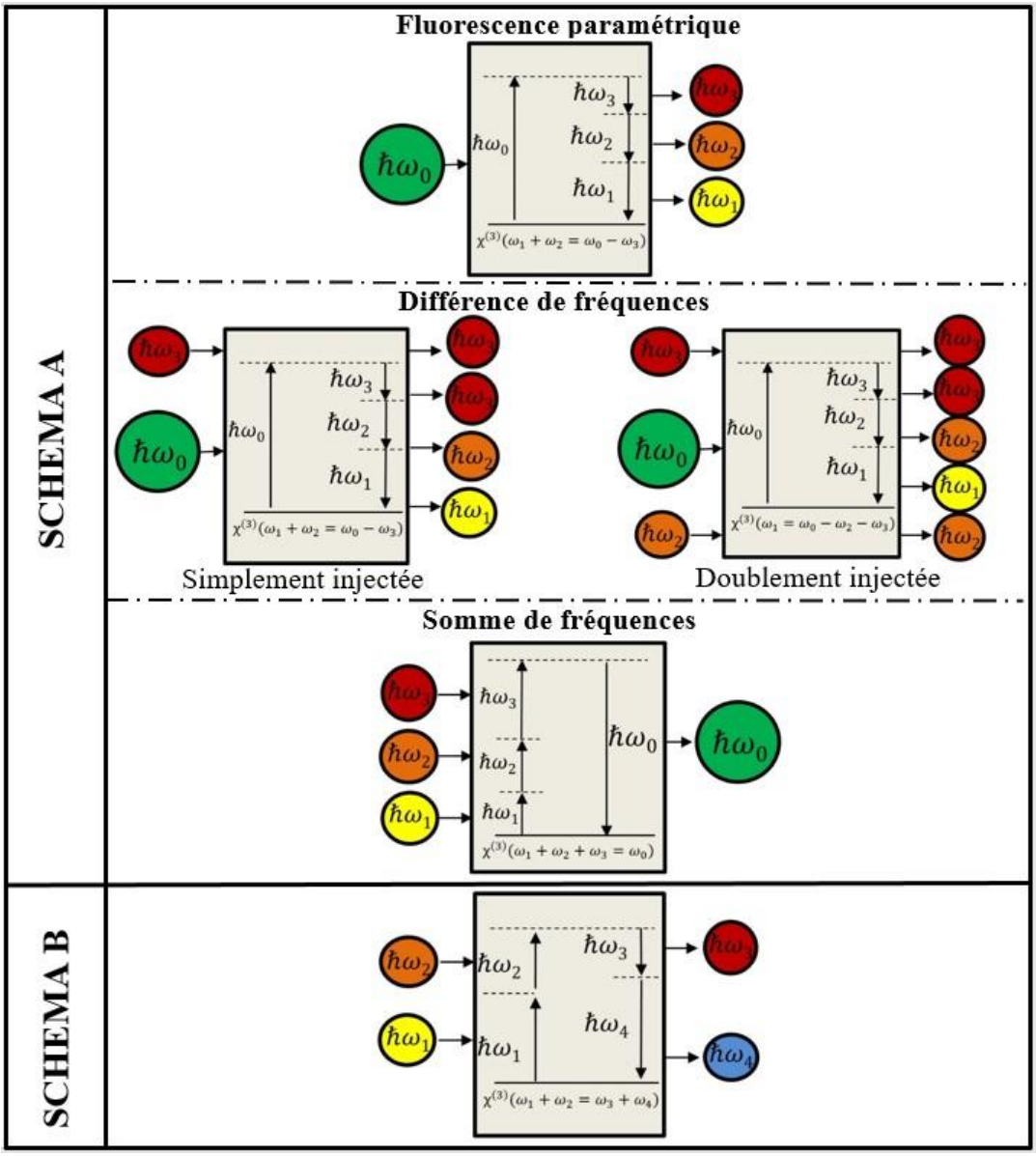


Figure I.11 : Diagrammes photoniques des différentes interactions optique non linéaires cubiques possibles. Le trait plein représente le niveau d'énergie fondamentale de la matière, les traits pointillés représentent les niveaux d'énergie du champ électro-magnétique [6].

I.3.3.3 Equations de propagation des champs

L'équation de propagation est obtenue similairement à celle de l'ordre 2 pour chaque champ de pulsation ω_i mis en jeu au sein des interactions cubiques :

$$\overrightarrow{rot}\left(\overrightarrow{rot}\left(\vec{E}(\omega_i)\right)\right)+\mu_0\varepsilon_0\varepsilon_r(\omega_i)\frac{\partial^2\vec{E}(\omega_i)}{\partial t^2}=-\mu_0\frac{\partial^2\vec{P}^{(3)}(\omega_i)}{\partial t^2} \tag{I.49}$$

Dans le cas du schéma A, l'intégration de ces équations de propagation, sous couvert des mêmes approximations que pour le système (I.26), conduit au système suivant d'équation couplées des amplitudes complexes des champs électriques [28] :

$$\begin{cases}\dfrac{\partial E(\omega_0)}{\partial Z}=j.\dfrac{\pi}{n(\omega_0)\lambda_0\cos^2\left(\rho(\omega_0)\right)}.\chi_{eff}^{(3)}(\omega_0).E(\omega_1).E(\omega_2).E(\omega_3)e^{-j\Delta kZ}\\ \dfrac{\partial E(\omega_1)}{\partial Z}=j.\dfrac{\pi}{n(\omega_1)\lambda_0\cos^2\left(\rho(\omega_1)\right)}.\chi_{eff}^{(3)}(\omega_1).E(\omega_0).E^*(\omega_2).E^*(\omega_3)e^{+j\Delta kZ}\\ \dfrac{\partial E(\omega_2)}{\partial Z}=j.\dfrac{\pi}{n(\omega_2)\lambda_0\cos^2\left(\rho(\omega_2)\right)}.\chi_{eff}^{(3)}(\omega_2).E(\omega_0).E^*(\omega_1).E^*(\omega_3)e^{+j\Delta kZ}\\ \dfrac{\partial E(\omega_3)}{\partial Z}=j.\dfrac{\pi}{n(\omega_3)\lambda_0\cos^2\left(\rho(\omega_3)\right)}.\chi_{eff}^{(3)}(\omega_3).E(\omega_0).E^*(\omega_1).E^*(\omega_2)e^{+j\Delta kZ}\end{cases} \tag{I.50}$$

Le coefficient effectif cubique est donné par :

$$\chi_{eff}^{(3)}=\chi^{(3)}(\omega_0=\omega_1+\omega_2+\omega_3)::\vec{e_0}\otimes\vec{e_1}\otimes\vec{e_2}\otimes\vec{e_3} \tag{I.51}$$

Le désaccord de phase s'écrit ici :

$$\Delta k=k_0-k_1-k_2-k_3 \tag{I.52}$$

Dans le cas de l'expérience historique de génération de triplets de 2004, au faisceau de pompe à $\boldsymbol{\omega_0}$ sont ajoutés deux faisceaux de stimulation à $\boldsymbol{\omega_2}$ et $\boldsymbol{\omega_3}$. Cela correspond à $\left|E\left(\omega_{i=2,3},Z=0\right)\right|\neq 0$ et $\left|E\left(\omega_1,Z=0\right)\right|=0$ [29].

Hors accord de phase et dans le cas de l'approximation de la pompe non dépeuplée appliquée à la fois à la pompe et aux faisceaux de stimulation, soit $\left(\frac{\partial E(\omega_{i\neq 1})}{\partial Z} \simeq 0\right)$, l'intensité générée à $\boldsymbol{\omega_1}$ s'écrit :

$$I(\omega_1, Z=L) = \frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \frac{\left(\frac{2\pi\chi_{eff}^{(3)} L}{\lambda_1}\right)^2}{n(\omega_0)n(\omega_1)n(\omega_2)n(\omega_3)} I(\omega_0, Z=0) I(\omega_2, Z=0) I(\omega_3, Z=0) \sin c^2\left(\frac{\Delta kL}{2}\right) \tag{I.53}$$

Il est retrouvé ici une dépendance en sinus cardinal carré de $\Delta kL/2$, comme c'était le cas pour les interactions quadratiques. Les intensités générées par des processus d'ordre 3 hors accord de phases auront donc une dépendance décrite en Figure I.7. L'étude de l'acceptance sera donc également pertinente pour les interactions cubiques, une étape cruciale.

L'accord de phase de toutes les interactions d'ordre 3 dans le cadre de cette étude sera réalisé par biréfringence. C'est le sujet de la partie suivante.

I.3.3.4 Accord de phase par biréfringence

L'accord de phase par biréfringence sera uniquement détaillé pour des cristaux biaxes dont fait partie KTP. De même qu'à l'ordre 2, le choix des configurations de polarisation des ondes est imposé par les conservations de l'énergie et de l'impulsion. Les nappes de la surface des indices $n^+(\theta,\varphi)$ et $n^-(\theta,\varphi)$ seront sollicitées dans plusieurs combinaisons possibles. Il en existe sept types, soit pour le schéma A [28] :

$$\begin{cases} I\ :\ n^{(-)}(\omega_0)\omega_0 - n^{(+)}(\omega_1)\omega_1 - n^{(+)}(\omega_2)\omega_2 - n^{(+)}(\omega_3)\omega_3 = 0 \\ II\ :\ n^{(-)}(\omega_0)\omega_0 - n^{(+)}(\omega_1)\omega_1 - n^{(+)}(\omega_2)\omega_2 - n^{(-)}(\omega_3)\omega_3 = 0 \\ III\ :\ n^{(-)}(\omega_0)\omega_0 - n^{(+)}(\omega_1)\omega_1 - n^{(-)}(\omega_2)\omega_2 - n^{(+)}(\omega_3)\omega_3 = 0 \\ IV\ :\ n^{(-)}(\omega_0)\omega_0 - n^{(-)}(\omega_1)\omega_1 - n^{(+)}(\omega_2)\omega_2 - n^{(+)}(\omega_3)\omega_3 = 0 \\ V\ :\ n^{(-)}(\omega_0)\omega_0 - n^{(+)}(\omega_1)\omega_1 - n^{(-)}(\omega_2)\omega_2 - n^{(-)}(\omega_3)\omega_3 = 0 \\ VI\ :\ n^{(-)}(\omega_0)\omega_0 - n^{(-)}(\omega_1)\omega_1 - n^{(+)}(\omega_2)\omega_2 - n^{(-)}(\omega_3)\omega_3 = 0 \\ VII\ :\ n^{(-)}(\omega_0)\omega_0 - n^{(-)}(\omega_1)\omega_1 - n^{(-)}(\omega_2)\omega_2 - n^{(+)}(\omega_3)\omega_3 = 0 \end{cases} \tag{I.54}$$

L'intégration du système d'équations (I.50) fait appel dans le cas général aux fonctions elliptiques de Jacobi . Dans le cas où $\left|E\left(\omega_{i=2,3},Z=0\right)\right|\neq 0$ et $\left|E\left(\omega_1,Z=0\right)\right|=0$, avec $\Delta k=0$, l'intégration du système d'équations couplées pour un cristal de longueur L conduit à [30] :

$$\begin{cases} I\left(\omega_0,Z=L\right)=\dfrac{I\left(\omega_0,Z=0\right)\left(\gamma_{31}+\gamma_{01}\right).cn^2\left(a_1L\middle|1-m_1\right)}{\Gamma} \\ I\left(\omega_1,Z=L\right)=\dfrac{\gamma_{31}\gamma_{01}sn^2\left(a_1L\middle|1-m_1\right)}{\Gamma} \\ I\left(\omega_{2,3},Z=L\right)=\dfrac{I\left(\omega_{2,3},Z=0\right)\left(\gamma_{31}+\gamma_{01}\right).\left(\beta_{2,3}sn^2\left(a_1L\middle|1-m_1\right)+cn^2\left(a_1L\middle|1-m_1\right)\right)}{\Gamma} \end{cases} \tag{I.55}$$

où $sn\left(u\middle|m\right)$ et $cn\left(u\middle|m\right)$ sont les fonctions sinus et cosinus de Jacobi,

et

$$\Gamma=\gamma_{31}m_1sn^2\left(a_1L\middle|1-m_1\right)+\left(\gamma_{31}+\gamma_{01}\right)cn^2\left(a_1L\middle|1-m_1\right)$$

$$\gamma_{ij}=\frac{\lambda_i}{\lambda_j}I\left(\omega_i,Z=0\right)+I\left(\omega_j,Z=0\right)$$

$$\beta_2=1,\beta_3=m_1=\frac{\gamma_{21}\left(\gamma_{31}+\gamma_{01}\right)}{\gamma_{31}\left(\gamma_{21}+\gamma_{01}\right)}$$

$$a_1=\frac{\Lambda_1}{2}\sqrt{\gamma_{31}\left(\gamma_{21}+\gamma_{01}\right)}$$

avec

$$\Lambda_1=\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}}\frac{4\pi\chi_{eff}^{(3)}(\omega_1)}{\sqrt{n\left(\omega_0\right)+n\left(\omega_1\right)+n\left(\omega_2\right)+n\left(\omega_3\right)}}\sqrt{\frac{\lambda_1}{\lambda_0+\lambda_2+\lambda_3}}$$

L'évolution des éclairements est donc régie par la périodicité des fonctions elliptiques de Jacobi, et ce même à l'accord de phase. Cette évolution est calculée dans le cas $3\omega^Y\rightarrow\omega^Z+\omega^Z+\omega^Y$, avec λ_ω=1620nm, $I\left(\omega_0=3\omega,Z=0\right)=21GW/cm^2$,

$I\left(\omega_2=\omega,Z=0\right)=I\left(\omega_3=\omega,Z=0\right)=1GW/cm^2$ et $I\left(\omega_1=\omega,Z=0\right)=0$. Le résultat est présenté en Figure I .12.

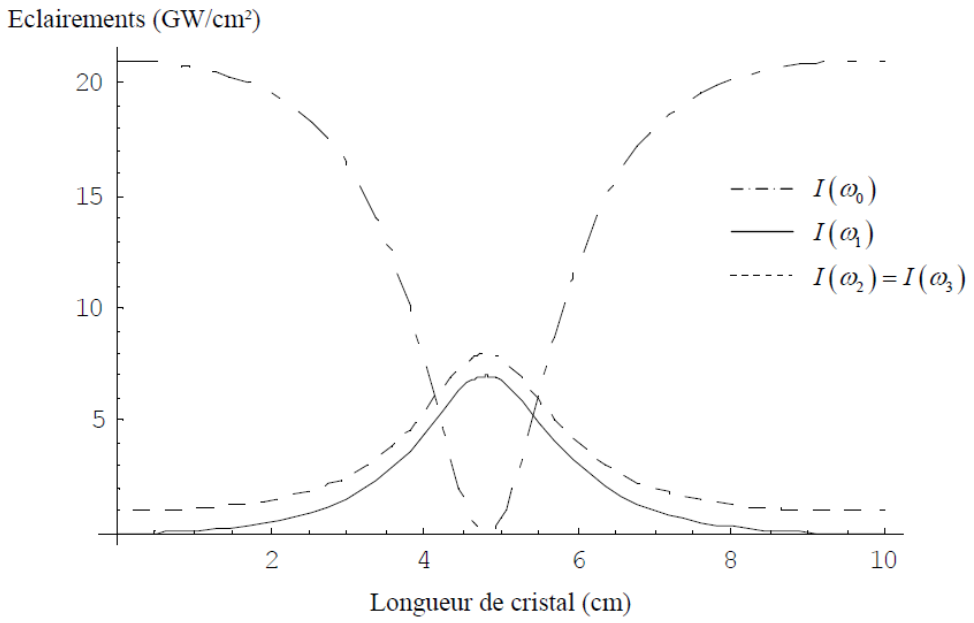


Figure I.12 : Evolutions longitudinales des intensités calculées dans le cas d'une différence de fréquences doublement injectée, totalement dégénérée en pulsation, en accord de phase [30].

L'intégration du système interviendra également pour le processus inverse, la THG. Sera explicité ici le cas d'une THG de type II selon l'axe Y du cristal : $\omega^Z + \omega^Z + \omega^X \rightarrow 3\omega^X$ (où les exposants désignent les axes selon lesquels les photons sont polarisés), à l'accord de phase.

Dans le cas d'une interaction en pompe dépeuplée, l'intensité générée à 3ω s'exprime comme [31] :

$$I(3\omega, L) = \frac{\Lambda I^2(\omega,0)L^2}{4+\left[\Lambda I(\omega,0)L\right]^2} \tag{I.56}$$

où

$$\Lambda = \frac{4\pi}{\sqrt{3}}\sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}}\frac{\chi_{eff}^{(3)}(3\omega)}{\lambda}\frac{1}{n^x(\omega\sqrt{n^z(3\omega)n^z(\omega)}}$$

Pour une interaction moins efficace, l'approximation de la pompe non-dépeuplée s'applique, ce qui donne pour l'énergie générée [32] :

$$\varepsilon_{3\omega}(L) = \frac{16\pi^4}{9\sqrt{3}}\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}\frac{\left(T_\omega^Z\right)^2 T_\omega^X T_{3\omega}^X}{\lambda_\omega^2}\frac{\left(\chi_{eff}^{(3)}(3\omega)\right)^2}{n^z(\omega)n^x(\omega)n^x(3\omega)}\frac{L^2}{\left(\frac{\tau_\omega}{2}W_\omega^2\left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2}\right)^2}\varepsilon_\omega^3 \tag{I.57}$$

où ε_ω est l'énergie de pompe en Z=0.

Les processus cubiques sont donc décrits dans le régime classique de manière similaire aux processus quadratiques. Les mêmes considérations de symétrie s'appliquent, et permettent dans le cas de KTP de réduire le nombre d'éléments non nuls et indépendants du tenseur d'ordre 3 de 81 à 6.

Le désaccord de phase Δk et le coefficient effectif $\chi_{eff}^{(3)}$ sont les deux paramètres les plus importants des équations d'évolution des champs. L'intégration des équations couplées permet de prédire les intensités et les énergies générées en sortie de cristal.

Des exemples de résultat de l'intégration du système qui seront utilisés dans le cadre de cette thèse ont été présentés. À la fois pour la génération de triplets de photons et le processus inverse, la génération de troisième harmonique.

Les différentes équations qui ont été décrites font intervenir les intensités ou les énergies des champs. Les liens entre ces deux grandeurs et l'évolution spatiale de la répartition énergétique des faisceaux seront détaillés dans le cadre de la théorie Gaussienne. C'est le sujet de la partie suivante.

I.4 Faisceaux gaussiens

[…] ; les charmes enchanteurs de cette sublime science ne se décèlent dans toute leur beauté qu'à ceux qui ont le courage de l'approfondir.
Carl Friedrich Gauss, *Lettre à Sophie Germain*

Les rendements de conversion de fréquence en optique non linéaire augmentent avec l'intensité des faisceaux pompes car les photons doivent être présents au même instant et au même endroit pour interagir. Pour se faire, il convient de diminuer la section des faisceaux, par exemple en les focalisant avec une lentille. En revanche, le faisceau va diverger après avoir convergé, ce qui diminuera la longueur d'interaction et donc l'efficacité du processus non linéaire. Il y aura donc un compromis à trouver.

La longueur de Rayleigh Z_R, sur laquelle la divergence du faisceau peut être considérée comme négligeable, et donc sur laquelle l'onde peut être considérée comme plane, s'exprime par [33] :

$$Z_R = \frac{\pi W_{0K}^2}{M_K^2 \lambda} n, \;\; K = X, Y \tag{I.58}$$

où W_0 est le rayon du faisceau au col et M^2 est le facteur de qualité du faisceau, valant 1 pour un faisceau idéal, supérieur à 1 en situation réelle. Les profils transverses d'intensité d'un tel faisceau sont donnés en Figure I.13, et leur dépendance est explicitée dans la partie suivante.

L'intensité est donc inversement proportionnelle au carré de W_0. Dans le même temps, la longueur sur laquelle l'interaction va pouvoir avoir lieu sans divergence est proportionnelle au carré de W_0. Le confinement de la lumière au sein de structures comme les fibres optiques ou tout guide d'onde en général apporte une solution à ce dilemme en confinant le rayonnement électromagnétique tout en évitant la divergence.

Les faisceaux utilisés dans le travail de la thèse sont assimilables à des faisceaux gaussiens, à la fois spatialement et temporellement. Sera développé ici le modèle théorique associé à ce type d'onde électromagnétique. L'amplitude complexe du champ électrique d'une telle onde se propageant selon l'axe Z du repère du laboratoire s'écrit :

$$E(X,Y,Z,t) = E_0(t) \frac{W_{0X} W_{OY}}{W_X(Z) W_Y(Z)} e^{-\frac{X^2}{W_X^2(X)}} . e^{-\frac{Y^2}{W_Y^2(X)}} . e^{j(kZ-\omega t+\phi)} \tag{I.59}$$

où ϕ est la phase initiale, k le module du vecteur d'onde et ω la pulsation. Si les axes Y et X sont définis comme les directions des rayons maximaux et minimaux, alors $W_X(Z)$ et $W_Y(Z)$ sont les rayons à 1/e du maximum d'amplitude du champ électrique à la cote de propagation Z.

La variation longitudinale de ces rayons est donnée par [34] :

$$W_{X,Y}(Z) = W_{0X,Y}\sqrt{\left(1+\left(\frac{\lambda Z M_{X,Y}^2}{\pi n W_{0X,Y}^2}\right)^2\right)} \tag{I.60}$$

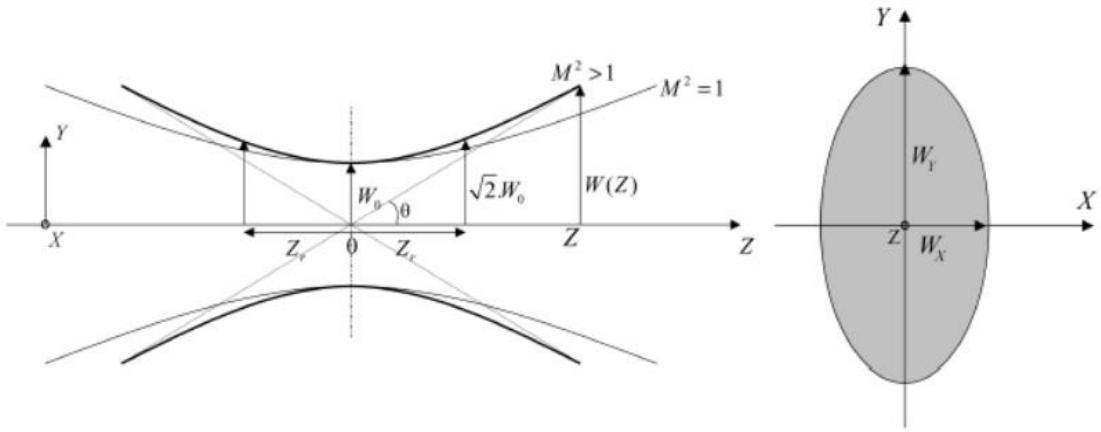


Figure I.13 : (a) Rayon du faisceau gaussien en fonction de la cote Z, (b) exemple de coupe transverse des profils selon les axes X et Y du repère du laboratoire.

L'intensité d'un faisceau gaussien en champ lointain est obtenu *via* les équations (I.5) et (I.58) , soit:

$$I(X,Y,Z,t) = \frac{1}{2}n\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}\left|E\left(X,Y,Z,t\right)\right|^2 = I(0,0,Z,t)e^{-2\frac{X^2}{W_X^2(Z)}}e^{-2\frac{Y^2}{W_Y^2(Z)}} \tag{I.61}$$

où :

$$I(0,0,Z,t) = \frac{1}{2}n\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}\left|E_0(t)\right|^2\frac{W_{0X}W_{0Y}}{W_X(Z)W_Y(Z)} \tag{I.62}$$

$I(0,0,Z,t)$ est l'intensité au centre du faisceau, W_{0X} et W_{0Y} étant les rayons minimaux en Z=0.

La plupart des appareils de mesure qui seront utilisés dans cette étude donnent accès à la valeur de l'énergie par impulsion. Pour y accéder, il convient de définir en premier lieu la puissance instantanée $P(Z,t)$ par intégration de l'équation (I.62) sur la section transverse, ce qui donne :

$$P(Z,t) = \int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} I(X,Y,Z,t)dXdY \tag{I.63}$$

Avec l'expression de l'intensité donnée en équation (I.61), l'intégration donne alors :

$$P(Z,t) = \frac{\pi}{2} W_X(Z) W_Y(Z) I(0,0,Z,t) \tag{I.64}$$

En combinant cette équation avec l'expression de I(0,0,Z,t) de l'équation (I.62), vient :

$$P(t) = \frac{\pi}{2} W_{0X} W_{0Y} I_0(t) = \frac{\pi}{4} n \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} \left|E_0(t)\right|^2 \tag{I.65}$$

Par ailleurs, pour un faisceau gaussien, l'évolution temporelle de l'intensité est donnée par :

$$I_0(t) = I_0 e^{-2\frac{t^2}{(\tau/2)^2}} \tag{I.66}$$

où I_0 est l'intensité au centre de l'impulsion en t=0 et τ est la durée totale de l'impulsion, prise à 1/e² de l'intensité maximale. Finalement, l'énergie par impulsion est obtenue par intégration temporelle de l'équation (I.65) compte tenu de l'équation (I.66) :

$$\varepsilon = \int_{-\infty}^{+\infty} P(t)dt = \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \frac{\tau}{2} W_{0X} W_{0Y} I_0 \tag{I.67}$$

Cette équation permettra de faire le lien entre l'énergie mesurée et l'intensité qui interviendra dans les calculs. Il est à noter que lors d'une interaction non linéaire, les caractéristiques des faisceaux générés sont reliées à celles du faisceau pompe. Compte tenu de l'équation (I.43), il apparait que dans le cas de la SHG, l'intensité de second harmonique est proportionnelle au

carré de l'intensité incidente du faisceau pompe. Ainsi, le rayon $W_{2\omega}(Z)$ et la durée d'impulsion $\tau_{2\omega}$ du faisceau de second harmonique sont reliées à ceux du faisceau pompe $W_{\omega}(Z)$ et τ_{ω} respectivement par [5] :

$$\begin{cases} \tau_{2\omega} = \tau_{\omega} / \sqrt{2} \\ W_{2\omega}(Z) = W_{\omega}(Z) / \sqrt{2} \end{cases} \tag{I.68}$$

De même dans le cas de la THG, où l'intensité de troisième harmonique est proportionnelle au cube de l'intensité incidente, il vient :

$$\begin{cases} \tau_{3\omega} = \tau_{\omega} / \sqrt{3} \\ W_{3\omega}(Z) = W_{\omega}(Z) / \sqrt{3} \end{cases} \tag{I.69}$$

τ_{ω} et $\tau_{3\omega}$ sont les durées d'impulsion des faisceaux du fondamental et du troisième harmonique respectivement. $W_{\omega}(Z)$ et $W_{3\omega}(Z)$ sont les rayons au col des faisceaux du fondamental et du troisième harmonique respectivement.

L'ensemble de ces outils d'optique cristalline et d'optique non linéaire constituent le corpus théorique nécessaire au travail de la thèse. Pour la complétude de ce chapitre qui est d'ordre théorique, la partie finale suivante donne brièvement des notions de base en optique quantique, avec un calcul approché des intensités de paires et triplets de photons générés dans un cristal à propriétés optiques non linéaires.

I.5 Optique Quantique

Je pense que, transformés en frémissements de photons, nos actes iront dans le cosmos où les planètes les regarderont défiler […]
Olga Tokarczuk, *Sur les Ossements des morts*

La modélisation quantique générale de la génération de triplets de photons avec ou sans stimulation a été effectuée dans le cadre de la thèse d'Audrey Dot il y a plusieurs années [35,36]. Basé sur l'utilisation de l'opérateur moment non linéaire, le modèle développé permet de calculer les densités spectrales de chaque mode. Il sera évoqué dans le chapitre II.

Ici, la modélisation porte sur les cas de fluorescences paramétriques d'ordres 2 et 3 en utilisant la règle d'or de Fermi. L'utilisation de ce modèle a été présenté par Koch *et al.* pour les paires de photons [37], et adapté aux triplets de photons par Bencheikh *et al.* [38].

Le calcul dans le cas d'une génération de paires dégénérées en énergie, $\omega_0 \rightarrow \omega + \omega$ avec $\omega_0 = \frac{2\pi c}{\lambda_0} = 2\omega$, se base sur la probabilité de transition de l'état $|0,0\rangle$ ne comptant aucun photon de pulsation ω vers l'état $|\vec{k},\vec{k}\rangle$. D'après la règle d'or de Fermi, cette probabilité s'écrit :

$$W = \frac{2\pi}{\hbar}\left|\left\langle \vec{k},\vec{k}\left|\hat{H}_i\right|0,0\right\rangle\right|^2 \rho \tag{I.70}$$

où $\hat{H}_i$ est l'Hamiltonien d'interaction décrivant le processus non linéaire quadratique, ρ étant la densité d'états générées.

Le calcul donne alors la puissance générée pour un photon de la paire [36], soit :

$$P = \frac{128\hbar\pi^4 c}{\varepsilon_0}\left(\chi^{(2)}\right)^2 \frac{1}{n^2\left(\omega_0\right)} P_0 L \frac{\lambda_0}{\lambda^7} d\lambda \tag{I.71}$$

où P_0 est la puissance incidente de pompe, et $d\lambda$ est l'intervalle spectral dans lequel les paires sont générées.

Le calcul de la puissance générée dans l'angle solide $d\Omega$ autour du vecteur d'onde et dans l'intervalle spectral $d\lambda$ pour l'un des modes de triplets de photons est de même basé sur la règle d'or de Fermi, et donne dans le cas dégénéré en pulsation [38] :

$$P = \frac{36\hbar^2\pi^5c^2}{\varepsilon_0^2}\left(\chi^{(3)}\right)^2\frac{1}{n\left(\omega_0\right)}P_0L\frac{d\Omega d\lambda}{\lambda^{10}} \tag{I.72}$$

Ces calculs, par le biais de l'utilisation de la règle d'or de Fermi, permettent d'approximer les puissances générées pour les paires et les triplets de photons.

II État de l'Art

In science, we often have predecessors much further back in time than we think a priori.
Louis Néel, *Nobel Prize Banquet speech* (*1970).*

Ce chapitre a pour objectif de contextualiser les travaux présentés et de décrire les motivations derrière ce travail. Une brève synthèse de ce qui a été accompli dans le cas des photons jumeaux sera d'abord présenté. Ensuite, les avancées des recherches sur la génération de triplets de photons aussi bien du point de vue théorique qu'expérimental seront résumées. L'intérêt de la génération de triplets de photons est profondément fondamental [39]. Il sera toutefois évoqué, notamment à travers le prisme des études de l'intrication de photons jumeaux, que pléthore d'applications sont à attendre.

II.1 Photons jumeaux

What more could I say, I wouldn't be here today
If the old school didn't pave the way

Tupac, *Old school*

II.1.1 Notion d'intrication

L'intrication est l'une des propriétés spécifiquement décrites par la mécanique quantique. Elle correspond à la propriété qu'ont les particules quantiques d'être décrites par la même fonction d'onde, peu importe la distance les séparant.

Mais le phénomène d'intrication a d'abord été présenté comme un paradoxe, sujet à débat dans l'article fondateur d'Einstein, Podolsky et Rosen [40]. En effet, le fait que deux particules soient décrites par la même fonction d'onde implique qu'il existe des corrélations entre les mesures effectuées sur les deux systèmes pris séparément. Ce qui signifie qu'une information se serait transmise à une vitesse plus grande que celle de la lumière. Ceci est en contradiction avec la causalité relativiste. La conclusion proposée dans le cadre du paradoxe EPR est que la mécanique quantique serait incomplète et qu'il existerait des variables locales cachées. C'est J.S. Bell qui, presque 30 ans plus tard, présenta un critère sous la forme d'inégalités. Sous couvert de résultats de mesures de corrélations violant ces inégalités, il est alors devenu possible de conclure sur l'inexistence de variables cachées locales par l'expérience [41]. Par la suite, de nombreuses équipes tenteront de mettre en œuvre de telles expériences. C'est le cas de S.J. Freedman et al., par exemple [42]. La première qui est admise comme laissant suffisamment

peu de lacunes expérimentales est celle de l'équipe d'A. Aspect [43], encore plus convaincante l'année suivante [44]. Les paires de photons étaient alors générées par cascade radiative d'atomes de Calcium. La génération paramétrique de paires de photons dans des cristaux non linéaires a permis ensuite d'atteindre des productions de photons plus élevées et de reproduire ces résultats précurseurs sur des distances d'une dizaine de kilomètres via des fibres optiques [45].

II.1.2 Applications associées

L'information intriquée est devenue l'un des fers de lance de ce qui est considéré comme la seconde révolution quantique [46]. Les deux applications qui sont communément admises comme points de départs de cette révolution datent de 1994 [47,48]. D'autres protocoles d'information quantique, notamment de téléportation sont aussi à noter parmi les applications possibles [49]. Les deux applications « originelles » reposent sur une utilisation ingénieuse de l'intrication. L'algorithme de Shor [47] est basé sur la manipulation d'états intriqués par des portes logiques quantiques, ce qui permet de réduire drastiquement les temps de calcul de factorisation en facteur premier. Très récemment, Amico et al. ont utilisé l'ordinateur quantique développé par IBM pour démontrer l'utilisation de l'algorithme de Shor pour factoriser des entiers allant jusqu'à 35 [50]. Tapster et al. ont aussi démontré la violation des inégalités de Bell sur plusieurs kilomètres. Sans faire autant consensus que l'étude de Tittel et al., elle aura entrouvert le champ d'application en cryptographie quantique.

En effet, la cryptographie classique, sur laquelle repose l'ensemble des échanges sécurisés, existe sous deux formes. La première est dite asymétrique, et concerne la majorité des communications informatiques standards par exemple. Deux interlocuteurs - Alice et Bob - ne possèdent, dans ce cas, pas la même clé. La sécurité du protocole le plus utilisé actuellement est basée sur la factorisation entière en nombres premiers [51]. La fragilité du protocole tient au fait que la factorisation est conjecturée « difficile », c'est-à-dire avec une durée de calcul augmentant exponentiellement avec la longueur en bits de l'entier à factoriser, mais cela n'a pas encore été prouvé. Ceci laisse donc la possibilité de l'existence d'un algorithme qui permettrait d'outrepasser toute la sécurité de ces protocoles. L'algorithme de Shor est un exemple d'avancées technologiques qui mettent en péril cette sécurité.

Dans le cas où Alice et Bob possèdent la même clé, les protocoles symétriques classiques peuvent toutefois être mis en place. Alice crypte son message avec sa clé, et Bob utilise la même clé pour le déchiffrer. Ces protocoles symétriques sont les seuls prouvés dans la théorie de l'information comme étant sécurisés [52]. Cependant, deux conditions doivent être respectées pour en assurer la sécurité. Il faut qu'Alice et Bob possèdent la même clé et qu'ils ne l'utilisent qu'une seule fois. Les algorithmes d'échanges commerciaux actuels utilisent donc dans un premier temps un protocole asymétrique pour échanger non pas des messages mais des clés de chiffrement identiques, puis un protocole symétrique unique basé sur cette clé. Par conséquent, puisque les protocoles asymétriques classiques n'ont pas été prouvés inviolables, la cryptographie quantique se révèlerait comme un candidat sérieux uniquement si les avancées dans le domaine algorithmique rendaient les protocoles asymétriques classiques caduques [53].

L'idée d'utiliser des photons jumeaux intriqués en cryptographie quantique a été proposée par A.K. Ekert en 1992 [54]. C'est finalement en 2000 que trois groupes ont publié leurs résultats dans le même numéro de la même revue [55–57].

Le principe est basé sur le fait qu'en mécanique quantique, une mesure perturbe forcément le système. Ainsi, une tierce personne - Eve – ne peut intercepter une partie du message sans que l'une des deux parties s'en aperçoive. Les protocoles asymétriques quantiques permettent donc de s'échanger des clés de chiffrement de manière sécurisée. Un exemple de système basé sur l'intrication des photons en polarisation est donné en Figure II.1. Une paire est générée par le biais d'un cristal non linéaire, par exemple un cristal de BBO, siège d'une florescence paramétrique d'ordre 2 présentée en Figure I.6 [55,56]. Les deux photons de la paire n'ont pas la même polarisation ce qui est exploité. Et plus les inégalités de Bell sont violées de manière incontestable, « meilleur » sera le dispositif de cryptage [53,58].

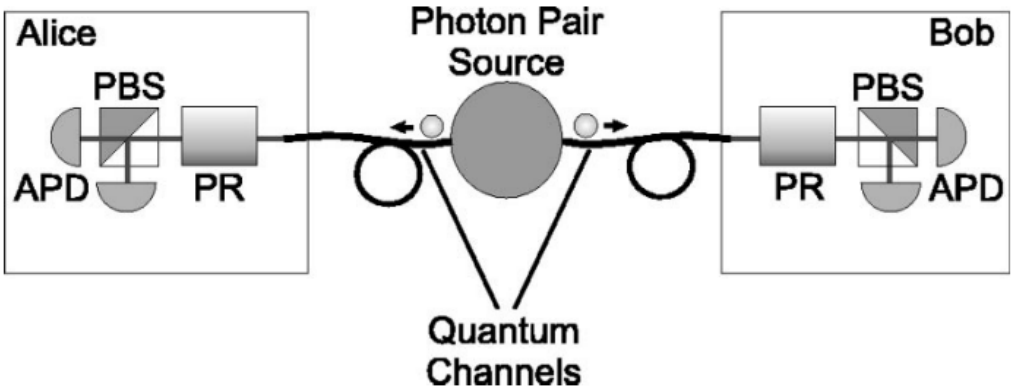


Figure II.1 : Schéma d'un système de cryptographie quantique exploitant l'intrication en polarisation de paires de photons. PR : *active polarization rotator*; PBS : *polarizing beamsplitter*; APD: *avalanche photodiode*. Tiré de [53].

Si de tels systèmes ont permis de démontrer que la nature est non locale, les violations des inégalités de Bell obtenues ne sont pas suffisantes pour réaliser des échanges en pratique, avec notamment des temps de transmission encore trop longs [53]. Les équipes du GAP de Genève ont montré que le problème est de nature fondamentale. Même si chaque paire générée est détectée, la violation des inégalités sur laquelle est basée la sécurité est limitée de manière intrinsèque par la présence du vide et des évènements multi-photons [59]. Des solutions alternatives à la SPDC (*Spontaneous Parametric Down Conversion*) d'ordre deux ont été montrées comme ayant de meilleurs résultats vis-à-vis de la violation des inégalités de Bell. Notamment l'utilisation du diamant, pour lequel sont introduits dans la maille des atomes d'azotes qui jouent le rôle de centre colorés (*Nitrogen-vacancy centers*) [60,61]. Toutefois, la mise en œuvre expérimentale est complexe et les taux de répétitions obtenus ne sont pas suffisants. De plus, tous les protocoles de distribution de clés basés sur de tels dispositifs conditionnent l'existence de l'état intriqué à sa propre mesure. La mesure étant destructive en mécanique quantique, la manipulation des états *a posteriori* est donc prohibée dans ce contexte.

Les protocoles de cryptographie quantique sont donc limités intrinsèquement [59]. La génération de triplets par interaction paramétrique spontanée d'ordre trois est une génération directe d'états à trois particules intriquées (voir Figure I.11). Dans le cadre de protocoles quantiques, détecter un des photons a pour effet de projeter la paire restante dans un état à deux particules d'intrication maximale permettant de dépasser les limites liées à la génération de paires par interaction quadratique évoquée dans [59]. Ce sont les protocoles dits de paires annoncées [62,63]. L'un des buts de cette étude est donc de créer une source idéale de paires, utilisée pour des protocoles de cryptographie quantique asymétriques non conditionnés par la mesure.

La prochaine partie rappellera les travaux qui ont étés menés jusqu'ici sur la TPG, les propriétés attendues de ces états à 3 particules pouvant être intriquées et les alternatives à la génération directe.

II.2 Triplets de photons

II.2.1 Introduction

Puisque la génération paramétrique de photons jumeaux leur confère des propriétés de corrélations par le biais de l'intrication [57], il est raisonnable de considérer que la fluorescence paramétrique d'ordre 3 devrait conduire à l'obtention de triplets de photons aux propriétés quantiques spécifiques. Cependant cette fluorescence paramétrique $\hbar\omega_0 \rightarrow \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 + \hbar\omega_3$ est très peu efficace ce qui explique pourquoi elle n'a pas encore été rapportée [38]. Le calcul de la puissance générée dans l'angle solide $d\Omega = 10^{-5} str$ autour du vecteur d'onde et dans l'intervalle spectral $d\lambda = 50nm$ donné en (I.60) pour l'un des photons du triplet dégénéré a été réalisé par Kamel Bencheick *et al.* en utilisant la règle d'or de Fermi [38] : pour un cristal de non-linéarité cubique prise comme $\chi^{(3)} = 10^{-21} m^2 V^{-2}$, de longueur L=25mm pompé à $\lambda_p = 532nm$ avec une puissance de pompe $P_0 = 37MW$, le calcul donne une puissance de triplets générés de $10^{-17} W$.

Bien que cette méthode de calcul repose sur de coûteuses approximations, elle donne le ton concernant la difficulté de l'entreprise, cette difficulté étant principalement due à la faiblesse des coefficients $\chi^{(3)}$. De plus, l'idée est de générer les triplets dans la bande télécom, autour de 1550-1650nm, compte tenu des applications envisagées en information quantique. Mais les détecteurs disponibles à ces longueurs d'onde n'étaient pas suffisamment efficaces pour une telle entreprise dans les années 2000.

Un autre facteur limitant l'efficacité de la SPDC d'ordre trois est le fait que les longueurs d'ondes sont générées sur une plage spectrale très grande. En effet, les longueurs d'onde sont déterminées à la fois par la conservation de l'énergie et celle du moment, mais cela correspond à trois inconnues pour deux équations [28]. Une alternative consistant à stimuler la TPG sur un ou deux des trois modes permet pourtant de surmonter cette difficulté.

II.2.2 Historique des travaux menés par le groupe sur la génération de triplets de photons

Ces travaux ont été principalement menés dans le cadre de quatre thèses entre 2002 et 2014 [31,36,64,65].

II.2.2.1 Conception du générateur de triplets de photons originel

La première TPG $\hbar\omega_0 \rightarrow \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 + \hbar\omega_3$ a donc été réalisée par Julien Douady et Benoît Boulanger en 2004 en stimulant sur deux des trois modes à générer, comme présentée en Figure I.11 : un unique faisceau de stimulation à $\omega_2 = \omega_3$ a été utilisé, avec une lame demi-onde pour répartir les photons de stimulation en polarisation sur deux polarisations différentes. La signature de l'état obtenu s'est donc faite par la mesure de l'énergie générée à ω_1.

Un cristal de KTP taillé selon l'axe X a été utilisé. Les propriétés optiques non linéaires de second et troisième ordres de ce cristal sont très bien connues [9,25], et son seuil de dommage optique est très élevé [66], d'où le choix de ce cristal. Néanmoins, il est non centrosymétrique, ce qui signifie que la TPG peut être polluée par des contributions du second ordre. En effet, une cascade de processus $\chi^{(2)}$ peut conduire à l'obtention de photons équivalents en longueur d'onde à ceux du triplet. Les trois schémas (a,b,c) de cascades quadratiques pouvant polluer la TPG ont été identifiées comme [64,67] :

$$\begin{cases} \chi^{(2)}(\omega_a = \omega_2 + \omega_3) : \chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_0 - \omega_a) \\ \chi^{(2)}(\omega_b = \omega_0 - \omega_2) : \chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_b - \omega_3) \\ \chi^{(2)}(\omega_c = \omega_0 - \omega_3) : \chi^{(2)}(\omega_1 = \omega_c - \omega_2) \end{cases} \tag{II.1}$$

Afin de remédier à ce problème, une étude a été menée et a conclu que le choix de la direction de propagation X, mais aussi la direction Y, permet d'obtenir des contributions quadratiques négligeables, car inférieures à 0,5% [67]. Ces deux axes permettent également d'obtenir des angles de double réfraction nuls d'après l'équation (I.14).

Le montage expérimental historique est présenté en Figure II.2. Le faisceau pompe utilisé était à $\lambda_0 = 532nm$, polarisé selon l'axe Y du cristal. Les faisceaux de stimulation étaient théoriquement à $\lambda_2 = \lambda_3 = 1681nm$ puisqu'il a été montré que l'accord de phase était possible dans cette configuration [29,64]. Les polarisations des photons de stimulation sont orthogonales afin de permettre l'accord de phase, ceci étant également un avantage expérimental pour la séparation des deux populations de photons. La longueur d'onde du faisceau généré est alors

attendue à $\lambda_1 = 1453nm$. Les valeurs expérimentales obtenues pour l'accord de phase étaient finalement :

$$\begin{cases} \lambda_2^{\exp} = \lambda_3^{\exp} = 1665nm \\ \lambda_1^{\exp} = 1474nm \end{cases} \quad \text{(II.2)}$$

.

Il est à noter qu'aucun photon aux pulsations $\omega_a, \omega_b, \omega_c$ intermédiaires du fait de cascades quadratiques (cf eq. (II.1)) n'a été mesuré aux longueurs d'onde correspondantes (λ_a=832,5 nm et $\lambda_b = \lambda_c$=781,8 nm) [30].

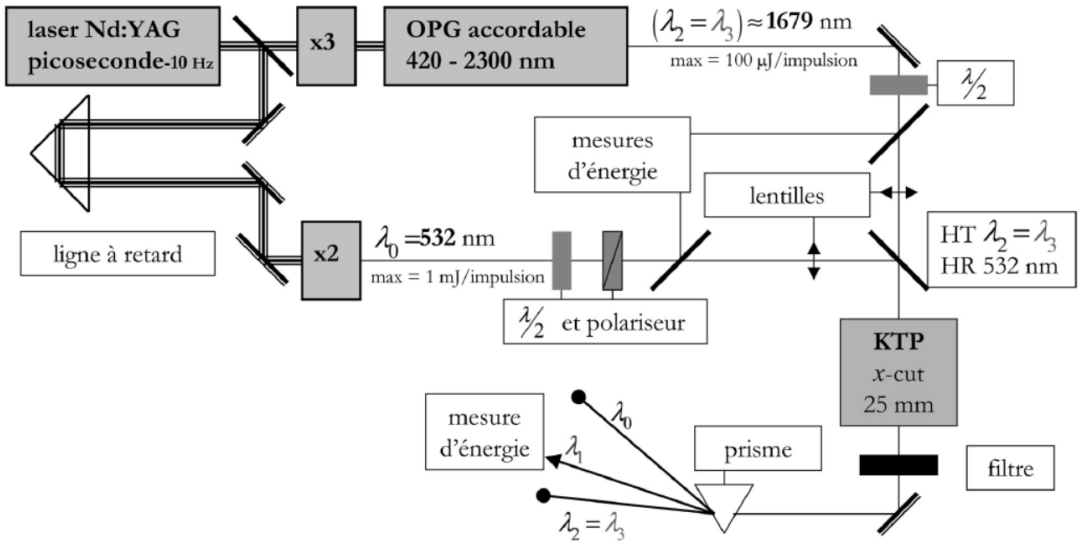


Figure II.2 : Montage expérimental utilisé pour la première génération de triplets de photons. Tiré de [64].

II.2.2.2 Développement des théories semi-classiques et quantiques de la génération de triplets de photon

L'établissement de la théorie optique non linéaire associée à l'expérience schématisée en Figure II.2 dans sa version optimisée a été réalisé par l'équipe [30]. Les résultats sont donnés en équation (I.55) et l'évolution théorique des intensités des champs en fonction de la longueur d'interaction dans les conditions initiales de l'expérience est donnée en Figure I.10. C'est un modèle basé sur la résolution du système général d'équations couplées (I.50) à l'accord de phase, faisant intervenir les relations de Manley-Rowe et les fonctions elliptiques de Jacobi.

Ce modèle classique a été mis à l'épreuve par une série d'expériences systématiques en régime bi-stimulé dans KTP [30]. Ont été confrontés notamment les résultats de mesure de l'énergie générée à ω_1 en fonction de la longueur du cristal (expérience notée A), de l'énergie de pompe (expérience B) et de l'énergie des faisceaux de stimulation (expérience C) [30,31]. Ces résultats sont rappelés en Figure II.3. A forte intensité de pompe, l'effet Kerr, qui est également une

interaction optique non linéaire du troisième ordre suivant le schéma B de la Figure I.11, a été identifié comme responsable de la perte d'accord de phase [68]. Le groupe a également développé le formalisme quantique associé à la TPG, dans l'approximation de faible interaction, équivalent quantique de l'approximation de la pompe non dépeuplée [35]. Ceci a été réalisé en considérant un modèle d'opérateur moment non linéaire qui avait été introduit antérieurement pour la modélisation de la fluorescence paramétrique du second ordre [69].

La résolution analytique dans le formalisme Hamiltonien des équations de propagation nécessaires à la modélisation des évolutions des champs triplets a ensuite été proposée dans le cadre de la thèse d'Audrey Dot [36]. Ces avancées ont permis de calculer les densités spectrales et le nombre de photons sur chaque mode de l'état triplet généré [35]. Ce travail a été réalisé dans tous les régimes de stimulation envisageables expérimentalement : la fluorescence paramétrique (pas de stimulation), le cas mono-injecté (stimulation sur un des trois modes) et la bi-injection (stimulation sur deux des trois modes). Le modèle quantique développé a, en partie, été validé par des expériences basées sur cette dernière configuration [68]. La courbe expérimentale du spectre généré est donnée en Figure II.4. Les *scenarii* de recombinaison des champs triplets dans le cadre d'expériences de mesures de corrélations ont également été décrits de manière théorique [36].

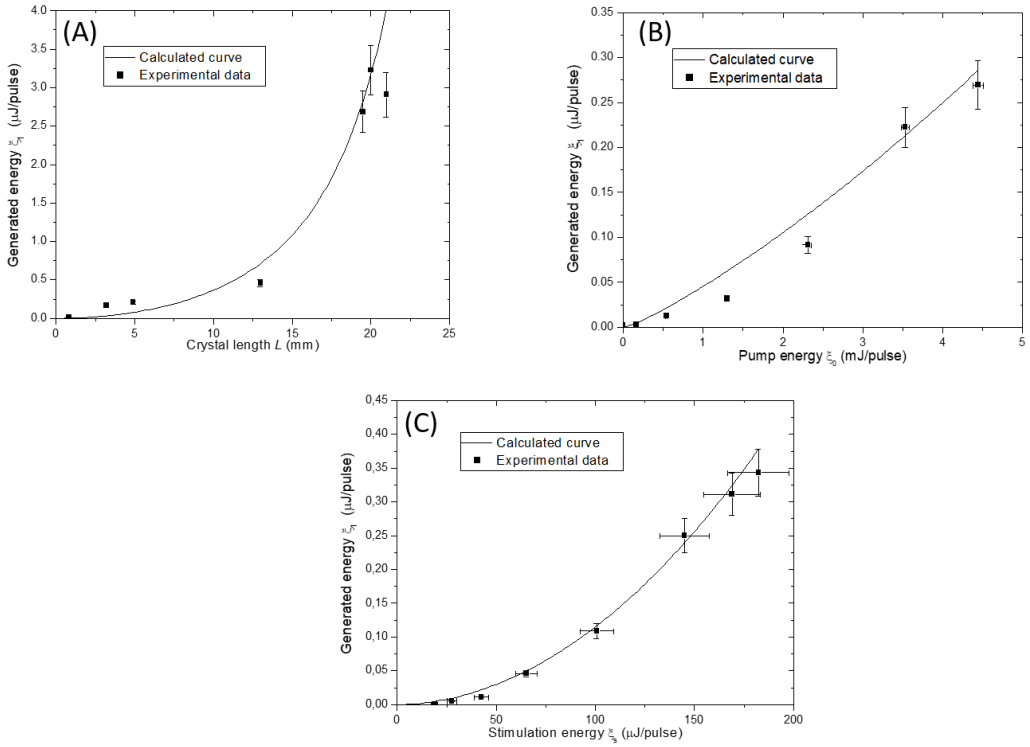


Figure II.3 : Résultats de mesures de l'énergie générée à ω_1 pour trois expériences de TPG bi-injectée dans KTP. Les résultats des calculs adaptés de l'équation (I.55) sont donnés en trait plein. Ceci valide le modèle semi-classique théorique de la TPG en accord de phase dans le régime de la pompe dépeuplée. Les longueurs d'onde sont celles données en eq. (II.2). (A) L'énergie de pompe et l'énergie de stimulation sont respectivement fixées à $\xi_0 = 4{,}5$mJ et $\xi_s = 182u$J. (B) L'énergie de stimulation et la longueur du cristal sont fixées à $\xi_s = 182$uJ et L=13mm. (C) L'énergie de pompe et la longueur du cristal sont fixées à $\xi_0 = 4{,}5$mJ et L=13mm. Tiré de [30].

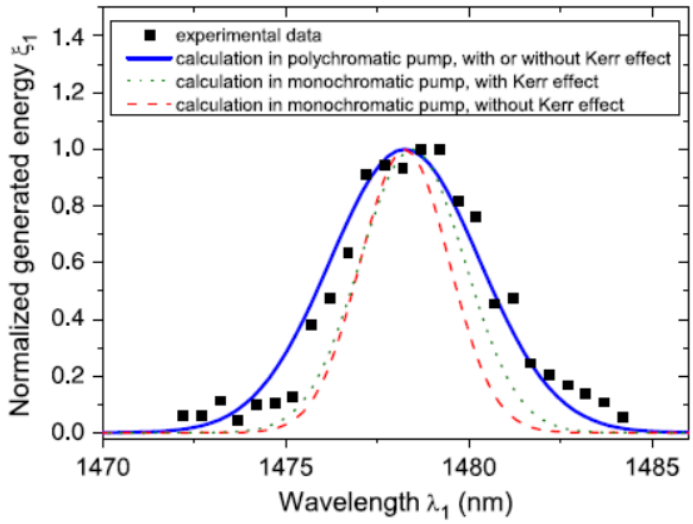


Figure II.4 : Comparaison entre le spectre généré à ω_1 lors de la TPG bi-injectée et les calculs réalisés à partir de la modélisation quantique [35]. L'énergie de pompe incidente est $\varepsilon_0 = 52uJ$ et l'énergie de stimulation est $(\varepsilon_2 + \varepsilon_2) = 68uJ$. En noir les points expérimentaux. En bleu la modélisation prenant en compte la polychromaticité de la pompe. En rouge la modélisation en pompe monochromatique et sans prendre en compte l'effet Kerr optique. En vert la modélisation monochromatique avec prise en compte de l'effet Kerr optique.

L'ensemble des outils théoriques permettant la modélisation semi-classique et quantique de la génération de triplets de photon directe par interaction non linéaire de troisième ordre a donc été établi par l'équipe, que ce soit dans le cas de la fluorescence paramétrique, de la mono- ou de la bi-injection. En revanche, du point du vue comparaison à l'expérience, seules les mesures en régime bi-injecté ont pu être menées. La prochaine partie décrira les propriétés attendues des états à 3 particules intriquées et les méthodes de caractérisation de ces propriétés.

II.2.3 Propriétés des états à 3 particules intriquées

Les états à 3 particules intriquées peuvent être dans l'état appelé GHZ, pour Greenberger, Horne et Zeilinger. Ils sont attendus comme plus riches d'un point de vue quantique que les états à 2 particules intriquées [70]. Mais ils peuvent également être dans des états dits W. Les états GHZ et W ne sont pas équivalents car il n'est pas possible de passer de l'un à l'autre par des opérations locales [71,72]. La différence tient au fait que les états W sont plus robustes dû au fait qu'une mesure sur l'un des photons triplets projette les deux autres dans un état intriqués, alors que les états GHZ sont plus fortement intriqués [71,72]. Ces différences ressortent bien dans les expressions de tels états données ci-dessous pour une intrication en polarisation :

$$|GHZ\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|HHH\rangle + |VVV\rangle\right) \tag{II.3}$$

$$|W\rangle = \frac{1}{\sqrt{3}}\left(|HHV\rangle + |HVH\rangle + |VHH\rangle\right) \tag{II.4}$$

où $|H\rangle$ *et* $|V\rangle$ correspondent respectivement aux polarisations horizontale et verticale.

Les propriétés de ces états peuvent notamment être caractérisées par la mesure de corrélations si les particules sont séparables, ou par tomographie quantique dans le cas totalement dégénéré, en polarisation et énergie.

II.2.3.1 Etude des corrélations et tomographie quantique

Les premiers calculs réalisés sur les corrélations entre les photons ont montré un comportement proche de la fluorescence paramétrique pour de très faibles énergies de stimulation. Mais dans les conditions expérimentales pour lesquelles les photons à ω_1 sont générés, les corrélations calculées ressortent comme « masquées » par l'injection et le comportement est alors prédit classique [36]. En revanche, une collaboration récente menée avec l'équipe de Kamel Bencheikh et Ariel Levenson a conduit à l'établissement de résultats théoriques allant dans le sens opposé. En effet, un critère ressemblant aux inégalités de Bell a été défini pour caractériser l'état d'intrication des photons triplets dans le régime des variables continues. Les calculs prédisent dans ce cas une intrication quantique plus forte dans le cas de la bi-injection que dans le cas de la mono-injection, alors que la fluorescence paramétrique ne permet pas d'obtenir une intrication suffisante pour exhiber un caractère quantique [73]. Même si ces résultats sont contre intuitifs, ils sont favorables du point de vue de la mise en œuvre expérimentale car pouvant être testé avec le générateur pionnier. Cette contradiction entre les modélisations est fascinante et relance le débat que seules les expériences permettent de conclure in fine.

Les techniques de tomographie quantique offrent également des méthodes de caractérisation de la cohérence des états quantiques. Lorsque le travail sur la TPG est réalisé dans le régime des variables continues, la fonction de Wigner est particulièrement intéressante pour décrire l'état quantique dans l'espace des phases. Comme il est possible de le faire habituellement avec la matrice densité ρ [74], puisqu'alors la base des valeurs propres est continue et de dimension infinie. Pour un système de matrice densité $\rho = |\varphi\rangle\langle\varphi|$, la fonction de Wigner s'écrit [75] :

$$W(p,q) = \frac{1}{2\pi}\int_{\mathbb{R}} dx e^{jpx} \left\langle q - \frac{x}{2} \middle| \hat{\rho} \middle| q + \frac{x}{2} \right\rangle \qquad \text{(II.5)}$$

avec q et p les quadratures du champ électrique, qui sont les parties respectivement réelle et imaginaire des amplitudes complexes des opérateurs création et annihilation [76]. La notion de distribution de « probabilité » est étendue à l'espace des phases $\{q, p\}$ par la fonction de Wigner. En effet, la « probabilité » de trouver le champ électrique en (q,p) dans l'intervalle $dqdp$ vaut $d^2P = W(q,p)dqdp$ de manière similaire aux densités de probabilité de la physique statistique. Toutefois, le principe d'incertitude pouvant donner lieu à des résultats négatifs, on

parle de « quasi-probabilité » [77]. Finalement, ce sont ces négativités qui sont la signature d'un état non classique, même s'il est difficile d'établir un lien entre l'amplitude de ces négativités et le degré de non-classicité.

Les techniques de détection homodyne permettent d'accéder expérimentalement aux quadratures et de reconstruire la fonction de Wigner [78]. Si la mesure donne une valeur négative, alors la non-classicité de l'état est démontrée. Les calculs théoriques ont été d'abord effectués dans le cas de la fluorescence paramétrique totalement dégénéré en pulsation $3\omega \rightarrow \omega + \omega + \omega$ par K. Banaszek et P.L. Knight [39]. Ils ont mis en évidence la forme en étoiles à 3 branches dans l'espace des phases de la fonction de Wigner qui prend des valeurs négatives. Ces négativités ne sont pas observées expérimentalement pour les photons jumeaux, la fonction exhibant un fort « *squeezing* » mais restant positive [79].

Puis le calcul de la fonction de Wigner dans le cas bi-injecté a été réalisé par K. Bencheick *et al.* en 2007 [38]. Si la représentation de Wigner n'exhibe pas de négativités, il est possible d'effectuer des mesures de corrélations puisque les triplets sont séparables en polarisation et en longueur d'onde dans ces conditions expérimentales (cf. section II.2.2.1). La distribution jointe de probabilité permet de calculer théoriquement ces corrélations. La forme en croix des représentations des distributions jointes de probabilités dans l'espace des quadratures révèle alors l'existence de corrélations quantiques. Un exemple des résultats obtenus est donné ci-dessous en Figure II.5.

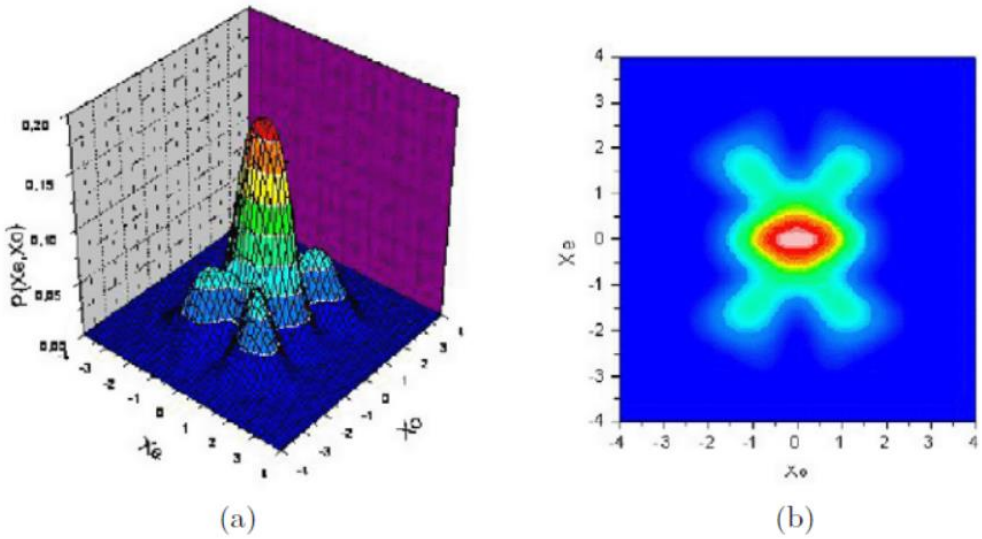


Figure II.5 : Distribution de la densité de probabilité jointe entre les photons triplets de polarisations orthogonales. (a) Représentation tridimensionnelle, (b) représentation en vue de dessus. Les figures sont tirées de [38].

II.2.3.2 Mesures de coïncidences

Les mesures de comptage de photons uniques sur plusieurs détecteurs en simultané permettent de remonter aux coïncidences temporelles. Les mesures de ces coïncidences sont une manière naturelle de sonder l'intrication entre photons. Le groupe d'Anton Zeilinger a expérimentalement intriqué deux paires de photons et montré que l'état obtenu exhibait une intrication GHZ en polarisation par reconstruction de la matrice densité [74]. Ils ont également mesuré les coïncidences sur 4 détecteurs et ont démontré une fois de plus l'intrication GHZ en polarisation [80,81]. Des études de coïncidences sur 3 détecteurs ont été également menées notamment par l'équipe de Harald Weinfurter dans le but de démontrer une intrication W en polarisation [82].

L'équipe de Thomas Jennewein a également utilisé les mesures de coïncidences sur 3 détecteurs afin d'accéder aux corrélations énergie-temps entre photons triplets générés par méthode indirecte dans le régime des variables continues [83,84]. Les états ainsi créés présentent des corrélations énergie-temps. Un histogramme de coïncidences obtenues entre les trois détecteurs lors de cette étude est présenté en Figure II.6. Il montre une forte corrélation entre les temps d'arrivée des photons. Ces mesures ont depuis été consolidées par le biais de mesure d'interférences [85].
Cette génération indirecte est une manière d'améliorer le rendement de conversion de la TPG. Les différentes méthodes qui permettent d'outrepasser les limites de la TPG dans le cristal massif de KTP sont résumées dans la partie suivante.

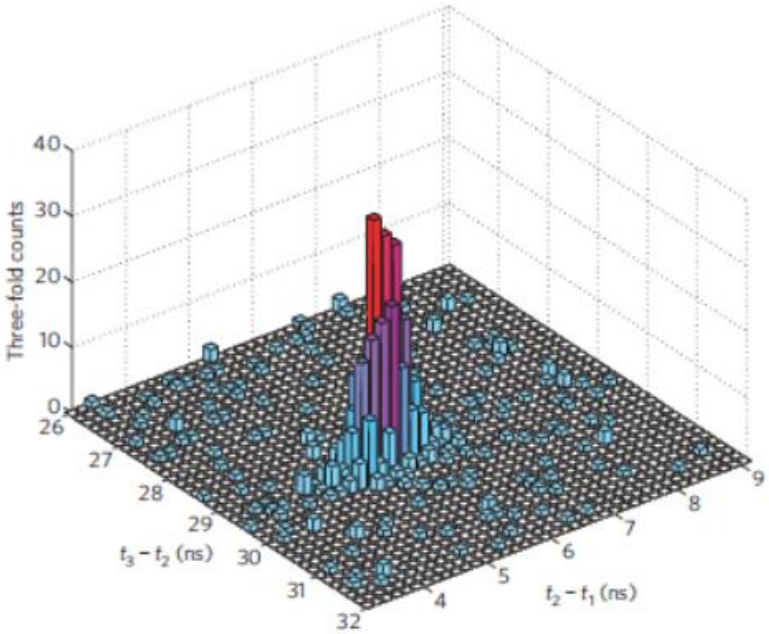


Figure II.6 : Histogramme 2D des résultats de mesures de coïncidences sur 3 détecteurs obtenues après intégration du signal sur 72h par l'équipe de Thomas Jennewein. Tiré de [84].

II.2.4 Alternatives à la génération directe dans des cristaux de KTP massifs

L'équipe de Thomas Jennewein a donc opté pour une TPG indirecte réalisée par une cascade de second ordre en quasi-accord de phase dans des cristaux à domaines ferroélectriques inversés périodiquement. Un cristal de PPKTP (pour « *periodically poled KTP* ») et un cristal de PPLN (pour « *periodically poled Lithium Niobate* ») sont utilisés pour la cascade de générations de paires successives. A partir d'un photon pompe, une première fluorescence paramétrique donne une paire de photon dans le cristal de PPKTP, puis l'un des deux photons de la paire est scindé en deux dans le cristal de PPLN. Les deux interactions successives sont en quasi accord de phase, et chaque cristal a un schéma d'inversion des domaines conçu pour compenser les désaccords de phase comme présenté dans la section I.3.2.5. Le montage expérimental est présenté en Figure II.7.

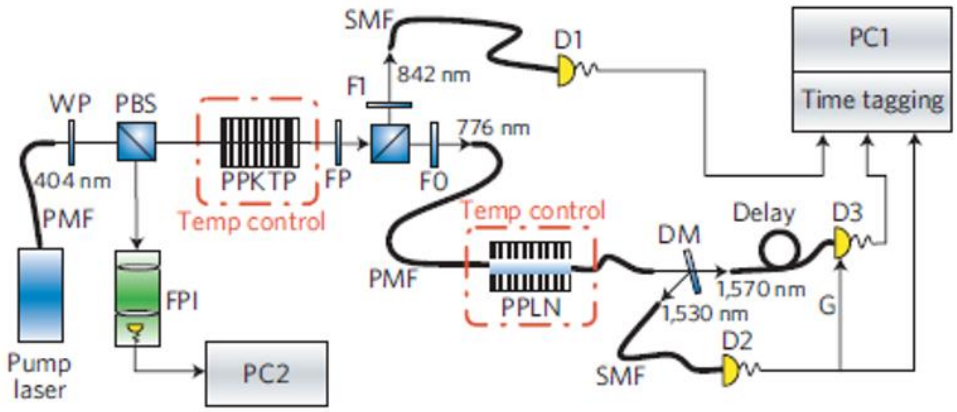


Figure II.7 : Montage expérimental de caractérisation de TPG indirecte par cascade quadratiques. Le montage permet une mesure des coïncidences temporelles et de l'incertitude de l'énergie de pompe respectivement *via* des compteurs de photons uniques et un interféromètre. Tiré de [84].

Plusieurs autres alternatives notables n'ayant pas encore été abordées dans ce chapitre ont été explorées.

- Mikami et al. ont utilisé un cristal de BBO placé en cavité. A partir de l'amplification paramétrique optique en régime mono-injecté, ils ont montré la génération d'états W intriqués en polarisation, ce qui a été corroboré par des mesures de tomographie quantique [86].

- Wilson *et al.* ont récemment rapporté la génération de triplets de photons dans le domaine des micro-ondes par fluorescence paramétrique dans des cavités paramétriques supraconductrices. La tomographie quantique effectuée a révélé une forme en étoile caractéristique des états non classiques [87].

- Un travail théorique sur l'utilisation de cascades de second ordre au sein d'un unique cristal à domaines inversés suivant un schéma d'inversion exotique a été réalisé par Antonosyan *et al.* [88]. La représentation de la fonction de Wigner calculée présente de fortes négativités.

- Un autre travail théorique concernant la fluorescence paramétrique dans des fibres optiques en accord de phase modal a été effectué par Corona *et al.* [89].

L'équipe de Benoît Boulanger a, quant à elle, d'abord cherché des cristaux possédants une non-linéarité du troisième ordre plus forte que celle de KTP. Parmi tous les cristaux non linéaires envisageables pour remplacer KTP, le choix de l'équipe s'est porté sur la Rutile TiO_2. Le cristal étant centrosymétrique, il ne possède pas de non-linéarité du second ordre, donc pas de cascades parasite [67]. Une étude préliminaire a été réalisée [32] par le biais de mesures de génération de troisième harmonique, sachant que les conditions d'accord de phase correspondantes sont strictement identiques à celles de la TPG qui est le processus inverse. Les coefficients non linéaires mesurés sont effectivement supérieurs à ceux de KTP [90]. Toutefois, le domaine de longueurs d'onde d'accord de phase correspond à des photons triplets qui seraient générés au-delà de 2000nm. Cette piste a alors été abandonnée car incompatible avec une émission dans la bande télécom standard.

Grâce à une nouvelle collaboration avec Ariel Levenson et Kamel Bencheikh, l'équipe s'est alors tournée vers l'étude de fibres optiques en Silicium dopées au Germanium [91]. En effet, la lumière y est confinée sur une grande longueur d'interaction puisque ce type de fibre peut atteindre 1m de long. Une fibre réalisée par DRAKA Comteq a permis d'obtenir un accord de phase modal, c'est-à-dire que l'onde pompe (ω) et l'onde de troisième harmonique (3ω) se propagent sous deux modes différents [65,91]. Malgré cela, le rendement de conversion de THG obtenu était très faible, du fait d'une faible intégrale de recouvrement entre les modes, surtout vis-à-vis de la distribution transverse de phase. Au final, tout ce qui était gagné sur la longueur d'interaction était perdu du fait de l'intégrale de recouvrement entre les modes.

L'équipe a alors décidé de considérer une autre technologie. Il s'agit de guides d'onde monocristallins taillés en arête, qui combinent le confinement des fibres optiques avec l'accord de phase par biréfringence des cristaux non linéaires permettant que toutes les ondes se propagent dans le même mode. C'est dans un premier temps KTP qui a été choisi.

La caractérisation optique de ces guides monocristallins de KTP taillés en arête est le sujet du chapitre III, incluant les indices effectifs, la SHG et la THG. Le chapitre IV présente ensuite une autre alternative technologique similaire à celle proposée théoriquement par Antonosyan et al. [88]. Il s'agit de cristaux de KTP à domaines ferroélectriques inversés quasi-périodiquement qui sont conçu pour générer des triplets par cascade de processus quadratique, et ce au sein d'un unique cristal. Enfin, le chapitre V est dévolu à la présentation des expériences de comptage de photons uniques, et des mesures de coïncidences associées.

III Caractérisation optique des guides d'onde monocristallins taillés en arête

A ce compte, l'histoire de la science doit être notre guide
Henri Poincaré*, La logique et l'intuition dans la science mathématique et l'enseignement*

III.1 Introduction

Les expériences de génération de triplets de photons ont montré l'étendue de leur complexité au cours des différentes tentatives dans les cristaux massifs et les fibres optiques. Il est donc primordial de caractériser entièrement les propriétés optiques des nouveaux dispositifs envisagés que sont les guides d'onde arête cristallins, qui combinent l'accord de phase des cristaux massifs et le confinement optique des fibres. Le but ici est de concevoir les guides optimaux et de les caractériser pour préparer au mieux les expériences de TPG.

Dans ce chapitre, il sera d'abord fait un état de l'Art concernant les technologies des guides d'onde non linéaires, ce qui amènera à préciser le choix de la méthode de fabrication. La technique utilisée par l'équipe de Mathieu Chauvet à l'institut Femto-St de Besançon pour la fabrication des diverses générations de guides sera détaillée par la suite. Puis la modélisation théorique de l'effet du confinement sur la propagation des faisceaux et sa répercussion sur les conditions d'accord de phase sera proposée. Enfin, la caractérisation optique des guides par le biais d'expériences de génération de SHG et THG sera présentée.

III.2 Etat de l'Art des guides d'onde arête

L'utilisation de guides d'onde en optique non linéaire, notamment avec le Niobate de Lithium ($LiNbO_3$) remonte aux années 70 [92]. Le confinement induit par une différence d'indice était alors obtenu simplement par chauffage local et migration de LiO_2 au sein de la structure, ou par diverses implantations ioniques. Du point de vue des matériaux, c'est le Niobate de Lithium qui s'est imposé dans ce contexte [93], notamment du fait de sa grande non-linéarité qui permet de travailler à faible puissance, et de sa capacité à être dopé. L'équipe s'est plutôt tournée vers le cristal de KTP du fait de son haut seuil de dommage optique permettant de travailler à très haute intensité, de sa bonne non-linéarité, et de ses propriétés d'accord de phase permettant de générer des triplets de photons dans la bande télécom autour de 1500 nm.

Différentes méthodes de fabrication de guides cristallins ont émergé. Elles peuvent être rangées en deux catégories : celles qui visent à modifier l'indice en surface d'une structure existante et celles qui vont tracer mécaniquement des guides d'ondes dans des couches minces.

III.2.1 Modification de l'indice en surface

Trois méthodes de modification de l'indice des cristaux en surface ressortent.

- L'indice peut tout d'abord être modifié par la technique dite de *l'échange de protons.* Pour le Niobate de Lithium, cela consiste à substituer les atomes de lithium par des protons (H^+), principalement par immersion dans des bains d'acide, comme l'acide benzoïque par exemple [94]. Cette technique a l'avantage de donner lieu à un bon confinement puisque la différence d'indice obtenue entre les zones est forte, avec $\Delta n \approx 0{,}1$ [95]. Cependant, les fortes pertes autour d'un db.cm^{-1} [96], et parfois même la disparition quasi-totale de la non-linéarité d'ordre deux, phénomène encore mal compris, en font un outsider certain [97]. Le recuit semble toutefois prometteur pour résoudre ces problèmes [95].

- Une autre manière de créer localement une différence d'indice est la méthode d'*échange d'ions*. Elle est aussi apparue dans les années 70 [98] et a été adaptée aux guides d'ondes pour l'optique non linéaire quelques années après [99]. Elle consiste également à plonger le substrat dans un bain contenant les ions désirés [100]. Elle semble moins adaptée que l'échange protonique pour $LiNbO_3$ [94], mais elle sied plus à KTP *via* l'échange des ions K^+ avec des ions Rb^+ [101]. Cette capacité de KTP est due à sa forte conductivité ionique du fait d'une grande mobilité des ions K^+ le long de l'axe polaire du cristal. Mais cela constitue un désavantage une fois le guide réalisé car les ions continuent de migrer, ce qui contribue à effacer le guide.

- Enfin, les ions peuvent être amenés par *implantation ionique.* Cela a été fait pour KTP [102]. Malgré le fait que cette technique soit industriellement intéressante, les dégâts infligés à la structure du cristal sont trop importants, avec en particulier l'amoindrissement de la non-linéarité du fait de modifications structurales.

Aucune de ces techniques n'est donc bien adaptée au cas de KTP. Il a donc fallu envisager une solution alternative, ce qui est décrit ci-après.

III.2.2 Formation de guides d'ondes dans des couches minces par tracé

L'épitaxie a naturellement été utilisée pour le dépôt de couches minces. Par exemple en phase liquide pour $LiNbO_3$ [103].

Les couches minces peuvent également être formées par ablation laser [104], par CVD (pour *chemical vapor deposition*) [105], ou par pulvérisation cathodique [106].

Les guides peuvent ensuite être formés par gravure [106,107] ou par micro-usinage laser [108]. Mais la formation de guides par découpe à l'aide de lames en diamant a montré de très bons résultats sur KTP [109] et sur $LiNbO_3$ [110–113]. Une illustration de cette méthode de découpe est présentée en Figure III.1. L'état de surface a été montré comme meilleur par cette technique que par des méthodes de gravures [114].

L'équipe s'est donc tournée vers cette méthode de fabrication pour les guides de KTP mettant à profit l'expérience de l'équipe de Mathieu Chauvet sur les guides de *periodically-poled* $LiNbO_3$ (PPLN). Cette méthode permet donc de travailler avec des monocristaux, de choisir la direction de sciage et donc de propagation du guide, et d'avoir un bon confinement car au moins trois faces latérales sont en contact avec l'air.

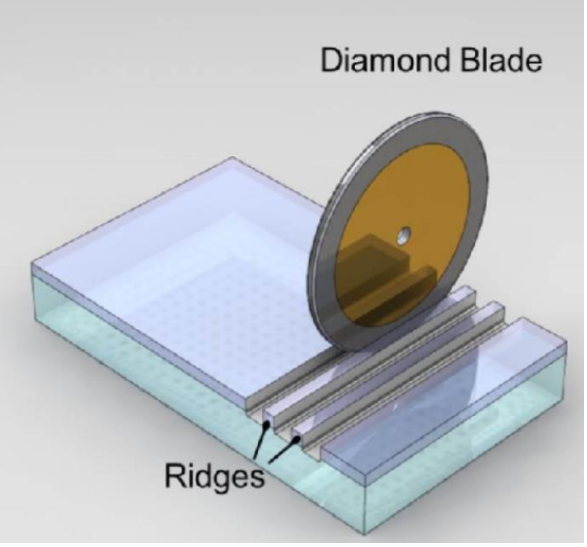


Figure III.1 : Vue d'artiste de la technique de découpe des guides d'ondes arête après fabrication d'une couche mince. La découpe est effectuée grâce à une scie circulaire équipée d'une lame en diamant. Tiré de [109].

Cette technique est donc très intéressante. Toutefois, un des autres points clés est le confinement vertical de la lumière dans le guide, du fait que la face inférieure de l'échantillon n'est pas en contact avec de l'air. Il est donc nécessaire d'avoir un procédé spécifique conduisant à un substrat d'indice plus faible que celui de KTP. C'est sur cet aspect que se différencient les différentes techniques par sciage. Le confinement sur la face inférieure peut être obtenu par gradient d'indice [109,112]. Pourtant la lumière est mieux confinée par saut d'indice. Le substrat qui a été favorisé dans l'optique de développer des technologies intégrables sur silicium est la Silice [106,113]. La difficulté réside alors dans l'assemblage des couches hétérogènes.

III.3 Méthodes de fabrication des guides d'onde monocristallins

Il a été vu dans le chapitre précédent que le cristal « historique » dans lequel la première génération de triplets de photon a été réalisée était un cristal de KTP taillé selon l'axe X. C'est donc selon cette direction de propagation que l'équipe a conçu la première série de guides d'onde monocristallins de KTP taillés en arête.

La méthode développée par l'équipe de Mathieu Chauvet part d'un cristal massif et monocristallin de KTP avec les faces Z polies fourni par la société Cristal Laser. Vient ensuite un protocole qui a été adapté au fur et à mesure des fabrications des puces successives. Une couche de Silice jouant le rôle de substrat est déposée sur la face polie du cristal par ICPECVD (*inductively coupled plasma enhanced chemical vapor deposition*). Puis un film d'or de 300nm d'épaisseur est déposé sur la silice par pulvérisation. Une autre couche d'or est déposée sur une puce de Silicium de faible rugosité. La puce de Silicium est destinée à constituer un support mécanique rigide nécessaire à la suite des étapes du procédé qui générèrent de fortes contraintes mécaniques. Le contact est ensuite fait entre les deux couches d'or, et l'assemblage hybride est réalisé par compression à température ambiante et sous vide dans une machine de *wafer bonding EVG*. Réaliser cet assemblage à température ambiante permet d'éviter tout stress mécanique dû à la différence des coefficients de dilatation des différentes couches mises en contact [115]. Cette prouesse technologique avait été réalisée pour les guides de PPLN sur lesquels Bassignot *et al.* avaient travaillé en amont des guides de KTP [116]. La liaison entre les surfaces est ensuite vérifiée par caractérisation acoustique ; elle est toujours supérieure à 98% [117].

A ce stade du procédé, le cristal de KTP d'environ 500 microns d'épaisseur est donc stabilisé par la puce en Silicium. Le cristal est ensuite aminci jusqu'à l'épaisseur désirée, dans notre cas quelques microns. Cette épaisseur est dictée par la condition d'accord de phase et doit être précise à mieux que le micron. D'autre part, c'est un guide à section carrée qui visé. L'amincissement est réalisé soit par poli-amincissage mécanique, soit *via* un procédé mécano-chimique. Il est ensuite vérifié par profilométrie. Enfin, les guides sont tracés par découpe à l'aide d'une scie circulaire d'environ 50mm de diamètre et 200µm d'épaisseur, comme illustré en Figure III.1.

La Figure III.2 donne le guide théorique visé. La Figure III.3 présente des clichés de microscopie électronique à balayage (MEB) qui permettent de visualiser les résultats obtenus.

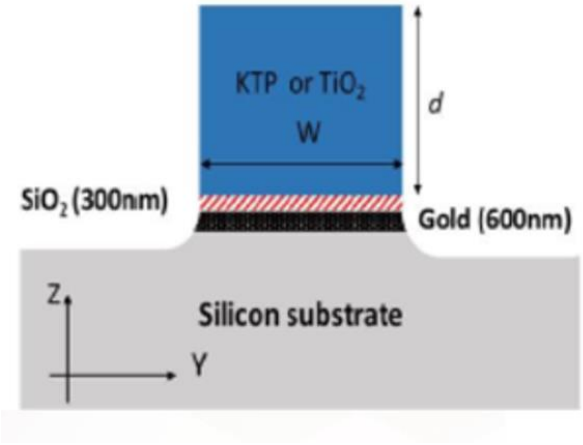


Figure III.2 : Guide théorique de la première puce taillée selon l'axe X du cristal de KTP. Le guidage est assuré par la silice en dessous, par l'air sur les trois autres interfaces.

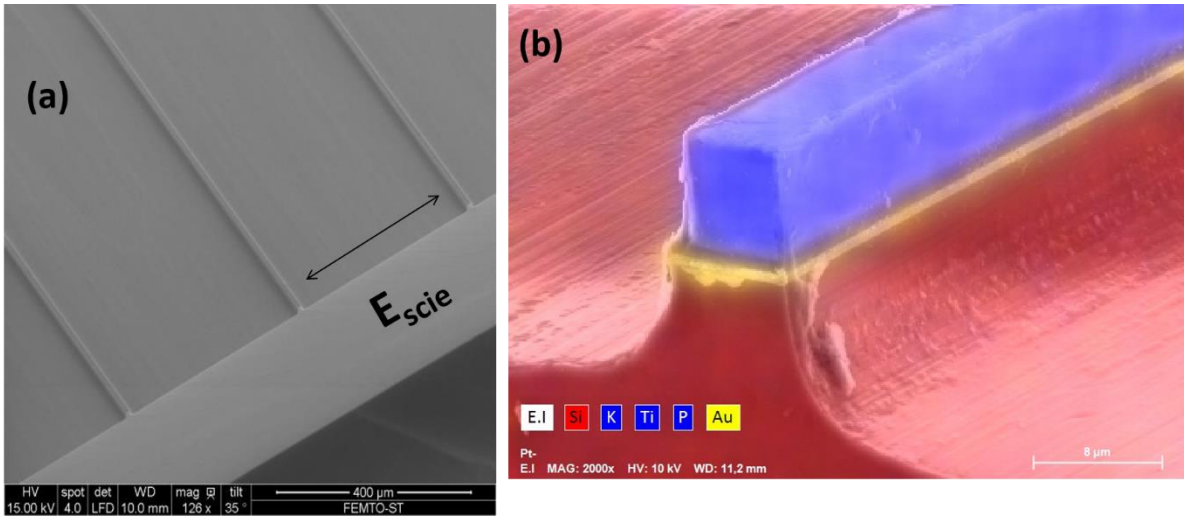


Figure III.3 : (a) Cliché MEB réalisé à l'institut Femto-ST qui présente des guides tracés par le passage de la scie. La distance entre les guides arêtes obtenus est égale à l'épaisseur de la scie (environ 200µm). (b) Cliché MEB enrichi de l'analyse spectroscopique des éléments chimiques réalisé à l'Institut Néel de la face d'entrée d'un guide.

En tout, cinq séries de puces ont été fabriquées, chacune comportant plusieurs guides d'onde. Chaque génération a bénéficié des retours d'expérience des précédentes. Dans ce manuscrit seront décrites des expériences réalisées sur trois guides différents. Le premier est un guide taillé selon l'axe X du cristal, présent sur la première puce. Les deux autres sont taillés selon l'axe Y du cristal, et sont respectivement sur la 4ème et la 5ème puce.

- La première puce fabriquée comporte 6 guides. Elle est présentée en Figure III.4. Le choix d'un guide pour l'étude expérimentale s'est fait en fonction de la qualité obtenue, du fait que la section transverse soit la plus constante possible le long de l'axe de propagation, et des mesures de transmission qui seront détaillés dans ce chapitre. C'est également sur un guide de cette puce que la caractérisation optique non linéaire a été réalisée par l'étude de la SHG.

- Les puces 2 et 3 présentent respectivement dix et trois guides taillés selon l'axe Y de KTP. L'idée était ici de complètement découper les guides à la scie, notamment la partie amincissement. Une partie de la deuxième puce a cassé lors du *wafer bonding*, et les guides obtenus présentaient de fortes disparités entre les sections d'entrée et de sortie comme présenté en Figure III.5. Les guides taillés sur la puce 3 ont des sections transverses plus constantes le long de l'axe de propagation car l'échantillon est étalonné en planéité avant découpe. Ils ont toutefois une section trapézoïdale visible sur la Figure III.6, ce qui a été attribué à un effet de bord lié à la découpe. Les puces suivantes ont donc été incorporées dans une matrice de verre avant découpe afin de limiter ces effets de bord.

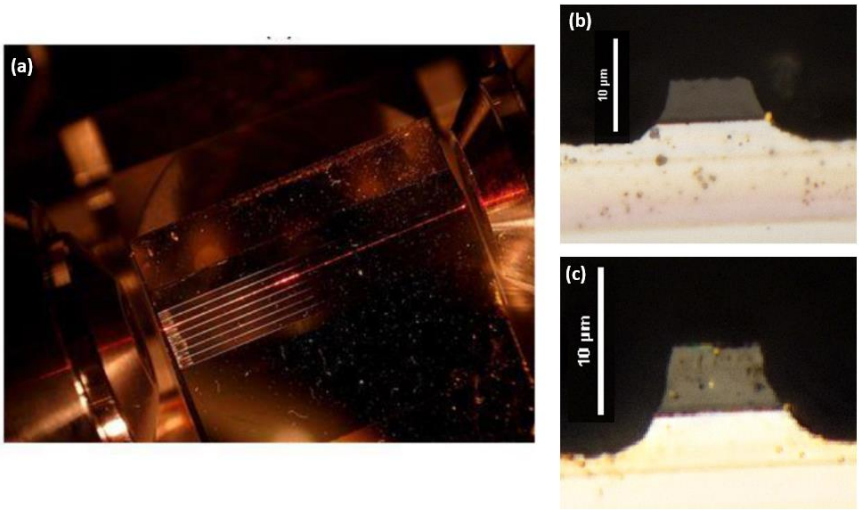


Figure III.4 : (a) Vue du dessus de la puce 1 et des six guides. Un laser continu He-Ne est injecté dans le guide 2. (b) Cliché de microscopie optique (x100) de la face d'entré d'un guide candidat à une étude approfondie (c) Cliché de microscopie optique (x100) de la face d'entrée d'un guide présentant des aspérités.

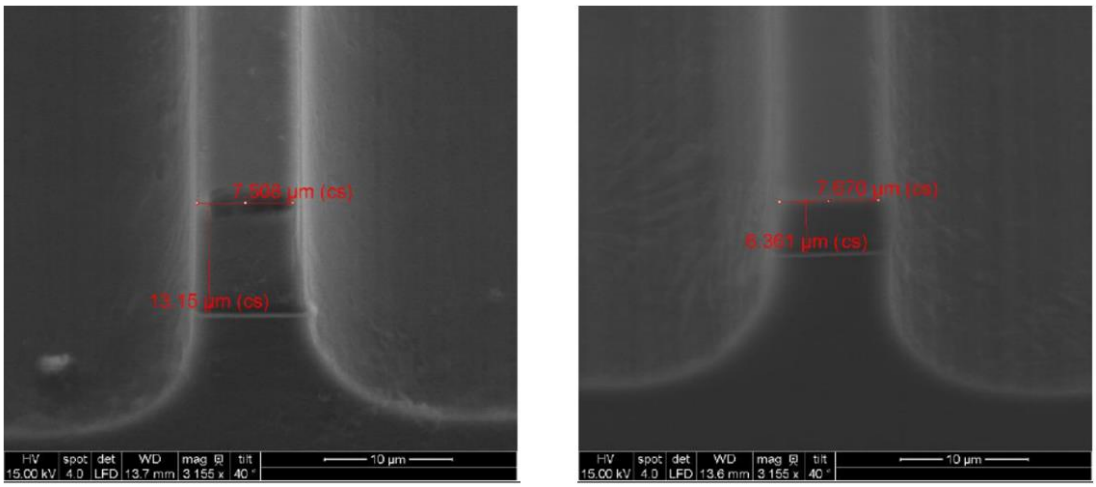


Figure III.5 : Cliché MEB réalisé à Femto-ST des sections d'entrée et de sortie d'un guide de la deuxième puce. Une grande disparité de hauteur a été obtenue. Ceci a été attribué à la fois à l'usure de la lame et à la fragilisation du cristal lors de la casse.

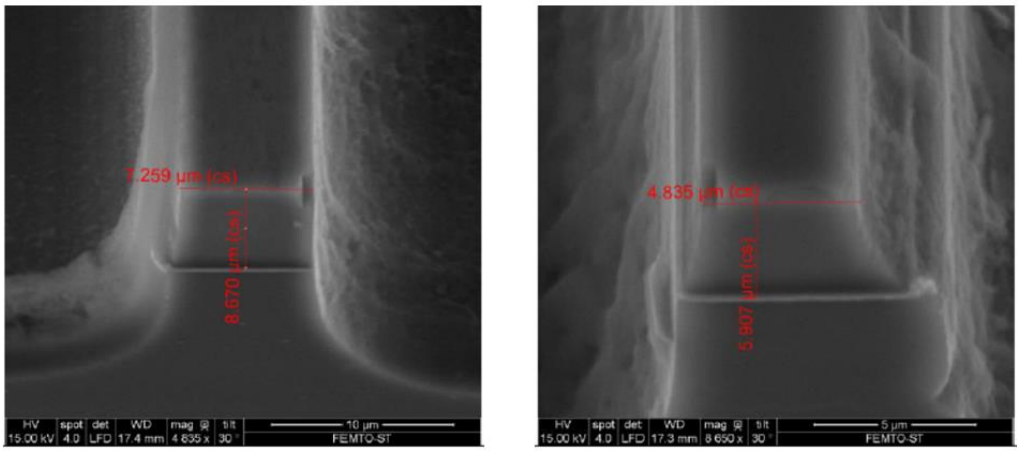


Figure III.6 : Cliché MEB réalisé à Femto-ST des sections d'entrée et de sortie d'un guide de la puce de 3ème génération. La forme trapézoïdale obtenue est attribuée à un effet de bord lié à la découpe.

- La puce 4 a été fabriquée à partir d'un échantillon de KTP de faible longueur (5mm), pour expérimenter l'incorporation de l'échantillon dans une matrice de verre. Les résultats sont très encourageants. La Figure III.3.(a) présente les guides obtenus sur cet échantillon. Cependant, la meule diamant utilisée pour l'amincissement jusqu'à 12µm de hauteur* avait des grains de 2 µm ce qui a conduit à la formation de trous d'une cinquantaine de microns sur la surface.
- La puce 5 a été conçue de manière similaire à la puce 4, mais avec un cristal plus long que le précédent, soit 8,6mm. L'idée était ici de faire cinq groupes de trois guides chacun, comme présenté en Figure III.7. L'amincissement par rodage a été fait cette fois-ci jusqu'à environ 100µm, puis un polissage a été fait jusqu'à obtention de la hauteur visée, environ 7µm. C'est sur cette puce qu'ont été réalisées les études de SHG et THG, notamment sur le guide présenté en Figure III.3(b). La section obtenue est très proche d'une section carrée.

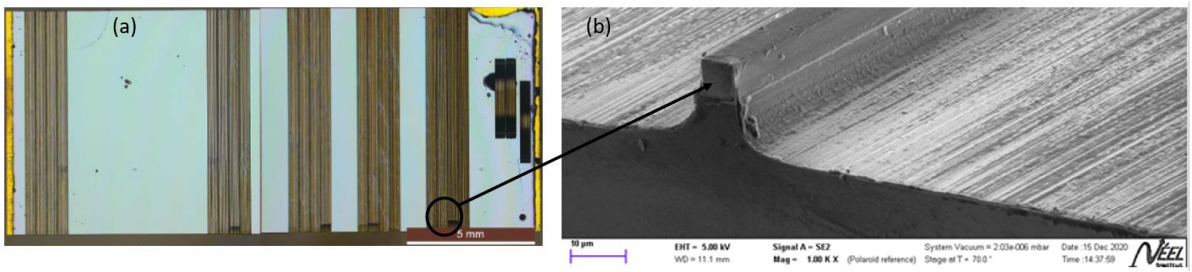


Figure III.7 : (a) Photo vue du dessus des cinq groupes de trois guides de la puce 5. Apparaissent des défauts et cassures, ce qui témoigne des divers processus mécaniques lourds qui interviennent lors des différentes étapes de fabrication. (b) Cliché MEB réalisé à l'Institut Néel de la face d'entrée d'un guide de la puce 5.

La partie suivante s'attachera à décrire le choix de la modélisation des indices effectifs principaux de KTP, et leur utilisation pour les prédictions d'accord de phase en fonction de la longueur d'onde et des dimensions transverses du guide considéré.

III.4 Calcul des indices effectifs et prédictions d'accord de phase

Cette partie a pour objectif de présenter la méthode qui a été utilisée pour effectuer les prédictions des conditions d'accord de phase des interactions non linéaires au sein de ces nouvelles structures que sont les guides d'ondes monocristallins taillés en arête. Cette modélisation a pour but de concevoir des guides pour la génération de triplets de photons dans la bande télécom (1550-1600nm).

Dans le cas de guides taillés en arête, il n'y a pas de résolution analytique possible des équations de propagation du champ électromagnétique [118]. La répercussion du confinement sur les indices de réfraction « vus » par les ondes est à prendre en compte. L'indice effectif est alors la grandeur à considérer [119]. Or, il a été montré notamment dans la section I.3.2.4 que l'accord de phase des interactions non linéaire dépendait des indices de réfraction du cristal. Par conséquent, les indices effectifs qui dépendent ici de la dimension transverse des guides d'onde considérés vont conduire à des conditions d'accord de phase différentes par rapport au cristal massif.

III.4.1 Outils théoriques pour l'Optique guidée

Aux relations constitutives ainsi qu'aux équations de Maxwell vont s'ajouter les relations de continuité aux interfaces que sont ici les bords des guides d'onde. Un premier modèle simple d'ondes confinées entre deux miroirs métalliques plans séparés d'une distance *d* est présenté en Figure III.8, permettant de bien comprendre la notion de mode. En effet, chaque réflexion sur un miroir métallique ajoute un déphasage de π, et la phase accumulée doit interférer de manière constructive avec l'onde originale. Cette condition peut s'écrire de la façon suivante [120] :

$$\frac{2\pi}{\lambda}(AC - AB) - 2\pi = \frac{2\pi}{\lambda} 2d\sin(\theta) - 2\pi = 2\pi m' \qquad \text{(III.1)}$$

où *m'* est un entier et θ l'angle défini en Figure III.8. En définissant $m = m'+1$, vient la relation de Bragg :

$$2d\sin(\theta) = m\lambda, \;\; m = 1, 2, 3, ... \qquad \text{(III.2)}$$

Il y a donc un nombre discret de solutions qui peuvent se propager dans une telle structure. C'est ici que la notion de *modes de propagation* intervient. Le nombre de modes vaut alors :

$$M = \frac{2d}{\lambda} \qquad \text{(III.3)}$$

La pulsation la plus basse pouvant être guidée, appelée *fréquence de coupure*, est obtenue pour *sin(θ)=1* et *m=1*, soit :

$$\omega_c = \frac{\pi c}{d} \tag{III.4}$$

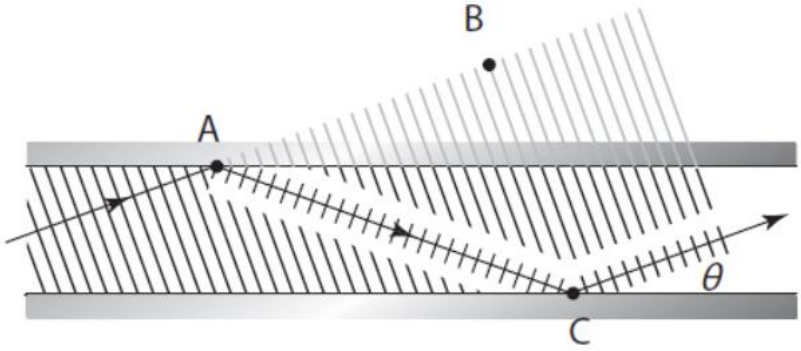


Figure III.8 : Guidage par réflexion totale entre deux miroirs séparés d'une distance d.

Limiter le guidage à deux dimensions a donc déjà pour effet de ne faire intervenir que des modes dits transverses. Deux situations de confinement transverse sont largement utilisées en optique : le confinement en cavité, très utilisé dans le cas des lasers, et le guidage, qui sera réalisé dans cette étude au sein de matériaux diélectriques.

Les guides d'onde que nous utilisons sont des monocristaux de KTP taillés en arête reposants sur une couche de Silice. Le confinement est donc obtenu par les interfaces KTP/air et KTP/silice sur la face inférieure, comme présenté en Figure III.2. Le cadre théorique suppose la section transverse du guide comme carrée. Les modes de propagation considérés sont les modes dits transverse électrique (TE) et transverse magnétique (TM) pour lesquels il n'y a pas de champ électrique selon la direction de propagation, mais dans le plan transverse.

La relation de dispersion du guide de dimension transverse *d* présenté en Figure II.2 est obtenue *via* les équations de Maxwell combinées avec les équations de continuité des champs aux interfaces [121]. La relation suivante qui en découle définit les constantes de propagation possibles pour une dimension transverse et une longueur d'onde données :

$$d\sqrt{k^2 n_{KTP}^2 - \beta^2} - \arctan\left(\sqrt{\frac{\beta^2 - n_{SiO_2}^2 k^2}{k^2 n_{KTP}^2 - \beta^2}}\right) - \arctan\left(\sqrt{\frac{\beta^2 - n_{air}^2 k^2}{k^2 n_{KTP}^2 - \beta^2}}\right) = m\pi \tag{III.5}$$

où m est un entier, k est pris cette fois-ci comme $k = \omega / c$ et β est la constante de propagation.

Les constantes de propagation de chaque mode transverse sont les solutions discrètes de cette équation β_m. Cette constante de propagation, différente de celle en espace libre, rend compte des modifications liées au confinement. Puisque l'onde ne cesse de 'rebondir' tout au long de la propagation, la constante *k* usuelle ne fait plus sens. Cette nouvelle constante est définie par :

$$\beta = \frac{n_{eff}\,\omega}{c} \qquad \text{(III.6)}$$

Ainsi, c'est uniquement par l'introduction de l'indice effectif que se fait la différence au niveau de la constante de propagation de l'optique guidée. Les calculs d'optique non linéaire dans les guides seront donc basés sur la théorie détaillée dans le chapitre I, mais en prenant comme indices de réfraction les indices effectifs pour tout ce qui concerne la propagation des ondes. Tout comme les indices de réfraction principaux du cristal de KTP qui appartient à la classe optique biaxe, les indices effectifs seront au nombre de trois.

.

III.4.2 Modifications théoriques induites par le confinement optique dans KTP

Une première partie du travail de modélisation a été réalisée par Mathieu Chauvet à Besançon, grâce au module RF du logiciel COMSOL qui permet de calculer les indices effectifs en résolvant les équations de Maxwell par la méthode des éléments finis [122]. A partir de l'expression de la fréquence de coupure d'un guide asymétrique [120], il est clair qu'aux fréquences de travail de cette étude, nos guides micrométriques ne seront pas monomodes. Par contre, nous nous intéressons ici uniquement à l'accord de phase entre les modes fondamentaux, c'est-à-dire TE_{00} et TM_{00}, aux différentes fréquences concernées. Une attention particulière sera donc à porter lors des expériences pour s'assurer que cela soit effectivement le cas.

Ce calcul n'est réalisable que pour une longueur d'onde et une dimension transverse fixées. Sont par conséquent obtenues des valeurs discrètes des indices effectifs notées $n_{eff}^{i}(\lambda, d)$, où *i* est la direction de la polarisation rectiligne du champ électrique qui correspondra dans notre étude aux axes x,y ou z du repère diélectrique de KTP. Les calculs d'indice ont ainsi été réalisés pour des dimensions transverses d'un guide de section transverse carrée allant de 3 à 16 µm de côté tous les microns, et pour des longueurs d'onde comprises entre 500 et 3000nm tous les nanomètres. Cette gamme s'inscrit dans le domaine de transparence de KTP [123].

Un exemple de l'évolution des indices effectifs en fonction de la dimension transverse du guide est donné pour une longueur d'onde fixée à 1µm en Figure III.9. Puisque ces courbes sont obtenues pour des valeurs discrètes de la longueur d'onde, il n'est pas possible de les utiliser pour réaliser les calculs qui nous seront nécessaires pour la conception des expériences d'optique non linéaire. En effet, ces calculs nécessitent d'avoir accès aux indices effectifs à

toute longueur d'onde afin de pouvoir calculer tout accord de phase. Il nous faut donc arriver à déterminer les fonctions continues qui lient les indices effectifs à la longueur d'onde. Pour rappel, cette dispersion est donnée par les relations de Sellmeier données en équation (I.15) dans le cas des cristaux massifs.

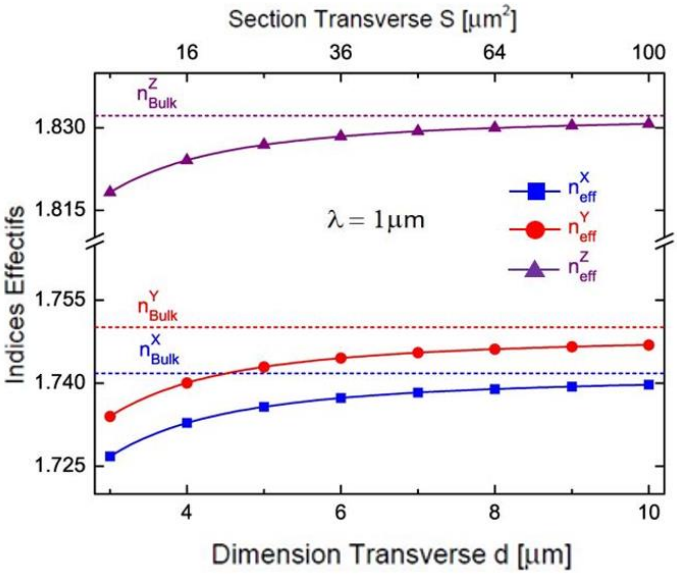


Figure III.9 : Calcul numérique réalisé avec le logiciel COMSOL de la variation des indices effectifs principaux d'un guide arête de KTP en fonction de la dimension transverse *d* pour une longueur d'onde de 1 µm. Les traits en pointillés correspondent aux valeurs calculées pour un cristal de KTP massif (*Bulk*).

A Grenoble nous avons alors construit des fonctions continues à partir de ces données discrètes obtenues à Besançon. Il s'agit donc de réaliser une interpolation de l'évolution en longueur d'onde des indices effectifs pour chaque valeur de *d* à partir des données calculées avec COMSOL. Nous avons utilisé l'algorithme de Levenberg-Marquardt dans l'application *Curve Fitting Tool* du logiciel Matlab. L'ajustement a pour objectif de limiter l'écart entre les valeurs discrètes calculées via COMSOL et la courbe ajustée à 5.10^{-5}, ce qui correspond à une erreur sur les longueurs d'onde d'accord de phase de l'ordre du nm [123].

La fonction d'ajustement a été trouvée en partant de la relation de Sellmeier du milieu massif et en la modifiant. Le meilleur accord a été obtenu avec la fonction suivante :

$$\left(n_{eff}^{\omega}\right)_i = \left(A_i \times \lambda_{\omega}^{B_i} + \frac{C_i}{10^{-6} \times \lambda_{\omega}^{D_i} - E_i} - F_i \times 10^{-6} \times \lambda^{G_i} \right)^{H_i} + I_i \qquad \text{(III.7)}$$

La longueur d'onde est prise en nm, et $i = \{x, y, z\}$.

Cette équation conserve une partie du sens physique. En effet, pour l'indice effectif $\left(n_{eff}^{\omega}\right)_x$ à *d=6µm* par exemple, l'exposant D_x vaut 2,77, ce qui est proche de l'exposant 2 de l'équation

de Sellmeier, et $(E_x \times 10^6)^{1/D_x}$ vaut 317nm. Cette dernière valeur est proche de la longueur d'onde de résonance ultraviolette du cristal massif, qui vaut 206nm lorsqu'elle est calculée à partir de l'équation de Sellmeier [9] donnés en Tableau I.1. Une proximité similaire est obtenue pour les indices effectifs selon y et z.

Les coefficients obtenus par ajustement pour un guide de dimension transverse d=6µm sont donnés dans le Tableau III.1.

i	A_i (nm^{-1})	B_i	C_i (nm)	D_i	E_i (nm)	F_i(nm^{-1})	G_i	H_i	I_i
x	0.4488	0.01948	0.5288	2.277	0.4939	0.88	1.615	0.07128	0.7808
y	1.017	0.004481	1.47	2.323	0.6407	1.242	1.653	0.07207	0.7373
z	2.236	0.006506	0.8399	2.14	0.1814	0.5619	1.811	0.1125	0.7183

Tableau III.1 : Coefficients d'interpolation permettant de décrire la dispersion des indices effectifs principaux de KTP pour un guide de dimension transverse d=6µm. Tiré de [117].

Des exemples de courbes de dispersion en longueur d'onde de l'indice effectif n_{eff}^{y} obtenues pour des dimensions transverses de 6 ainsi que 7 et 11µm sont comparées avec celle du cristal massif sur la Figure III.10. L'effet du confinement apparaît comme plus marqué aux grandes longueurs d'onde.

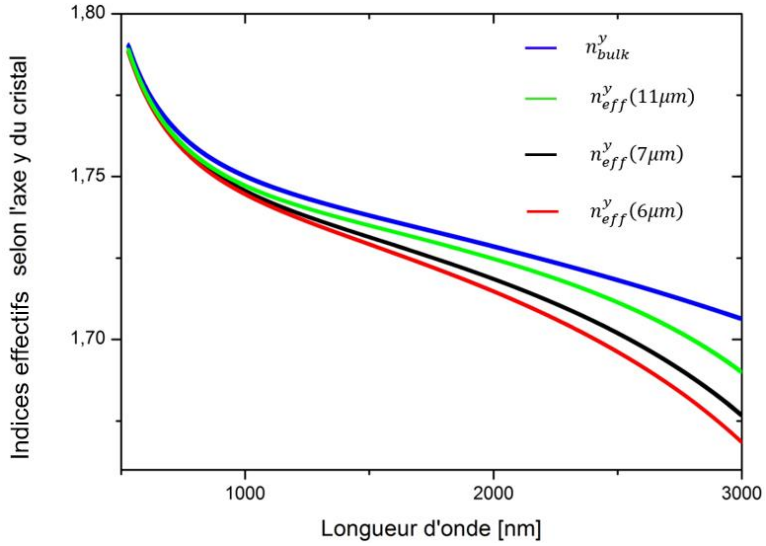


Figure III.10 : Exemples de dispersions spectrales de l'indice effectif principal n_y pour diverses dimensions transverses *d*. La courbe bleue correspond à celle obtenue pour le cristal massif.

Le but étant de concevoir des guides pour générer des triplets de photons dans la bande télécom, l'établissement de relations de dispersion fiables est primordial. C'est à partir de l'équation (III.7) que sont réalisés les calculs d'accord de phase des interactions non linéaires qui interviendront : SHG, THG et TPG. Ces calculs sont présentés en partie suivante.

III.4.3 Prédictions théoriques d'accord de phase

La dispersion des indices effectifs donnée par l'équation (III.7) permet de calculer les conditions d'accord de phase de la TPG. Cependant, il est illusoire de penser pouvoir vérifier expérimentalement la fiabilité du modèle avec une interaction aussi peu efficace. L'étude de la SHG, qui sollicite les éléments du tenseur $\chi^{(2)}$ qui sont plusieurs ordres de grandeur supérieurs à ceux du tenseur $\chi^{(3)}$, permet dans un premier temps de s'assurer de la validité du modèle de l'indice effectif.

III.4.3.1 Calcul d'accord de phase de la SHG

La SHG est le cas dégénéré de la somme de fréquences illustrée Figure I.6. Fer de lance de l'optique non linéaire, c'est notamment ce processus qui a été observé par Franken *et al.* lors de leur expérience originelle au sein d'un cristal massif de Quartz [11]. La condition d'accord de phase par biréfringence donnée en équation (I.28) s'écrit en milieu guidé pour la SHG de type II $\omega^{+} + \omega^{-} \rightarrow 2\omega^{-}$:

$$\Delta k = 0 = n_{eff}^{(-)}\left(\omega, d\right) + n_{eff}^{(+)}\left(\omega, d\right) - 2n_{eff}^{(-)}\left(2\omega, d\right) \qquad \text{(III.8)}$$

Les indices effectifs donnés dans l'équation (III.7) dépendent à la fois de la longueur d'onde et de la dimension transverse du guide. Ainsi, le calcul est effectué pour plusieurs tailles de guides différentes tous les microns, puis un ajustement polynomial permet d'obtenir les courbes données en Figure III.11.

Le passage du milieu massif au milieu guidé va donc pouvoir modifier les conditions d'accord de phase. De nouvelles longueurs d'onde sont potentiellement accessibles, nécessitant alors le design approprié pour le guide d'onde. Par exemple, un guide taillé selon l'axe Y du cristal de dimension transverse d=4,6µm permet de réaliser la SHG à partir du faisceau d'un laser Nd:YAG à 1064nm. C'est ce qui est montré au point Y_1 de la Figure III.11.

Il est toutefois nécessaire de vérifier la fiabilité du modèle au préalable. Pour ce faire, la dimension transverse des guides fabriqués sera évaluée, et la mesure de la longueur d'onde d'accord de phase sera mesurée et comparée à la prédiction fournie en Figure III.11. Ce sera notamment le cas des points X_1 et Y_2.

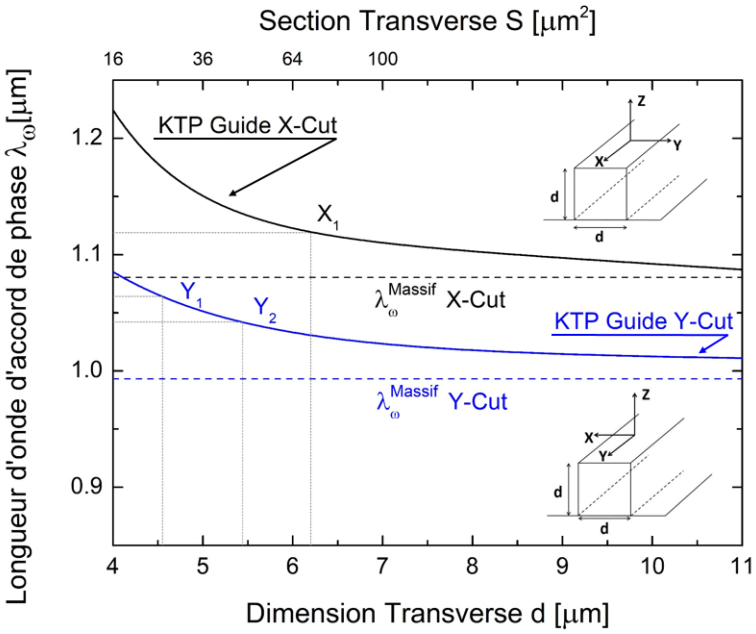


Figure III.11 : Evolution de la longueur d'onde fondamentale d'accord de phase de la SHG de type II en fonction de la dimension transverse de guides supposés carrés. La courbe bleue correspond à un guide taillé selon l'axe Y du cristal, la courbe noire à un guide taillé selon l'axe X. Les traits en pointillés correspondent aux valeurs obtenues pour un cristal massif.

III.4.3.2 Calcul d'accord de phase de la THG et de la TPG dégénérée en longueur d'onde

La THG correspond à la fusion de photons du troisième ordre entièrement dégénérée en longueur d'onde. Dans le cadre de cette étude, seule la THG de type II sera considérée. La condition d'accord de phase s'écrit dans ce cas :

$$\Delta k = 0 = n_{eff}^{(-)}(\omega, d) + n_{eff}^{(+)}(\omega, d) + n_{eff}^{(+)}(\omega, d) - 3n_{eff}^{(-)}(3\omega, d) \qquad \text{(III.9)}$$

Le processus inverse, qui est la TPG dégénérée en longueur d'onde, est par conséquent régit par la même condition d'accord de phase. Le calcul est, comme pour la SHG, réalisé pour des guides taillés respectivement selon les axes X et Y. Dans un premier temps l'ajustement est à nouveau polynomial. Il est présenté en Figure III.12. Il apparaît alors que les guides taillés selon l'axe X de KTP ne permettent pas de générer des triplets de photons dans la bande télécom à partir des deux sources de pompe à 532 et 527nm que nous allons considérer. En revanche, un guide taillé selon l'axe Y du cristal, de dimension transverse d=6,19µm permet selon cette modélisation de générer à partir d'une source à 532nm des triplets dégénérés à 1596nm. De même, un guide de dimension transverse d=6,49µm permettrait de générer des triplets à 1581nm en utilisant un laser à 527nm.

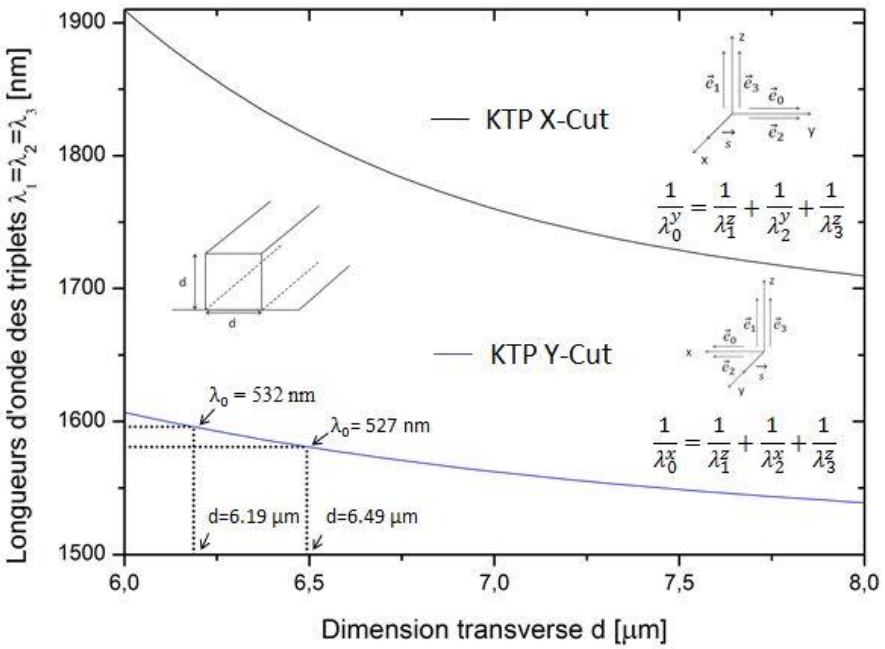


Figure III.12 : Courbe d'accord de phase de la TPG dégénérée en pulsation en fonction de la dimension transverse de guides taillés selon l'axe X (en noir) et selon l'axe Y (en bleu). Ces courbes sont obtenues par un ajustement polynomial. La THG étant le processus inverse de la TPG, cette courbe correspond également à l'accord de phase de la THG.

Un nouvel ajustement plus précis a ensuite été effectué pour des guides taillés selon l'axe Y que nous avons identifiés comme prometteurs pour générer des triplets dans la bande télécom. La fonction d'ajustement suivante donne une bonne interpolation de la longueur d'onde de pompe d'accord de phase en fonction de la dimension transverse d :

$$\lambda_{\omega}^{th}(d) = \lambda_{\omega}^{th}(\infty) + \rho d^{-\alpha} \tag{III.10}$$

avec

$$\begin{cases} \lambda_{\omega}^{th}(\infty) = \lambda_{\omega}^{Massif} = 1476nm \\ \rho = 5945 \\ \alpha = 2.144 \end{cases} \tag{III.11}$$

La longueur d'onde d'accord de phase du cristal massif est fixée lors de l'ajustement. Elle donne l'asymptote vers laquelle la courbe tend à l'infini. A partir de l'équation (III.10), il vient :

$$d = e^{\frac{1}{\alpha}\ln\left(\frac{\rho}{\lambda_{\omega}^{th}(d) - \lambda_{\omega}^{th}(\infty)}\right)} \tag{III.12}$$

Cette relation permet de trouver la dimension du guide en fonction de la longueur d'onde demandée. Ainsi, pour une TPG pompée à 532nm, cet ajustement plus précis donne une dimension transverse de guide d=6,16µm. La précision de la découpe à la scie étant d'environ 1µm, les deux modélisations restent en bon accord. La courbe d'accord de phase obtenue à partir de l'équation (III.10) est présentée en Figure III.12.

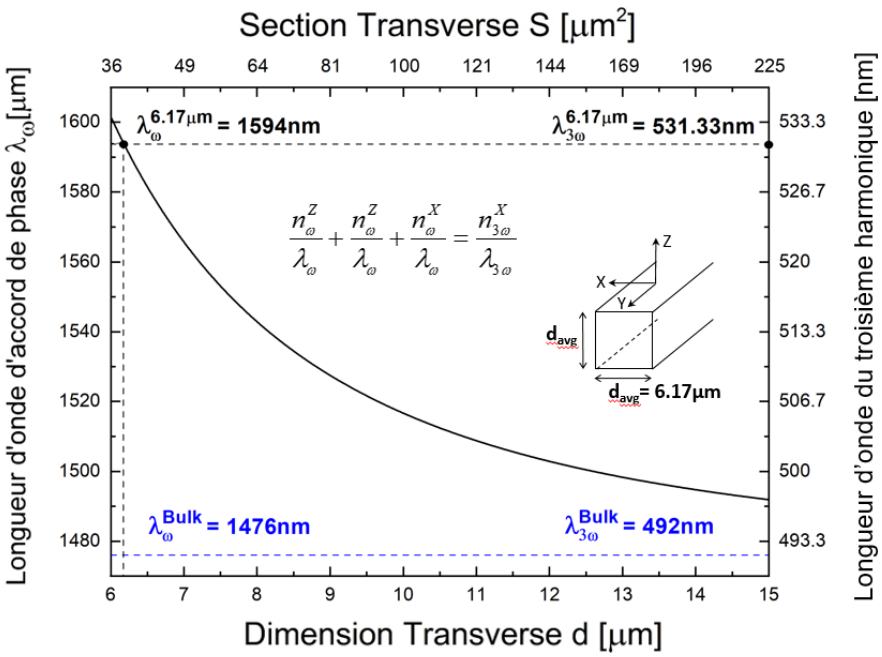


Figure III.12 : Longueur d'onde d'accord de phase de la THG en fonction de la dimension transverse d'un guide taillé selon l'axe Y du cristal obtenue à partir de l'équation (III.10). La droite bleue en pointillés correspond au calcul dans le cas d'un cristal massif. La droite noire en pointillés correspond au calcul pour un guide de dimension transverse d=6,17µm.

Pour rappel, la TPG peut également être stimulée sur un ou deux des modes des photons triplets. Les conditions d'accord de phase de ces cas particuliers, dont les propriétés quantiques ont été décrites dans le chapitre II, ont, elles aussi, été investiguées. Un exemple est donné en Figure III.13 ; il est intéressant car les longueurs d'ondes intervenant sont proches des valeurs expérimentales de l'expérience de 2004 données en équation (II.2).

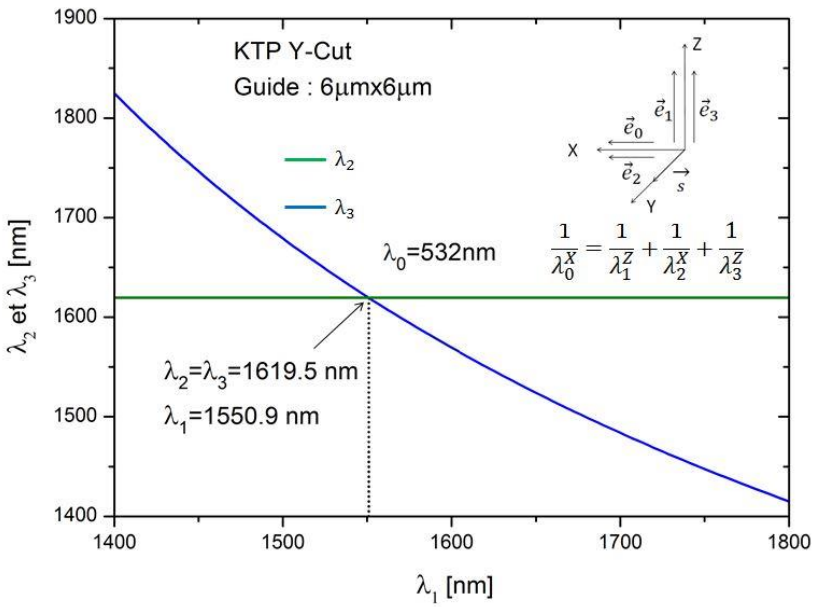


Figure III.13 : Longueurs d'onde d'accord de phase de la TPG doublement injectée à $\lambda_2=\lambda_3$ et pompée à 532nm pour un guide de dimension transverse d=6µm. La longueur d'onde λ_1 qui témoigne de la génération de triplet est proche de 1550nm.

La première puce fabriquée présentait des guides taillés selon l'axe X du cristal, direction de propagation qui avait été favorisée dans les études précédentes au sein d'un cristal massif comme discuté dans le chapitre II. Les prédictions d'accord de phase ont finalement conduit l'équipe à considérer des guides taillés selon l'axe Y du cristal, puisque les triplets dégénérés sont prédits comme trop éloignés de la bande télécom lorsque le guide est taillé selon l'axe X du cristal. Cette direction avait été identifiée comme peu sujette à des cascades quadratiques parasites [124]. En revanche, il convient dans un premier temps de s'assurer de la fiabilité de la modélisation par des expériences de SHG. La mise en œuvre expérimentale et l'analyse qui en découle ont conduit à la publication d'un article [117]. Ce travail est décrit dans la partie suivante.

III.5 Etude de la génération de second harmonique

Dans cette partie seront détaillés les expériences de SHG et leur analyse. Elles constituent la première étape de caractérisation non linéaire des guides, ayant pour but de concevoir le générateur de triplets de photon le plus efficace possible.

III.5.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental décrit dans cette partie a pour vocation de permettre la caractérisation complète des guides taillés selon l'axe X du cristal de KTP qui ont été tracés sur la puce 1. Ces guides ont une longueur L=15,8mm. La SHG de type II qui sera le sujet de l'étude présentée ici peut s'écrire :

$$\omega^y + \omega^z \rightarrow 2\omega^y \qquad \text{(III.13)}$$

Le montage expérimental est présenté en Figure III.14. La puce de KTP est montée sur une tête goniométrique elle-même montée sur une platine de translation micrométrique X,Y,Z, les axes étant rappelés sur la Figure III.14. Ceci permet donc de régler les axes de rotation et de translation de la puce de manière précise. Un objectif de microscope x20 est utilisé pour injecter le faisceau pompe à λ_ω émis par le générateur paramétrique optique TOPAS, ayant un taux de répétition de 10Hz et une durée d'impulsion $\tau_\omega = 15ps$. La longueur d'onde de pompe est accordable, et sa calibration est vérifiée à l'aide d'un spectromètre Ocean Optics NIRQuest avec une précision de 1nm. L'injection du faisceau pompe est réglée en rapprochant la puce de l'objectif *via* la platine de translation. L'injection étant très critique, elle est assistée par une caméra placée au-dessus de l'échantillon. Le faisceau à la sortie du guide est collecté par un objectif de microscopie x40, qui est lui aussi installé sur une platine de translation micrométrique triaxiale, et dirigé vers les appareils de mesure de l'énergie, comme présenté en Figure III.14.

Un télescope permet d'ajuster la largeur du faisceau de sortie du TOPAS. En sortie est placée la combinaison d'une lame demi-onde et d'un prisme Glan Laser, ce qui permet de régler continument l'intensité du faisceau pompe. Une lame de prélèvement est ensuite placée à 45° sur le trajet du faisceau et permet la mesure instantanée de l'intensité de pompe. Enfin, une autre lame demi-onde réglée à 45° de ses lignes neutres permet de répartir les photons pompe sur les axes Y et Z du cristal, puisque la SHG choisie pour cette étude est une SHG de type II, comme expliqué en équation (III.8).

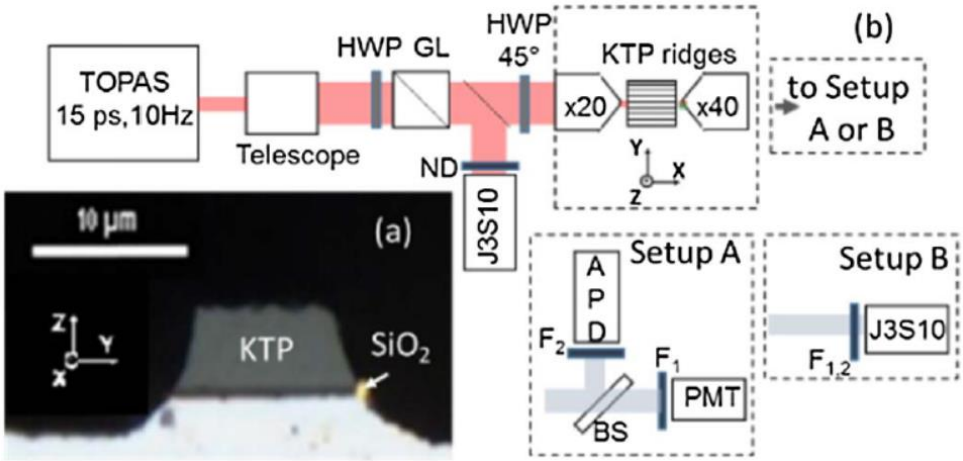


Figure III.14 : (a) Cliché de microscopie optique (x100) de la face d'entrée d'un guide de section 7µm x 5µm. (b) Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation des guides. HWP : lame demi-onde. GL : Prisme Glan-Laser. PMT : module photomultiplicateur. APD : photodiode à avalanche. J3S10 : picojoulemètre Molectron. F1 : filtre FGB37 qui bloque le faisceau pompe. F2 : filtre qui bloque le faisceau de second harmonique. ND : densités neutres. BS : lame séparatrice. [117].

Deux montages différents en aval du guide ont été utilisés lors des expériences. Le montage A (Setup A) est dévolu à la mesure de l'acceptance spectrale de la SHG : il s'agit de la dépendance de l'intensité du faisceau généré à 2ω en fonction de la longueur d'onde du faisceau de pompe (cf. Figure I.7). Une lame séparatrice est d'abord utilisée pour séparer les faisceaux à ω et 2ω en sortie de cristal. Le faisceau à ω est collecté par une photodiode à avalanche Thorlabs (APD), et l'énergie du faisceau à 2ω est mesurée par un module photomultiplicateur Hamamatsu. Tous les signaux électriques générés par les appareils de mesures sont analysés sur un oscilloscope. Les filtrages spectraux sont assurés en longueur d'onde par les filtres F1 et F2 présentés en Figure III.14. Ce premier montage permet également de mesurer la transmission des guides grâce au fait que l'intensité à ω en entrée de cristal est mesurée par un picojoulemètre Molectron J3S10. Le montage B (Setup B) est dédié à la mesure de l'intensité du faisceau généré à 2ω en fonction de l'intensité à ω injectée dans le guide par le biais de deux Molectrons J3S10. Ceci permet de mesurer le rendement de SHG, qui va notamment nous renseigner sur la qualité de fabrication des guides. Les mesures expérimentales associées à ces deux montages sont détaillées dans les parties suivantes. Le choix du guide pour les expériences de SHG a été effectué suite à des mesures de transmission qui sont également décrites ci-après.

III.5.2 Mesures de transmission

Le choix du guide parmi les six à disposition sur la puce 1 présentée en Figure III.4 a ici été fait sur la base des transmissions mesurées. Elles correspondent au rapport entre les puissances mesurées respectivement en sortie et en entrée. Les guides sont numérotés de 1 à 6 en partant du haut sur la photographie de la Figure III.4.

Une première série de mesure réalisée avec un laser Hélium-Néon en polarisations croisées a fait ressortir le guide n°2, qui présente des transmissions d'un ordre de grandeur au-dessus de celles mesurées pour les autres guides. Ces mesures sont présentées dans le Tableau III.2.

Guide n°	1	2	3	4	5	6
P_{amont} (nW)	711 ± 3	711 ± 3	711 ± 3	711 ± 3	711	-
P_{aval} (nW)	1,4	14,5	1,6	3,4	0,2	-
Transmission (%)	0,19	2,03	0,23	0,48	0,02	-

Tableau III.2 : Mesures préliminaires de transmission des guides par utilisation d'un laser He-Ne.

Il n'a pas été possible d'injecter dans le guide 6 parce qu'il avait été endommagé par les premiers tests en mode pulsé à forte intensité. Si ces premières mesures donnent des transmissions très faibles, elles auront toutefois permis de sélectionner le guide le plus prometteur.

Les mesures ont ensuite été réalisées avec des lasers continus à 532 nm et à 1064nm, valeurs qui sont proches des longueurs d'onde de second harmonique et fondamentale respectivement qui avaient été calculées pour une SHG de type II dans le guide 2 micrométrique taillé selon l'axe X, ce qui a été présenté en Figure III.11. Les mesures de transmission ont alors été réalisées pour les deux polarisations qui interviendront, c'est-à-dire selon les axes y et z du cristal. L'injection a été améliorée, et les résultats de mesures sont résumés ci-dessous :

$$\begin{cases} T^{\omega}_{\exp,z} = 8,7\% \\ T^{\omega}_{\exp,y} = 6,3\% \\ T^{2\omega}_{\exp,z} = 26,4\% \\ T^{2\omega}_{\exp,y} = 18,5\% \end{cases} \qquad \text{(III.14)}$$

Les valeurs mesurées restent faibles, ce qui souligne la présence de fortes sources de pertes. Mais la nette amélioration vis-à-vis des valeurs du Tableau III.2 illustre le travail nécessaire sur l'injection afin d'obtenir des conditions idéales. Les transmissions des autres guides restent toutefois largement inférieures à celles du guide sélectionné.

Pour visualiser les différentes sources de pertes, nous avons placé une caméra CCD EO-5023C COLOR Edmund Optics au-dessus du guide dans lequel un faisceau est injecté. La mesure de l'intensité lumineuse est alors reliée aux pertes [125]. Un exemple de ces mesures est donné en Figure III.15.

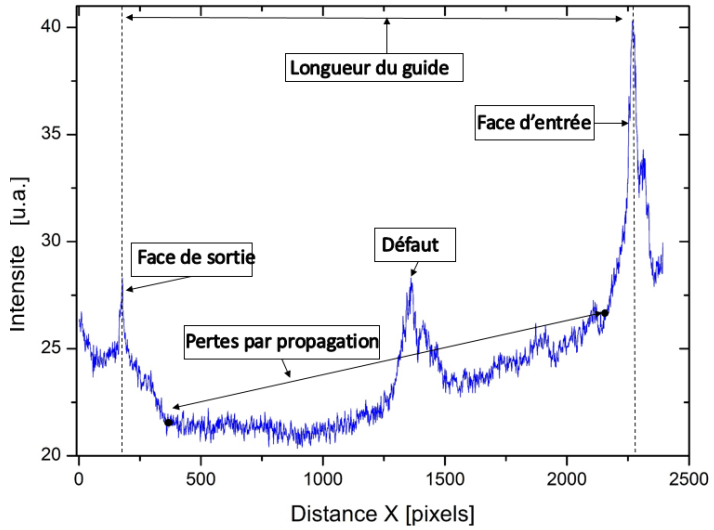


Figure III.15 : Intensité à 1064 nm mesurée au-dessus du guide ; les pics correspondent aux différentes sources importantes de pertes. La pente décroissante est liée aux pertes par propagation.

Ces mesures approximatives ont permis de remonter aux pertes dues aux efficacités de couplages des faces d'entrée et de sortie, données qui seront utilisées ultérieurement dans le calcul de l'intensité de SHG. Elles ont également permis d'estimer les pertes par propagation, qui sont estimées à 0,6db.cm^{-1} à 1064 nm et 1,6db.cm^{-1} à 532 nm.

Une caméra a également été utilisée pour vérifier que le mode obtenu en sortie de guide est bien le mode fondamental, puisque tous les calculs théoriques prennent en compte les indices effectifs associés à ce mode de propagation. Un exemple de photographie obtenue est donné en Figure III.16.

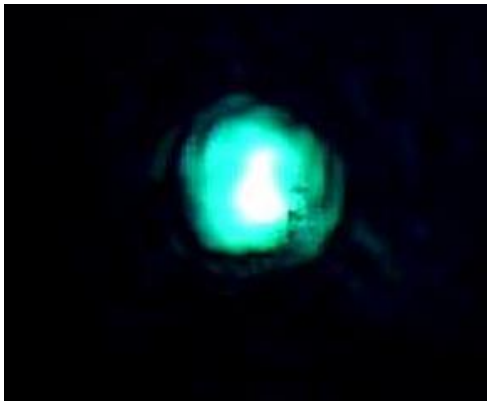


Figure III.16 : Cliché réalisé à la webcam du mode en sortie du guide 2. La section transverse du mode obtenu est proche de ce qui est attendu pour un mode de propagation fondamental.

Pour toutes les expériences d'optique non linéaire qui seront présentées dans la suite de ce chapitre seront systématiquement vérifiés la forme des modes de propagation, ceci afin de s'assurer que l'accord de phase est bien réalisé par biréfringence et n'est donc pas de type modal.

III.5.3 Mesures d'acceptance spectrale

Les mesures des transmissions ont permis d'identifier le guide au sein duquel les expériences d'optique non linéaire seront conduites. Il s'agit dans cette partie de mesures de l'acceptance spectrale de SHG, l'objectif étant de mettre à l'épreuve les prédictions théoriques de la Figure III.11 sur lesquelles est basée la conception des guides prévus pour la TPG.

III.5.3.1 Acceptance spectrale d'un guide taillé selon l'axe X du cristal de KTP

La mesure de l'acceptance spectrale est réalisée avec le montage A de la Figure III.14. La source de pompe est un OPG (TOPAS) accordable en longueur d'onde. L'intensité du faisceau pompe est fixée à 0,47 GW.cm^{-2}, et l'évolution du signal de second harmonique est tracée en fonction de la longueur d'onde de pompe autour de l'accord de phase, Figure III.17. Chaque mesure, tous les 0,5nm, est corrigée par la mesure simultanée de l'intensité de pompe pour pallier à l'instabilité de la source. Par conséquent, l'évolution théorique de l'intensité générée à 2ω est donnée par l'équation (I.29), la dépendance en longueur d'onde pouvant alors s'écrire :

$$I_{SHG}(\lambda_\omega) \propto \sin c^2\left(\frac{\Delta k(\lambda_\omega, d)L}{2}\right) \qquad \text{(III.15)}$$

avec

$$\Delta k\left(\lambda_\omega, d\right) = \frac{\omega}{c}\left[n_{eff}^{y}\left(\lambda_\omega, d\right) + n_{eff}^{z}\left(\lambda_\omega, d\right) - 2n_{eff}^{y}\left(\lambda_{2\omega}, d\right)\right] \qquad \text{(III.16)}$$

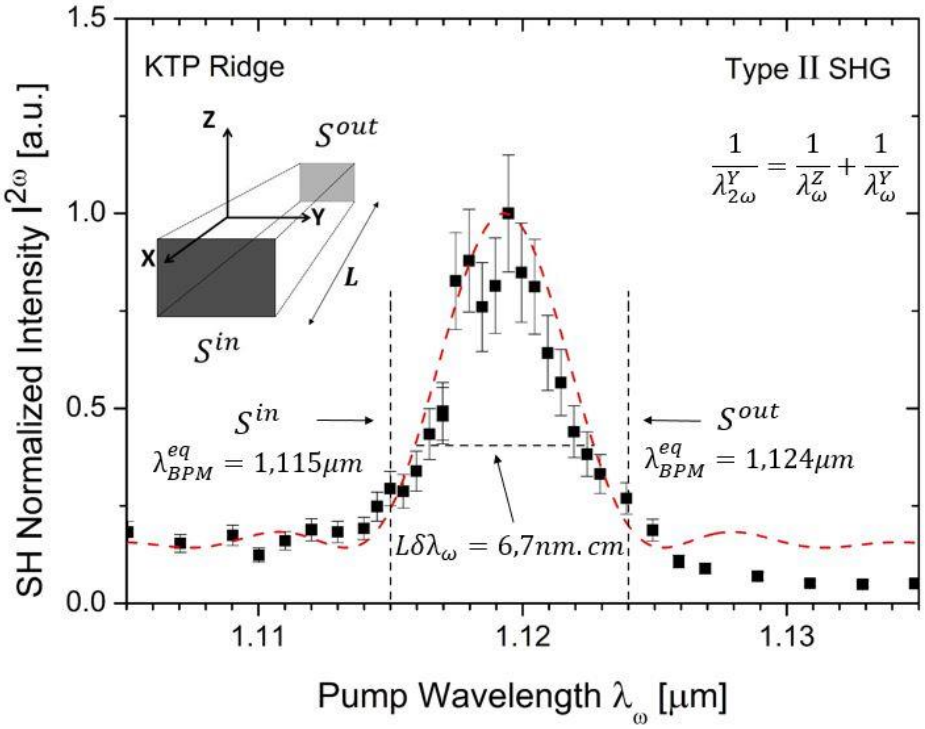


Figure III.17 : Evolution de l'intensité générée à 2ω en fonction de la longueur d'onde fondamentale dans un guide de longueur L=15,8mm. Les points noirs sont les données expérimentales. L'imprécision de mesure sur la longueur d'onde vaut 1nm ; elle est due à la calibration et à la lecture. La courbe en pointillés rouge est une interpolation réalisée à partir de l'équation (III.15). Les traits pointillés verticaux indiquent les longueurs d'onde d'accord de phase théoriques déduites des sections d'entrée et de sortie du guide, la correspondance étant donnée en Figure III.11. [117].

La mesure expérimentale donne une évolution en sinus cardinal carré d'une fonction non linéaire de la longueur d'onde de pompe, d'où l'asymétrie du pic. C'est donc en accord avec la modélisation donnée par l'équation (III.15). Le maximum du pic est atteint pour $\lambda_{\omega} = 1120nm$, ce qui correspond typiquement à un guide carré théorique de dimension transverse d=6,2µm selon la modélisation théorique présentée précédemment, *cf* le point X_1 de la Figure III.11. Les sections d'entrée (S_{in}) et de sortie (S_{out}) du guide, données ci-dessous, ont été mesurées sur des clichés de microscopie optique similaires à ceux de la Figure III.4.(b) :

$$\begin{cases} S_{in} = 43\mu m^2 \\ S_{out} = 35\mu m^2 \end{cases} \qquad \text{(III.17)}$$

Le guide étudié a donc une forme prismatique comme schématisé Figure III.17. Le fait que la section transverse ne soit pas constante le long du guide est le résultat d'un défaut de fabrication. Il peut être intervenu soit à l'étape de polissage, soit pendant la découpe du fait de l'usure de la lame. De plus, ces guides ne sont pas de section carrée. Nous allons donc approximer les sections réelles par des sections carrées de mêmes surfaces. Les longueurs d'onde

correspondantes sont alors déduites des calculs représentés sur la Figure III.11. Finalement, les prédictions théoriques sont :

$$\begin{cases} d_{in} = \sqrt{S_{in}} = 6,6\mu m \leftrightarrow \lambda_{BPM}^{in} = 1115nm \\ d_{out} = \sqrt{S_{out}} = 5,9\mu m \leftrightarrow \lambda_{BPM}^{out} = 1124nm \end{cases} \quad \text{(III.18)}$$

(BPM pour *birefringence phase matching*)

Ces valeurs de longueurs d'onde encadrent parfaitement le pic d'accord de phase de la Figure III.17, et la dimension transverse moyenne est proche de 6,2µm, qui est la valeur correspondant au pic d'accord de phase. L'accord entre théorie et expérience est donc excellent, ce qui valide les calculs réalisés à partir de la modélisation des indices effectifs. C'est un premier résultat qui consolide la confiance que nous avons vis-à-vis de cette modélisation.

L'acceptance théorique a également été calculée pour un guide de dimension transverse constante d=6,2µm. La largeur à 0,405 du maximum du pic obtenu est une constante pour une direction de propagation donnée, appelée tolérance spectrale. Elle vaut $L\delta\lambda_{\omega}^{th} = 0,65nm.cm$ pour le guide constant. La tolérance mesurée expérimentalement est environ 10 fois plus grande et vaut $L\delta\lambda_{\omega}^{\exp} = 6,7nm.cm$.

De la comparaison entre ces deux valeurs est déduite la longueur effective d'interaction, qui correspond à la longueur sur laquelle l'interaction a été effective. Elle est donnée par :

$$L_{eff} = L\,\delta\lambda_{\omega}^{th} / \delta\lambda_{\omega}^{\exp} = 1,54mm \quad \text{(III.19)}$$

Cela signifie que sur les 15,8mm de longueur de cristal, seulement 1,54mm sont effectivement mis à contribution lors du processus non linéaire. Un tel écart s'explique essentiellement par le gradient de section transverse le long de la direction de propagation du rayonnement. C'est donc par le biais de longueur effective que nous prendrons en compte ce gradient. Ceci nous renseigne également sur la nécessité de se rapprocher le plus possible de guides de section transverse constante lors de la fabrication.

De plus, les indices effectifs n_{eff}^{y} et n_{eff}^{z} utilisés pour les calculs théoriques sont validés par cette série de mesure. La même étude a également été réalisée au sein de guides taillés selon l'axe y du cristal afin de corroborer ces premiers résultats, notamment par la mise en jeu des indices effectifs n_{eff}^{x}. Elle est présentée dans la partie suivante.

III.5.3.2 Acceptance spectrale d'un guide taillé selon l'axe Y du cristal de KTP

Le montage utilisé pour cette mesure est équivalent à celui décrit dans la partie précédente. Le guide au sein duquel la SHG est étudiée ici a été fabriqué sur la puce 4. Comme mentionné dans la partie III.3, le procédé de fabrication a donc bénéficié du retour d'expérience des premières générations. La dimension transverse moyenne mesurée de ce guide est d=5,44µm. La longueur d'onde d'accord de phase théorique associée est donnée par le point Y_2 de la courbe reproduite sur la Figure III.11 et vaut $\lambda_{calc}^{\omega,PM} = 1042nm$. La courbe d'acceptance expérimentale est présentée en Figure III.18. L'allure de la courbe est une nouvelle fois en sinus cardinal carré. La valeur correspondant au maximum d'intensité du faisceau à 2ω est $\lambda_{\exp}^{\omega,PM} = 1037nm$. L'accord obtenu avec la théorie est donc une nouvelle fois très bon, ce qui vient corroborer les mesures précédentes réalisées sur le guide taillé selon l'axe X de KTP présent sur la première puce, et valide la modélisation de l'indice effectif n_{eff}^{x}.

Une analyse plus développée *via* la mesure précise des sections transverses d'entrée et de sortie ne sera pas détaillée dans ce manuscrit, mais elle a conduit à des observations similaires à ce qui a été obtenu dans les expériences précédentes (voir Figure III.17).

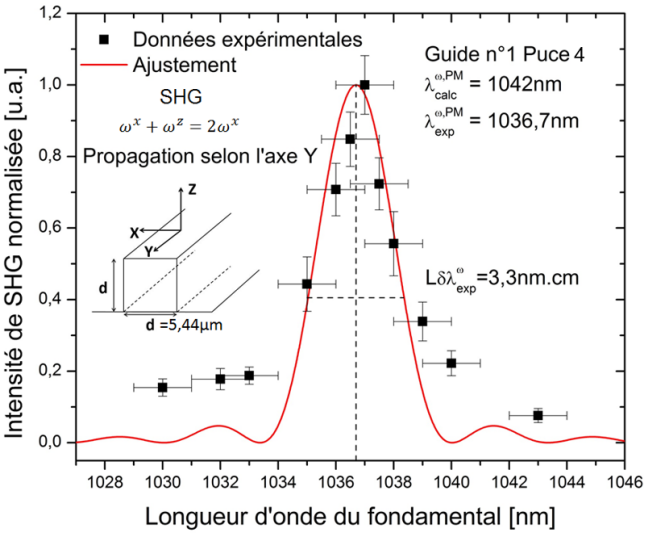


Figure III.18 : Courbe d'acceptance spectrale de SHG mesurée dans un guide taillé selon l'axe Y du cristal de KTP de longueur L=5mm. La courbe rouge est un ajustement par une fonction sinus cardinal carré. Les points noirs sont les données expérimentales.

Cette mesure de SHG dans un guide Y aura permis de vérifier la tenue du modèle en regard de plusieurs expériences. Toutefois, la caractérisation complète de la SHG a été réalisée dans le guide 2 de la puce 1, et a conduit à une publication [117]. La partie suivante s'attachera donc à décrire les mesures quantitatives de l'intensité de SHG générée au sein du guide taillé selon l'axe X du cristal, dans les conditions d'accord de phase déterminées par la mesure de l'acceptance spectrale.

III.5.4 Etude du rendement de conversion dans un guide taillé selon l'axe X du cristal de KTP

L'étude du rendement de conversion est réalisée à l'accord de phase, dans le guide dont la caractérisation est montrée Figure III.17. La longueur d'onde du faisceau de pompe est donc fixée à $\lambda_\omega = 1120nm$. L'intensité correspondante est ajustée par le biais de la combinaison de la lame demi-onde et du prisme Glan-Laser présentée sur le schéma du dispositif expérimental de la Figure III.14.

L'intensité du faisceau pompe est mesurée par le Molectron J3S10 placé en amont du cristal, grâce à des densités neutres dont la transmission est calibrée à la longueur d'onde de travail. L'intensité générée à 2ω est mesurée elle aussi avec un Molectron J3S10 placé en sortie de cristal ; elle est tracée Figure III.19 en fonction de l'intensité de pompe variant de 0,2 à 22,5 GW.cm^{-2}.

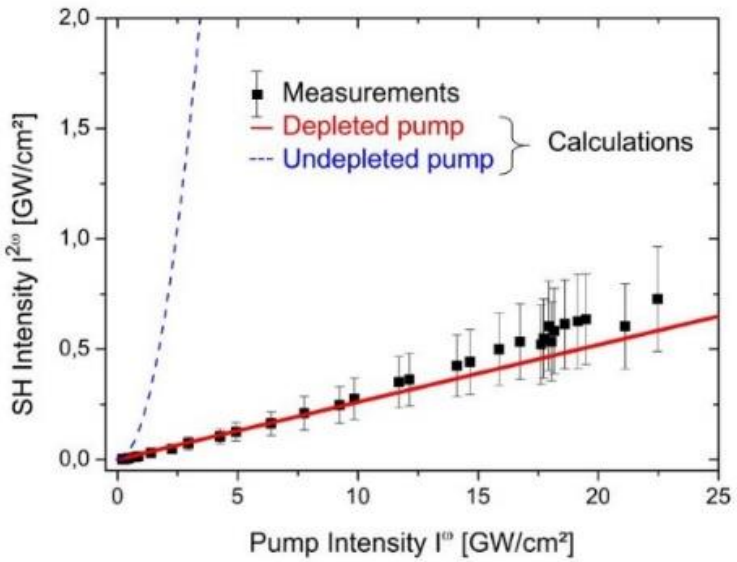


Figure III.19 : Intensité du faisceau de second harmonique générée en fonction de l'intensité de pompe. Les points noirs sont les mesures expérimentales. Le trait plein rouge est un calcul dans le régime de la pompe dépeuplée réalisé sans paramètre ajustable. Le trait pointillé bleu est un calcul dans le régime de la pompe non dépeuplée. [117].

Le rendement de conversion est défini comme le rapport de l'intensité générée à 2ω obtenue en sortie de cristal divisée par l'intensité de pompe incidente, soit :

$$\eta_{SHG} = \frac{I_{2\omega}(L)}{I_\omega(0)} \qquad \text{(III.20)}$$

La valeur maximale atteinte est mesurée à $\eta_{\max}^{SHG} = 3,4\%$. Cette faible valeur du rendement de SHG va *a priori* dans le sens de l'approximation de la pompe non dépeuplée pour le calcul correspondant. Mais en fait, le calcul détaillé ci-dessous montre que le régime adapté est celui de la pompe dépeuplée. Ceci traduit le fait que les photons à 2ω sont produits de façon très efficaces, mais que ces photons sont perdus en grand nombre au cours de la propagation du fait des pertes. L'intensité générée dans le régime de la pompe dépeuplée est donnée en équation (I.34). Elle s'écrit ici, avec les paramètres de notre système :

$$I^{2\omega}(L) = I^{\omega}(0)T^{\omega}T^{2\omega}th^2\left(\frac{\omega\chi_{24}^{(2)}(2\omega)}{2cn_{eff}(2\omega)}\sqrt{\frac{2T^{\omega}I^{\omega}(0)}{\varepsilon_0 cn_{eff}(\omega)}}L\right) \qquad \text{(III.21)}$$

Les transmissions T^{ω} et $T^{2\omega}$ sont déduites des mesures données en équation (III.14). La transmission à ω est prise comme la moyenne des transmissions $T_{\exp,z}^{\omega}$ et $T_{\exp,y}^{\omega}$ corrigée par le coefficient de couplage de la face de sortie $T_{out}^{\omega} = 0,88$ déduit d'une mesure, dont le principe a été vu Figure III.15, et de la transmission de Fresnel moyenne. Ainsi, l'intensité de pompe prise dans le calcul correspond à l'intensité en entrée de cristal qui est mesurée lors de l'expérience. La transmission est alors calculée selon :

$$T^{\omega} = \frac{T_{\exp,z}^{\omega}}{T_{Fresnel}^{\omega,moy}T_{out}^{\omega}} \qquad \text{(III.22)}$$

avec

$$T_{Fresnel}^{\omega,moy} == \frac{T_{Fresnel}^{\omega,y} + T_{Fresnel}^{\omega,z}}{2} \qquad \text{(III.23)}$$

où

$$\begin{cases} T_{Fresnel}^{\omega,y} = \dfrac{4n_{eff}^{y}(\omega)}{[1+n_{eff}^{y}(\omega)]^2} \\ T_{Fresnel}^{\omega,z} = \dfrac{4n_{eff}^{z}(\omega)}{[1+n_{eff}^{z}(\omega)]^2} \end{cases} \qquad \text{(III.24)}$$

En revanche, la transmission à 2ω est déduite uniquement à partir de la mesure de $T_{\exp,y}^{2\omega}$ puisque les photons à 2ω sont tous polarisés selon l'axe y du cristal, corrigée par le coefficient de couplage de la face d'entrée $T_{in}^{2\omega} = 0,73$ et de la transmission de Fresnel $T_{Fresnel}^{2\omega,y}$. Ainsi, l'intensité calculée correspond à ce qui est mesuré en sortie de cristal lors de l'expérience.

La transmission à 2ω est donc calculée selon :

$$T^{2\omega} = \frac{T_{\exp,y}^{2\omega}}{T_{Fresnel}^{2\omega,y} T_{in}^{2\omega}} \tag{III.25}$$

où

$$T_{Fresnel}^{2\omega,y} = \frac{4n_{eff}^{y}(2\omega)}{[1+n_{eff}^{y}(2\omega)]^2} \tag{III.26}$$

Le coefficient non linéaire $\chi_{24}^{(2)}(2\omega)$ est calculé à partir de la relation de Miller (I.23) et de la valeur tirée de [16]. L'indice $n_{eff}(\omega)$ est lui aussi pris comme la moyenne des indices $n_{eff}^{y}(\omega)$ et $n_{eff}^{z}(\omega)$ dans le calcul de l'intensité générée donnée en équation (III.21). Enfin, la longueur d'interaction est prise comme la longueur effective déduite de la mesure de l'acceptance spectrale donnée en équation (III.19).

L'ensemble des données utilisées pour le calcul de l'intensité générée est donné Tableau III.3.

	T [%]	n_{eff}	$\chi_{24}^{(2)}$ [pm.V^{-1}]
ω	28,0	1,7815	-
2ω	9,3	1,8779	5,18

Tableau III.3 : Données utilisées calculer l'intensité SHG donnée Figure III.19.

L'accord obtenu entre le calcul et l'expérience est excellent. Le calcul étant réalisé sans paramètre ajustable, cela valide à la fois la modélisation par les indices effectifs, le coefficient non linéaire mesuré en 1999 [25] et les mesures des pertes. Le fait que le régime de la pompe dépeuplée soit atteint signifie que le processus est intrinsèquement efficace, mais les fortes pertes du guide de la puce de première génération conduisent à un rendement maximal faible. En considérant seulement les pertes de Fresnel, le rendement théorique maximal pourrait atteindre 86%, ce qui offre une marge de progression considérable.

Les puces fabriquées à la suite de cette étude ont par conséquent vu la qualité optique des faces améliorées, l'étape de polissage mieux adaptée au cristal de KTP, et une amélioration globale de la qualité des échantillons comme vu en section III.3. De plus, l'équipe a soulevé le problème de pertes optiques par onde évanescente et couplage plasmonique liés à la couche d'or. Afin de limiter les pertes dues à cet effet, l'épaisseur de la couche de silice a été augmentée de 300nm à 600nm. Depuis, de nouveaux calculs ont été réalisés. Ils seront détaillés dans la partie suivante.

Cette étude a donc permis de démontrer qu'il est possible de sélectionner les longueurs d'onde d'accord de phase en concevant un guide micrométrique de direction et de section transverse adaptées. Les calculs théoriques présentés en Figure III.12 nous ont donc orienté vers la fabrication de guides d'onde taillés selon l'axe Y de KTP, de dimension transverse proche de 6,2µm afin de générer des triplets de photons autour la bande télécom. Un des guides fabriqués selon ces directives a été caractérisé par le biais de l'étude de la THG qui est le processus inverse de la TPG. C'est le sujet de la partie suivante.

III.6 Etude de la génération troisième harmonique

Le guide choisi pour cette étude est de dimension transverse proche de 6,2µm. Il est situé sur la puce 5 présentée Figure III.7. La longueur du guide est ici L=8,6mm. Le choix de la THG de type II $\omega^x + \omega^z + \omega^z \rightarrow 3\omega^x$ permettra, dans le cas de la TPG $3\omega^x \rightarrow \omega^x + \omega^z + \omega^z$, de séparer en polarisation deux photons triplets du dernier. Cela conduit à une simplification des mesures quantiques de coïncidences qui seront évoquées dans le chapitre V.

III.6.1 Etudes préliminaires

Le montage utilisé pour la caractérisation optique de ce guide est du même acabit que celui présenté dans la partie précédente. Une représentation simplifiée est proposée Figure III.20. Le faisceau laser en sortie du générateur paramétrique optique TOPAS est intrinsèquement accordable en longueur d'onde. Le faisceau fondamental à ω incident est mesuré grâce au picojoulemètre Molectron J3S10 placé en sortie de guide ; il a été calibré par une première série de mesure en faisant varier l'intensité incidente grâce à des densités neutres calibrées, le faisceau à 3ω étant coupé par un filtre passe haut. Le même détecteur est utilisé pour collecter le faisceau généré à 3ω, un filtre passe-bande Thorlabs permettant d'éliminer les photons de pompe.

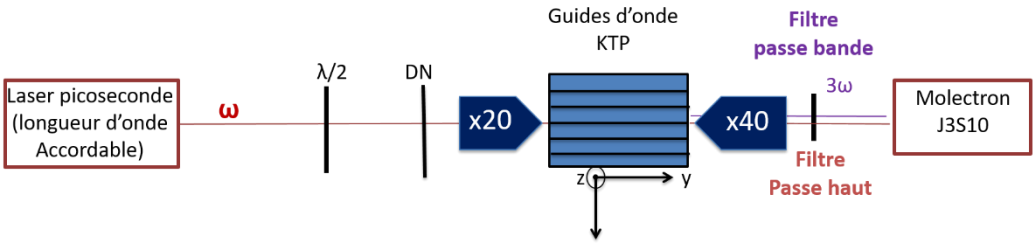
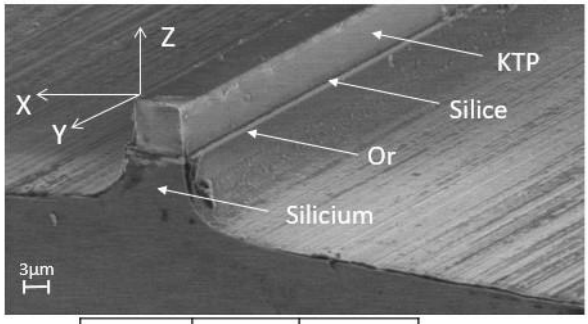


Figure III.20 : Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation optique non linéaire de la THG. DN : densité neutre.

La mesure des sections d'entrée et de sortie du guide, qui permettent de déduire la dimension transverse moyenne notée d_{avg}, a été effectuées par mesures au microscope électronique à balayage corroborées par des mesures en microscopie optique x100. Ceci a permis d'être plus précis dans l'estimation de la taille du guide, certains détails apparaissant plus nettement suivant l'une ou l'autre technique. Ces données géométriques sont données Figure III.21.



	Section S (µm²)	Hauteur h (µm)	Largeur W (µm)
In	39.5	5.94	6.65
Out	36.7	5.84	6.29

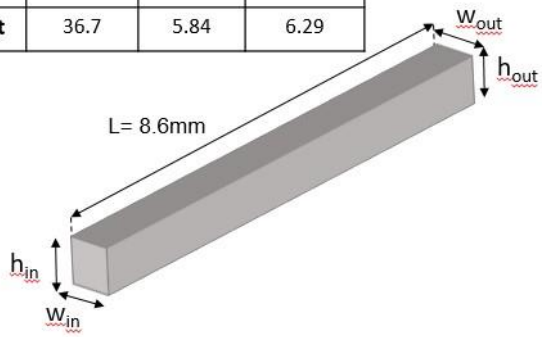


Figure III.21 : Mesure des sections d'entrée et de sortie du guide taillé selon l'axe Y de KTP utilisé pour les expériences de THG, et schématisation de la forme prismatique du guide.

Ces mesures montrent bien l'amélioration du procédé de fabrication par rapport à celui qui avait été utilisé pour les expériences de SHG. En effet, la hauteur du guide est presque constante le long de l'axe de propagation, la section transverse du guide s'approche d'une section carrée, et la largeur ne diffère que d'environ 10% entre les faces d'entrée et de sortie. Par ailleurs, l'état

de surface des faces d'entrée et de sortie soulignent l'obtention de guides de très bonne qualité optique.

Les sections ainsi mesurées permettent de déduire les longueurs d'ondes d'accord de phase de la THG de type 2 *via* l'équation (III.10) en déduisant les dimensions transverses par la racine carrée des sections mesurées. Ainsi il vient :

$$\begin{cases} S_{in} = 39,5\mu m^2 \\ S_{out} = 36,7\mu m^2 \\ \left(\lambda_{\omega}^{PM}\right)_{out} = 1599nm \\ \left(\lambda_{\omega}^{PM}\right)_{in} = 1590nm \end{cases} \quad \text{(III.27)}$$

Ce guide apparait donc prometteur pour une utilisation en tant que générateur de triplets de photons à 1596 nm, à partir d'un faisceau pompe à 532nm. Ceci peut être attesté de façon plus précise en considérant la dimension transverse moyenne calculée ci-dessous :

$$d_{avg} = \sqrt{\frac{S_{in} + S_{out}}{2}} = 6,17\mu m \quad \text{(III.28)}$$

En effet, la longueur d'onde d'accord de phase théorique est $\lambda_{calc}^{PM} = 1594nm$ lorsqu'elle est calculée en rentrant la valeur de $d_{avg} = 6,17\mu m$ dans l'équation (III.10).

Afin d'affiner l'analyse vis-à-vis de ce qui a été fait précédemment, la dispersion de l'indice effectif modélisée par l'équation de dispersion (III.7) a été calculée pour un guide de dimension transverse $d_{avg} = 6,17\mu m$ supposée constante. Les coefficients d'interpolation correspondant sont rassemblés dans le Tableau III.4.

i	$A_i(nm^{-1})$	B_i	$C_i(nm)$	D_i	$E_i(nm)$	$F_i(nm^{-1})$	G_i	H_i	I_i
x	0.4615	-0.034	1.274	2.469	1.474	0.2229	1.731	0.072	0.804
z	2.136	-0.028	1.547	2.286	0.4037	0.149	1.928	0.117	0.750

Tableau III.4 : Coefficients de la relation de dispersion des indices effectifs (III.7) d'un guide de dimension transverse $d_{avg} = 6,17\mu m$ taillé selon l'axe Y du cristal de KTP.

Les indices effectifs du guide peuvent par conséquent être connus avec une grande précision, et donc permettre de calculer l'acceptance théorique en adaptant l'équation (I.53) à la situation

expérimentale. La dépendance en longueur d'onde de pompe λ_ω de l'intensité générée à $\lambda_{3\omega}$ s'écrit :

$$I_{THG}(\lambda_\omega) \propto \sin c^2\left(\frac{\Delta k(\lambda_\omega, d)L}{2}\right) \qquad \text{(III.29)}$$

avec

$$\Delta k\left(\lambda_\omega, d\right) = \frac{\omega}{c}\left[n_{eff}^{x}\left(\lambda_\omega, d\right) + n_{eff}^{z}\left(\lambda_\omega, d\right) + n_{eff}^{z} - 3n_{eff}^{x}\left(\lambda_{3\omega}, d\right)\right] \qquad \text{(III.30)}$$

Ces prédictions seront comparées à la mesure de l'acceptance spectrale dans la section suivante.

III.6.2 Acceptance spectrale

La mesure de l'acceptance spectrale est réalisée en utilisant le montage expérimental présenté Figure III.20. Elle repose sur l'accordabilité de la source de pompe qui est un OPG (TOPAS). L'intensité de pompe est ici fixée à 0,3 GW.cm^{-2}. L'intensité du faisceau à 3ω généré est mesurée en fonction de la longueur d'onde du faisceau pompe à ω ; elle est divisée par l'intensité de pompe pour chaque mesure afin de réduire l'impact de l'instabilité de la source. L'incertitude sur la longueur d'onde est de 1nm, due à la calibration du spectromètre et à l'incertitude de lecture. L'incertitude sur la valeur de l'intensité est déduite par propagation des erreurs à partir des mesures des intensités réalisées sur l'oscilloscope. La courbe ainsi obtenue est donnée Figure III.22.

L'allure de la courbe expérimentale est bien un sinus cardinal carré, comme prévu par la théorie. De plus, la longueur d'onde d'accord de phase mesurée expérimentalement, $\lambda_{PM}^{\exp} = 1594nm$, est exactement la valeur prédite par la théorie. En outre, la largeur de la courbe s'explique une nouvelle fois par la forme prismatique du guide, les valeurs théoriques correspondant aux sections d'entrée et de sortie encadrant parfaitement le pic d'accord de phase. Cette mesure valide donc une nouvelle fois la modélisation des indices effectifs.

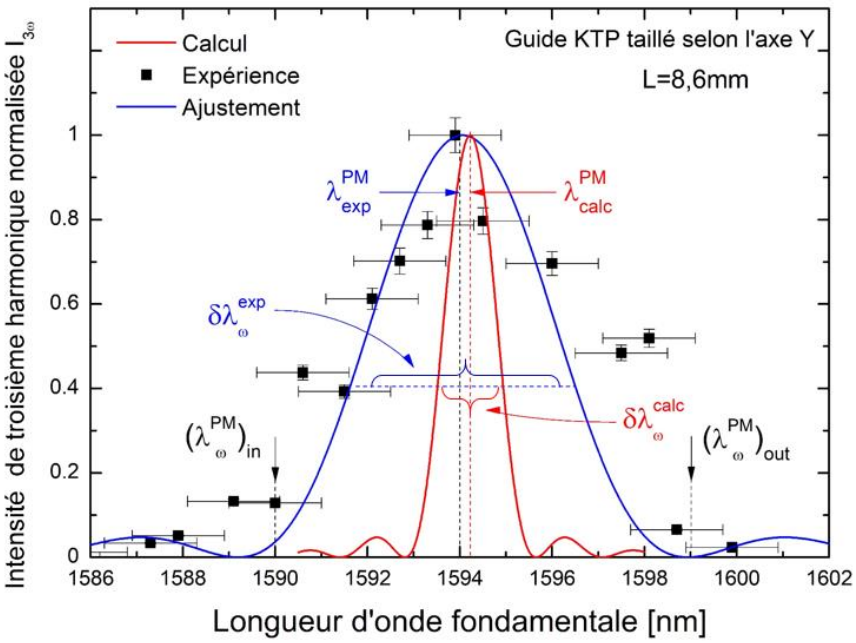


Figure III.22 : Acceptance spectrale de la THG de type II réalisée au sein d'un guide de longueur L=8,6mm taillé selon l'axe Y du cristal. Les carrés noirs sont les points expérimentaux. La courbe bleue est un ajustement par la fonction sinus cardinal carré. La courbe rouge correspond à l'acceptance théorique calculée pour un guide de dimension transverse $d_{avg} = 6{,}17\mu m$ constante. Les traits pointillés noirs indiquent les longueurs d'onde d'accord de phase qui correspondent aux sections transverses d'entrée et de sortie données en (III.27).

La largeur mesurée à 0,405 du maximum est $L\delta\lambda_{\omega}^{\exp} = 4{,}75 nm.cm$. En revanche, la valeur déduite du pic théorique obtenu pour un guide de dimension transverse supposée constante est $L\delta\lambda_{\omega}^{th} = 1{,}5 nm.cm$. C'est à partir de ces deux données qu'il est possible d'estimer la valeur de longueur effective d'interaction L_{eff}, qui est la longueur pour laquelle l'accord de phase est maintenu tout du long. Elle s'obtient par :

$$L_{eff} = L\frac{\delta\lambda_{\omega}^{calc}}{\delta\lambda_{\omega}^{\exp}} = 2{,}7mm \qquad \text{(III.31)}$$

Cette valeur est donc inférieure à la longueur géométrique $L = 8{,}6mm$. Cette différence est principalement dû au gradient de désaccord de phase le long de l'axe du guide prismatique.

Les conditions d'accord de phase de la THG ayant été déterminées lors de la mesure de l'acceptance spectrale, l'étape suivante consiste à fixer la longueur d'onde à la valeur de l'accord de phase et à mesurer le rendement de conversion

III.6.3 Rendement de conversion

III.6.3.1 Prise en compte des pertes optiques par évanescence dans la couche d'or

Si l'étude de la SHG a soulevé la question des pertes par couplage plasmonique, qui a conduit à l'augmentation de l'épaisseur de la couche de silice de 300nm à 600nm, n'avait pas à l'époque été considérée la présence de pertes par évanescence tout au long de la propagation des champs dans le guide. Ces pertes dues à la proximité de la couche d'or vis-à-vis du guide d'onde diélectrique sont en fait importantes, particulièrement pour les grandes longueurs d'onde.

La modélisation de ces pertes a été réalisée par Mathieu Chauvet grâce au logiciel RSoft pour les champs à ω et à 3ω et les directions de polarisation respectivement selon les axes x et z du cristal, les ondes se propageant dans la direction y. Seule l'absorption linéaire a été considérée ici, l'absorption à 2 photons pouvant être négligée dans nos expériences de THG. S'il n'y a pas de différence significative obtenue suivant la polarisation, les pertes calculées sont trois fois plus fortes à ω qu'à 3ω. Un exemple de courbe obtenue lors de ces simulations est donné Figure III.23.

De ces simulations sont déduits les coefficients de pertes par évanescence en décroissance exponentielle, soit :

$$\begin{cases} \beta_{\omega} = 0,3cm^{-1} \\ \beta_{3\omega} = 0,1cm^{-1} \end{cases} \qquad \text{(III.32)}$$

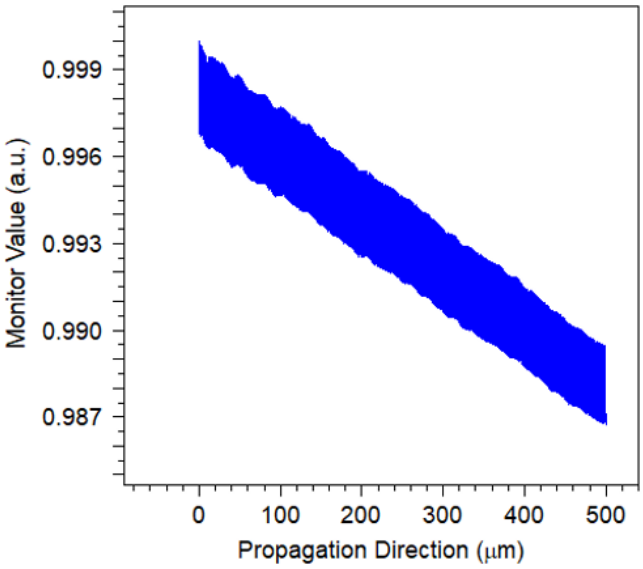


Figure III.23 : Simulation RSoft de la décroissance de l'intensité d'un champ à ω par onde évanescente en fonction de la distance parcourue dans le cristal, réalisée par Mathieu Chauvet à Femto-ST. Les coefficients de pertes sont déduits de ces calculs. La décroissance parait linéaire car la longueur d'interaction considérée ici est très faible (500µm).

La THG directe est supposée réalisée dans l'approximation de la pompe non dépeuplée. En toute rigueur, la section du guide n'est pas constante le long de la propagation, comme indiqué Figure III.21. Les indices effectifs et les conditions d'accord de phase varient donc lors de la propagation. A longueur d'onde de pompe fixée, l'interaction n'est donc pas rigoureusement en accord de phase partout le long de la direction de propagation Y du guide. Le calcul sera alors réalisé en approximant le guide comme ayant une section constante permettant l'accord de phase sur une longueur d'interaction prise comme la longueur effective déduite des mesures d'acceptance spectrale et donnée en équation (III.31). Il vient alors pour l'amplitude complexe de l'onde de troisième harmonique $E_{3\omega}^{X}$ compte tenu de l'équation (I.50) :

$$\frac{\partial E_{3\omega}^{X}(Y)}{\partial Y} = j\frac{\pi}{n_x(3\omega)\lambda_{3\omega}\cos^2\left(\rho(3\omega)\right)}\chi_{eff}^{(3)}\left(3\omega\right)E_{\omega}^{X}(Y)E_{\omega}^{Z}(Y)E_{\omega}^{Z}(Y) \qquad \text{(III.33)}$$

D'autre part, la modélisation des pertes par onde évanescente donne une dépendance en exponentielle décroissante de l'intensité avec la distance de propagation Y, soit :

$$I_{\omega,3\omega}(Y) = I_{\omega,3\omega}(0)\exp\left(-\beta_{\omega,3\omega}Y\right) \qquad \text{(III.34)}$$

Il est alors possible d'en déduire les amplitude complexes des champs électriques des ondes en interaction pour $Y = L_{eff}$, soit :

$$E_{\omega}^{X,Z}(L_{eff}) = E_{\omega}^{X,Z}(0)\sqrt{\exp\left(-\beta_{\omega}L_{eff}\right)} \qquad \text{(III.35)}$$

et

$$E_{3\omega}^{X}(L_{eff}) = j\Omega\Gamma\left(L_{eff}\right) \qquad \text{(III.36)}$$

avec

$$\begin{cases} \Omega = E_{\omega}^{X}(0)\left[E_{\omega}^{Z}(0)\right]^2\dfrac{\pi}{n_{3\omega}^{X}\lambda_{3\omega}\cos^2\left(\rho(3\omega)\right)}\chi_{eff}^{(3)}\left(3\omega\right) \\ \Gamma\left(L_{eff}\right) = \sqrt{\exp\left(-\beta_{3\omega}L_{eff}\right)}\displaystyle\int_0^{L_{eff}}\left[\exp\left(-\beta_{\omega}Y\right)\right]^{3/2}dY \end{cases} \qquad \text{(III.37)}$$

Le terme Ω rend compte de la THG et le terme $\Gamma\left(L_{eff}\right)$ des pertes à ω et 3ω. Pour une propagation selon l'axe Y qui est un axe du repère diélectrique, l'angle de double réfraction est nul, soit $\rho(3\omega)=0$, ce qui donne pour Ω :

$$\Omega = E_{\omega}^{X}(0)\left[E_{\omega}^{Z}(0)\right]^{2}\frac{\pi}{n_{3\omega}^{X}\lambda_{3\omega}}\chi_{eff}^{(3)}\left(3\omega\right) \qquad \text{(III.38)}$$

Le calcul de $\Gamma\left(L_{eff}\right)$ donne :

$$\Gamma(L_{eff}) = \sqrt{\exp\left(-\beta_{3\omega}L_{eff}\right)}\left[-\frac{2}{3}\exp\left(-3\beta_{\omega}Y/2\right)\right]_{0}^{L} = \frac{2}{3}\sqrt{\exp\left(-\beta_{3\omega}L_{eff}\right)}\left[\frac{1-\exp\left(-3\beta_{\omega}L_{eff}/2\right)}{\beta_{\omega}}\right]$$

(III.39)

Le champ électrique de troisième harmonique juste avant la sortie du guide s'écrit alors :

$$E_{3\omega}^{X}(L_{eff}) = j\frac{2}{3}\frac{\pi}{n_{3\omega}^{X}\lambda_{3\omega}}\chi_{eff}^{(3)}\left(3\omega\right)\sqrt{\exp\left(-\beta_{3\omega}L_{eff}\right)}\left[\frac{1-\exp\left(-3\beta_{\omega}L_{eff}/2\right)}{\beta_{\omega}}\right]E_{\omega}^{X}(0)\left[E_{\omega}^{Z}(0)\right]^{2} \qquad \text{(III.40)}$$

Le passage des amplitudes complexes des champs électriques aux intensités se fait en utilisant l'équation suivante adaptée de l'équation (I.5) :

$$I_{\omega,3\omega} = \frac{n_{\omega,3\omega}}{2}\sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}\left|E_{\omega,3\omega}\right|^{2} \qquad \text{(III.41)}$$

Il vient alors en introduisant également les coefficients de Fresnel $T_{\omega,3\omega}$:

$$I_{3\omega}(L) = \frac{16}{9}\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}\frac{\pi^2}{\lambda_{3\omega}^2}\left(T_{\omega}^{z}\right)^{2}\left(T_{\omega}^{x}\right)\left(T_{3\omega}^{x}\right)\frac{\left(\chi_{eff}^{(3)}\left(3\omega\right)\right)^{2}}{n_{3\omega}^{X}n_{\omega}^{X}\left(n_{2\omega}^{Z}\right)^{2}}\exp\left(-\beta_{3\omega}L_{eff}\right)\left[\frac{1-\exp\left(-3\beta_{\omega}L_{eff}/2\right)}{\beta_{\omega}}\right]^{2}\left[I_{\omega}\left(0\right)\right]^{3}$$

(III.42)

Il est à remarquer ici que les pertes par couplage ont été négligées du fait de l'amélioration de l'état de surface des guides par rapport à ceux qui avaient été considérés pour les expériences de SHG ont été faites.

Le passage aux énergies se fait en utilisant l'équation suivante adaptée de l'équation (I.67) :

$$I_{\omega,3\omega} = \frac{\varepsilon_{\omega,3\omega}}{\frac{\tau_{\omega,3\omega}}{2} W_{\omega,3\omega}^2 \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2}} \qquad \text{(III.43)}$$

Compte tenu des liens entre les caractéristiques des faisceaux à ω et 3ω donnés en équation (I.69), il vient :

$$\varepsilon_{3\omega}(L) = \frac{512}{27\pi\sqrt{3}} \frac{\mu_0}{\varepsilon_0} \frac{\left(T_\omega^z\right)^2 \left(T_\omega^x\right)\left(T_{3\omega}^x\right)}{\lambda_{3\omega}^2 \left(\tau_\omega W_\omega^2\right)^2} \frac{\left(\chi_{eff}^{(3)}(3\omega)\right)^2}{n_{3\omega}^X n_\omega^X \left(n_{2\omega}^Z\right)^2} \exp\left(-\beta_{3\omega} L_{eff}\right) \left[\frac{1-\exp\left(-3\beta_\omega L_{eff}/2\right)}{\beta_\omega}\right]^2 \left[\varepsilon_\omega(0)\right]^3$$

(III.44)

L'application numérique se fait avec $L_{eff} = 2,87mm$ et les données rassemblées dans le Tableau III.5 :

	λ [nm]	$\chi_{16}^{(3)}$ [m²V⁻²]	τ [ps]	W [µm]	T^z	T^x	β [cm⁻¹]	n^X	n^Z
ω	1594	-	15	2,5	0,92	0,93	0,3	1,7205	1,8067
3ω	531,3	$8,05.10^{-22}$	-	-	-	0,92	0,1	1,7780	-

Tableau III.5 : Données utilisées dans le calcul de l'énergie du faisceau de troisième harmonique en fonction de l'énergie de pompe. Le rayon du faisceau est déduit des simulations RSoft. Le coefficient $\chi_{16}^{(3)}$ est calculé à partir des relations de Miller et de la valeur mesurée tirée de [25].

Le résultat du calcul est comparé aux données expérimentales présentées en Figure III.24 au sein de la partie suivante.

III.6.3.2 Mesure de l'énergie du faisceau de troisième harmonique

L'énergie du faisceau généré à 3ω obtenue en sortie de guide est mesurée en fonction de l'énergie de pompe qui est atténuée par des densités neutres successives et varie de 0,42 µJ à 2,0 µJ. L'incertitude sur l'énergie du fondamental ε_ω est obtenue par propagation des erreurs sur la calibration et la lecture. Elle est bien plus grande que l'incertitude sur l'énergie de troisième harmonique $\varepsilon_{3\omega}$, puisqu'il s'agit d'incertitudes absolues, les incertitudes relatives étant comparables. Les résultats de mesure sont comparés au calcul théorique Figure III.24.

L'accord obtenu entre théorie et expérience est vraiment excellent, ce qui confirme que les approximations sur lesquelles s'appuie la modélisation sont adéquates. De plus, cela renforce grandement la confiance en la modélisation par le biais des indices effectifs ainsi qu'en la mesure des coefficients non linéaires [25]. Le rendement maximal mesuré est de 3,2%, ce qui est supérieur aux 2,4% qui avaient été obtenus dans le cas du cristal massif de KTP de 1,1mm de long [25]. C'est un très bon résultat pour une THG directe, c'est-à-dire qui sollicite les éléments du tenseur de susceptibilité électrique d'ordre 3. En prenant en compte la différence de longueur des cristaux, les rendements mesurés sont donc comparables à ceux obtenus pour un cristal massif. En revanche, la longueur d'interaction peut augmenter jusqu'à plusieurs centimètres dans le cas des guides grâce au confinement qui empêche toute divergence du rayonnement. De plus, des simulations récentes de pertes par onde évanescente ont montré qu'une épaisseur de la couche de silice d'environ 2µm permettrait de réduire drastiquement ces pertes. Les guides d'onde monocristallins ont donc un fort potentiel pour la THG, et par extension pour la TPG.

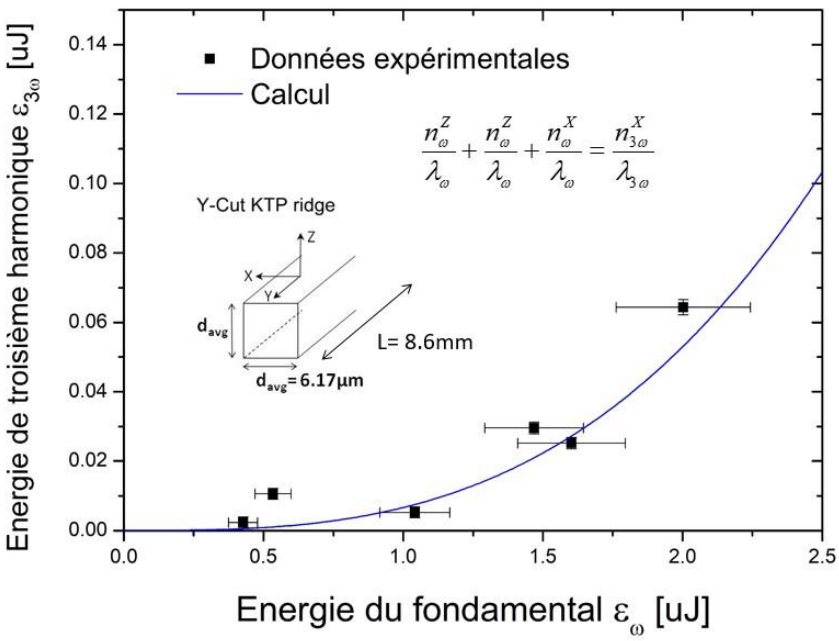


Figure III.24 : Evolution de l'énergie générée $\varepsilon_{3\omega}$ en fonction de l'énergie du fondamental ε_{ω}. Les points noirs correspondent aux mesures. La courbe bleue est un calcul réalisé sans paramètre ajustable à partir des données qui figurent dans le Tableau III.5.

III.7 Conclusion

Ce chapitre était dévolu à l'étude de guides d'onde monocristallins taillés en arête. L'objectif principal est de concevoir un générateur de triplets de photons par fluorescence paramétrique d'ordre 3 qui soit efficace, en confinant fortement la lumière tout en réalisant l'accord de phase par biréfringence. L'état de l'Art dans lequel s'inscrit cette innovation technologique a, dans un premier temps, permis de contextualiser l'étude et de mettre en exergue le choix des procédés de fabrication réalisés à l'Institut Femto-ST de Besançon. Ensuite a été décrite la modélisation de l'effet du confinement optique par le biais de l'introduction des indices effectifs. La dispersion de ces indices a été modélisée par ajustement de valeurs discrètes obtenues par calcul numérique. Les calculs d'accord de phase de la TPG ont montré qu'il est possible de sélectionner les longueurs d'ondes d'accord de phase souhaitées en concevant un guide de section carrée. Ainsi, la TPG pompée à 532 ou 527nm est envisageable dans des guides taillés selon l'axe Y de KTP de dimension transverse proche de 6,2µm. La caractérisation optique linéaire et non linéaire des guides à notre disposition a ensuite été résumée. Puis l'étude de la SHG a permis de mettre à l'épreuve, avec succès, la théorie qui a été développée et donc de valider le design des générateurs de triplets de photons taillés selon l'axe Y. L'étude de la THG a finalement confirmé la robustesse de la capacité prédictive de notre modélisation.

Le rendement mesuré de THG de 3,2% est très encourageant. Une nouvelle puce est en cours de fabrication : les guides feront cette fois-ci presque 3cm de long, ce qui permettra d'augmenter encore le rendement d'interaction.

Une autre alternative technologique, fruit d'une collaboration avec l'équipe d'Ady Arie de l'université de Tel-Aviv se base sur la génération indirecte des triplets de photons par cascade de deux processus quadratiques. Le chapitre suivant détaille l'étude de ces cristaux quasi-périodiques

IV Caractérisation optique des cristaux à domaines ferroélectriques inversés quasi-périodiquement

La Nature est un temple où de vivants piliers
Laissent parfois sortir de confuses paroles;
L'homme y passe à travers des forêts de symboles
Qui l'observent avec des regards familiers.

Charles Baudelaire, *Les fleurs du mal*

Ce chapitre est dévolu à l'étude d'un cristal de KTP mis en forme pour répondre à la problématique de la génération de triplets de photons. Dans un premier temps, les motivations et le contexte scientifique dans lequel elles s'inscrivent seront rappelés. Ensuite, les éléments théoriques sur lesquels reposent l'ingénierie du cristal seront présentés. Enfin, l'ensemble des expériences de génération de tierce harmonique et de second harmonique, préliminaires obligatoires à la génération de triplets de photons, seront décrits et comparés avec les calculs théoriques.

IV.1 Introduction

Comme il l'a été évoqué dans le chapitre II, la génération paramétrique de triplets de photons peut aussi être réalisée par une voie moins directe qu'un processus cubique. En effet, deux générations paramétriques quadratiques de paires en cascade peuvent conduire à l'obtention d'un triplet [83]. Le cas totalement dégénéré en pulsation est schématisé en Figure IV.1.

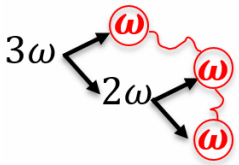


Figure IV.1 : Schématisation de la génération de triplets de photons par cascade de processus quadratiques.

L'un des photons de la première paire est scindé en deux autres photons qui viennent compléter le triplet. Cet effet a notamment été mis en évidence par le groupe dès le début des années 2000 [67], mais dans le but de minimiser le nombre de triplets issus de processus quadratiques pouvant venir parasiter le processus cubique désiré.

Ce processus de cascade quadratique peut être bien plus efficace que le processus direct utilisant les éléments du tenseur $\chi^{(3)}$ parce qu'il sollicite les éléments du tenseur $\chi^{(2)}$ qui lui sont bien supérieurs. Cette génération indirecte a donc des avantages certains. En outre, en utilisant des cristaux à domaines ferroélectriques alternés, il est même possible de choisir les longueurs d'onde de l'interaction. C'est ainsi que l'équipe de Thomas Jennewein a réussi, au cours des années 2010, à réaliser des mesures de pics de coïncidence entre des photons triplets [83,85]. Ces expériences ont utilisé deux cristaux consécutifs à domaines ferroélectriques inversés périodiquement, chacun ayant été conçu pour l'accord de phase d'une génération de paires de photons (cf. section II.2.4).

C'est cette même configuration, deux cristaux à domaines ferroélectriques inversés, qui est choisie dans la majorité des dispositifs commerciaux pour réaliser la génération de troisième harmonique (le processus inverse de la TPG) de manière efficace [126]. La principale utilisation commerciale est alors le triplage de fréquence de la fondamentale des lasers Nd:YAG dans le but de servir de source de pompe pour des oscillateurs paramétriques optiques [127].

Toutefois, l'utilisation de deux cristaux successifs présente des inconvénients. Les pertes de Fresnel, pour lesquelles il a été vu au chapitre I qu'elles amoindrissaient l'efficacité d'un processus non linéaire, interviennent d'autant plus que le nombre d'interfaces cristal/air est augmenté, ceci étant valable tant pour la THG que pour la TPG. La nouvelle approche explorée ici part alors de l'hypothèse que réaliser l'accord de phase des deux processus de la cascade de manière concomitante devrait alors conduire à de plus forts rendements de conversion. Et pour la TPG spécifiquement, il y aurait quasi-instantanéité de la production du triplet comparé à la cascade, ce qui sera plus favorable du point de vue quantique. Ainsi, l'utilisation d'un seul cristal à domaines alternés conçu de manière à mettre en accord de phase les deux processus en même temps apparaît donc attrayante.

La prochaine partie aura pour objectif de présenter les différentes méthodes existantes qui permettent de réaliser la THG par cascade de processus quadratiques au sein d'un unique cristal.

IV.2 Etat de l'Art de la génération de tierce harmonique par cascade quadratique

La génération de tierce harmonique peut donc être décomposée en deux étapes consécutives : dans un premier temps une génération de second harmonique $\omega+\omega\rightarrow 2\omega$, puis une génération de somme de fréquences conduit à la génération de troisième harmonique $\omega+2\omega\rightarrow 3\omega$. Les deux désaccords de phase sont respectivement notés Δk_{SHG} et Δk_{THG}.

Afin d'avoir une interaction efficace, il est nécessaire que les deux étapes de la cascade soient en accord de phase. Pour cela, il est dans un premier temps possible d'utiliser le quasi-accord de phase avec deux motifs différents et donc d'inverser les domaines ferroélectriques avec deux périodes différentes l'une sur la première moitié de l'axe de propagation dans le cristal, et l'autre sur la seconde. En effet, comme l'indique l'équation (I.42), la période d'inversion au

premier ordre à l'accord de phase est reliée au désaccord de phase selon $\Lambda = \frac{2\pi}{\Delta k}$. La première période d'inversion va donc compenser le désaccord de phase de la première étape de la cascade, la seconde période étant choisie pour compenser le désaccord de phase de la deuxième étape.

C'est par exemple le cas de l'étude de Louchev et Wada, qui calculent un rendement théorique maximal autour de 30% dans un cristal de PP-$LiTaO_3$ [128]. Toutefois, dans ce schéma-là, les photons créés dans la première étape ne sont pas concomitamment mis à contribution pour la deuxième. Par conséquent, seulement la moitié de la longueur du cristal va intervenir pour chaque processus. Cela revient donc à utiliser deux cristaux différents, en gagnant seulement sur les pertes en réflexion de Fresnel.

Au sein d'un unique cristal, il s'agit donc de chercher des conditions pour lesquelles le quasi-accord de phase par biréfringence pour chaque processus sera obtenu de manière simultanée.

La première proposition qui va dans ce sens est attribuée à Akhamanov et Khokhlov en 1964 dans un article russe resté non traduit, puis transcrit dans les années 70 [129]. Les premières tentatives expérimentales, elles aussi publiées en langue russe, ne furent visiblement que très peu concluantes [130]. Elles sont rapportées dans une revue de 2004 [131]. Un article plus récent rapporte un rendement autour de 30% au sein d'un unique cristal de KDP taillé à $(\theta = 60°, \varphi = 0°)$ [132], toujours *via* l'accord de phase par biréfringence.

Ce type de condition spécifique où les deux processus se retrouvent à l'accord de phase en même temps est aussi accessible en quasi-accord de phase. C'est notamment le cas de l'expérience publiée en 2007 par l'équipe de Huang, qui a travaillé avec une fibre optique cristalline de $LiNbO_3$ à domaines ferroélectriques inversés [133]. C'est aussi cette voie qu'ont suivi Ming et al. en utilisant des cristaux de $LiTaO_3$ [134], les rendements mesurés allant jusqu'à 19% [135].

D'autre part, les conditions expérimentales pour lesquelles la THG directe est à l'accord de phase, avec également de fortes contributions quadratiques (SHG + SFG), sont intéressantes pour atteindre des rendements de THG importants. Elles ont été étudiées dans la fin des années 90, notamment dans un cristal de TiO_2 dans la phase rutile. Un rendement d'environ 6% fût atteint, cette expérience mettant donc à contribution à la fois les éléments des tenseurs $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$ [136].

Une approche théorique originale proposée par Longhi est à noter [137]. Elle exploite le concept de passage adiabatique par un « état sombre » emprunté à la technique de transfert de population en physique atomique, appelée « passage adiabatique Raman stimulé » (STIRAP) [138]. Cette méthode repose sur un schéma d'inversion des domaines ferroélectriques très spécifique. Ceci a pour effet de générer les photons à 3ω en laissant l'état intermédiaire à 2ω dépeuplé. Aucune mise en œuvre expérimentale n'a, à ce jour, été rapportée. Toutefois, le fait de ne pas avoir ces photons intermédiaires à 2ω est un avantage certain. Théoriquement, presque toute l'énergie de pompe peut être convertie en signal de THG voire de TPG. Dans la référence [137], le rendement théorique maximal annoncé négligeant les pertes est de 100%. Par ailleurs, dans les expériences de génération de photons uniques ou de TPG, une difficulté essentielle est de

s'affranchir de la contribution des photons issus des étapes intermédiaires. On voit alors toute l'importance d'éviter cette pollution.

Parmi toutes ces approches technologiques différentes, l'une d'elle se démarque clairement à travers les rendements de conversion de THG observés expérimentalement. Ceci est illustré dans le Tableau IV.1 issu de l'article de Saltiel [131].

Nonlinear crystal	λ_ω [μm]	Phase-matched steps	Phase matching method	L [cm]	Regime	η,%
$LiTaO_3$	1.44	$\Delta k_{SHG} \approx 0$; $\Delta k_{SFG} \approx 0$	QPOS	1.5	Pulsed (8 ns)	27%
$LiTaO_3$	1.570	$\Delta k_{SHG} \approx 0$; $\Delta k_{SFG} \approx 0$	QPOS	0.8	Pulsed (8 ns)	23%
$LiTaO_3$	1.342	$\Delta k_{SHG} \approx 0$; $\Delta k_{SFG} \approx 0$	SHG-QPM 1st-ord. SFG-QPM 3rd-ord.	1.8	quasi-cw (30 ns)	19.3 %
$LiTaO_3$	1.342	$\Delta k_{SHG} \approx 0$; $\Delta k_{SFG} \approx 0$	SHG-QPM 1st-ord. SFG-QPM 3rd-ord.	1.2	Pulsed (90 ns)	10.2%
β-BBO	1.055	$\Delta k_{THG} \approx 0$; $\Delta k_{SFG} = -\Delta k_{SHG} \neq 0$	BPM	0.3	Pulsed (350 fs)	6%
$LiTaO_3$	1.442	$\Delta k_{SHG} \approx 0$; $\Delta k_{SFG} \approx 0$	QPOS	0.6	Pulsed (10 ns)	5.8%
KTP	1.8	$\Delta k_{SHG} \neq 0$; $\Delta k_{SFG} \approx 0$	BPM		Pulsed (35 ps)	5%
$LiTaO_3$	1.064	$\Delta k_{SHG} \approx 0$; $\Delta k_{SFG} \approx 0$	PR-QPM	1.2	quasi-cw (150 ns)	2.8%
KTP	1.618	$\Delta k_{THG} \approx 0$; $\Delta k_{SFG} = -\Delta k_{SHG} \neq 0$	BPM	0.11	Pulsed (22 ps)	2.4%
SBN	1.728	$\Delta k_{SHG} \approx 0$; $\Delta k_{SFG} \approx 0$	QPOS	0.75	Pulsed (15 ps)	1.6%
d-LAP	1.055	$\Delta k_{THG} \approx 0$; $\Delta k_{SFG} = -\Delta k_{SHG} \neq 0$	BPM	0.1	Pulsed (350 fs)	1.2%

Tableau IV.1 : Résumé des rendements de THG atteints par différentes méthodes : les pavages quasi périodiques QPOS (*Quasi-Periodic Optical Supperlatices*), le quasi-accord de phase QPM (*Quasi-Phase-Matching*), l'accord de phase par biréfringence BPM (*Birefringent Phase-Matching*). Tiré de [131].

Il s'agit d'utiliser des cristaux à domaines ferroélectriques inversés de manière quasi-périodique. Les structures quasi-périodiques sont des structures ordonnées mais qui n'ont pas de symétrie de translation. La quasi-périodicité a été rapportée dans des quasi-cristaux métalliques pour la première fois en 1984 [139]. La première mise en évidence d'une telle architecture est probablement la suite de Fibonacci, qui étudiait au début du XIIème siècle l'évolution des populations de lapins, comme illustré sur la Figure IV.2. L'architecture est dans ce cas basée sur le fait que chaque mois, une paire de lapins adulte (L) donne une paire (L) plus une paire de jeunes lapins (S), et une paire (S) de jeunes lapins devenus grands (donc une nouvelle paire adulte L) qui, à son tour, engendrera plus tard une paire de jeunes lapins. Un ordre existe clairement mais le cristal perd toute symétrie de translation.

L'idée a donc été adaptée à la fabrication de cristaux quasi-périodiques, notamment pour la THG dans des cristaux de LiTaO3 par les équipes de Zhu et Ming, avec un rendement maximal annoncé à 27% [140,141]. La fabrication d'un tel milieu artificiel est présentée en Figure IV.2. Les paires (L) et (S) sont transposées à des briques de longueurs et de signes des coefficients $\chi^{(2)}$ différents, chacune correspondant à une des deux interactions en quasi-accord de phase.

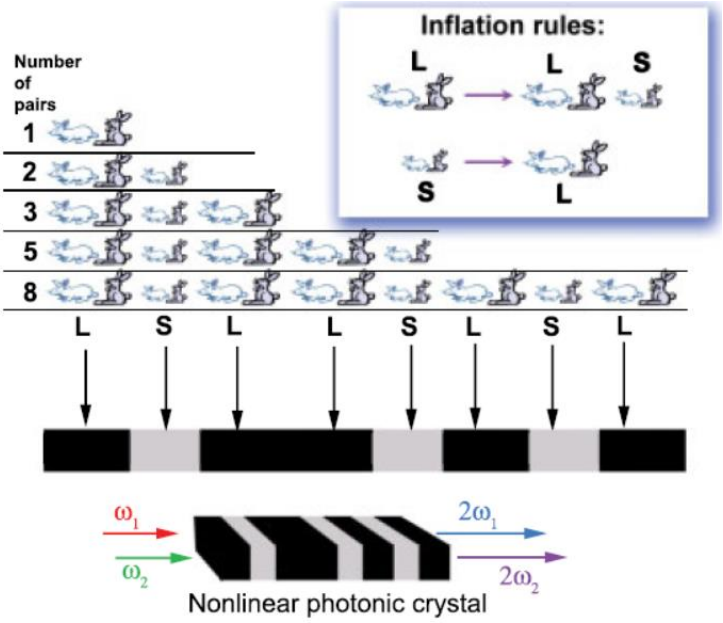


Figure IV.2 : Application de la suite de Fibonacci à la création d'un cristal non linéaire quasi-périodique permettant l'accord de phase pour deux SHG de manière simultanée. Tiré de [22].

La généralisation théorique de fabrication de pavages quasi-périodiques repose sur la technique dite de la grille duale proposée par De-Bruijn et étoffée par Rabson dans les années 80 [142,143]. L'idée d'utiliser ces outils théoriques pour la conception de cristaux photoniques non linéaires a donné lieu à la méthode générale dite LAB, des noms des auteurs, Lifshitz, Arie, Bahabad [144,145]. Cette méthode permet de mettre en accord de phase autant de processus que souhaité au sein d'un unique cristal ; elle a été généralisée à des pavages 1D et 2D [144]. De plus, les longueurs d'onde, la direction de propagation et les directions de polarisation peuvent être choisies en fonction de la quasi-périodicité. C'est de l'interaction entre Benoit Boulanger et Ady Arie qu'est alors née l'idée d'utiliser ce concept pour l'élaboration d'un cristal dédié à la génération de triplets de photons. L'équipe de Ady Arie à l'Université de Tel Aviv a alors modélisé et façonné deux cristaux dédiés à la TPG avec lesquels nous avons eu la chance de pouvoir travailler, dans un premier temps à travers la caractérisation non linéaire par le biais de la THG.

Parmi toutes les technologies permettant de réaliser la THG par cascade de processus quadratiques, l'utilisation d'un pavage quasi-périodique se détache des autres par son fort rendement de conversion et la liberté de conception vis-à-vis des combinaisons possibles de paramètres expérimentaux. C'est cette technologie qui a été retenue par l'équipe, avec pour objectif final la réalisation du processus inverse : la génération de triplets de photons.

La partie suivante s'attachera à décrire les éléments théoriques sur lesquels repose la conception du cristal de QPPKTP qui sera utilisé dans les expériences.

IV.3 Eléments de théorie de la méthode LAB de conception de cristaux photoniques quasi-périodiques

Cette partie décrit la méthodologie pour la conception du cristal de KTP à domaines ferroélectriques inversés de manière quasi-périodique (QPPKTP). Dénommée méthode L.A.B., elle a été généralisée à un pavage 2D pour un nombre n de désaccords de phase à compenser [144]. Dans le cas de la THG par cascades quadratiques, un pavage 1D permettant de mettre les deux étapes $\omega+\omega\rightarrow 2\omega$ puis $\omega+2\omega\rightarrow 3\omega$ est suffisant. C'est précisément la conception d'un tel cristal qui sera détaillée ici.

Sont associées à ces deux étapes les désaccords de phase, Δk_{SHG} et Δk_{THG} respectivement. Ils s'expriment par :

$$\begin{cases} \Delta k_{SHG} = k(2\omega) - k(\omega) - k(\omega) \\ \Delta k_{THG}(\omega) = k(3\omega) - k(2\omega) - k(\omega) \end{cases} \qquad \text{(IV.1)}$$

L'idée est de créer une structure quasi-périodique dont la représentation dans l'espace réciproque présentera des pics à des valeurs $G_{SHG} = \Delta k_{SHG}$ et $G_{THG} = \Delta k_{SHG}$ qui compenseront les deux désaccords de phase.

Pour se faire, il faut commencer par établir une relation d'orthogonalité dans un espace de dimension égale au nombre de processus à mettre en quasi-accord de phase [22]. C'est dans ce but qu'est d'abord défini le vecteur unidimensionnel $\vec{k} = (\Delta k_{SHG}, \Delta k_{THG})$, et le vecteur $\vec{q} = (q_1, q_2)$ qui lui est orthogonal, donc tel que $\vec{k}\cdot\vec{q} = 0$. Les éléments q_1 et q_2 ne sont pas uniques et sont donc choisis lors de la conception du cristal.

Ceci permet d'étendre le vecteur $\vec{k}$ dans un espace de dimension 2 et ainsi de former la matrice 2x2 donnée ci-après :

$$K = \begin{pmatrix} \Delta k_{SHG} & q_1 \\ \Delta k_{THG} & q_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} K^{(1)} \\ K^{(2)} \end{pmatrix} \tag{IV.2}$$

Ainsi, la relation d'orthogonalité requise pour la construction d'un espace réciproque s'écrit :

$$A^{(i)} K^{(j)} = 2\pi\delta_{ij} \tag{IV.3}$$

La matrice A est donc déterminée par :

$$A = \begin{pmatrix} A^{(1)} \\ A^{(2)} \end{pmatrix} = 2\pi \left(K^T \right)^{-1} \tag{IV.4}$$

Et les éléments de la matrice A s'écrivent selon [22] :

$$A = \begin{pmatrix} a^{(1)} & b^{(1)} \\ a^{(2)} & b^{(2)} \end{pmatrix} \tag{IV.5}$$

Il est important de noter que ces coefficients sont déterminés de manière unique par la condition d'orthogonalité (IV.3). Les coefficients $b^{(i)}$ servent à calculer les coefficients de Fourier de chaque pic de Bragg dans le spectre du quasi-cristal [144]. Puis un algorithme dont la procédure est décrite dans [146] est utilisé pour optimiser les coefficients qui correspondent aux pics de Bragg requis pour les accords de phase désirés. Les coefficients $a^{(i)}$ sont appelés vecteurs de pavement. Ils sont utilisés pour construire la double grille qui va déterminer la construction du cristal artificiel. Une illustration de cette construction est proposée en Figure IV.3.

Chacune des deux briques élémentaires est donc définie par les vecteurs de pavement et correspond à un désaccord de phase. Dans l'exemple de la Figure IV.3, l'inversion des domaines ferroélectriques est réalisée sur toute la longueur d'une des deux briques. Diverses configurations ont été testées par l'équipe d'Ady Arie [145]. L'ordre dans lequel sont placées les briques élémentaires est défini par la double grille, mais le choix de l'origine est libre et permet notamment d'ajuster le pavage pour correspondre à la transformée de Fourier requise [144].

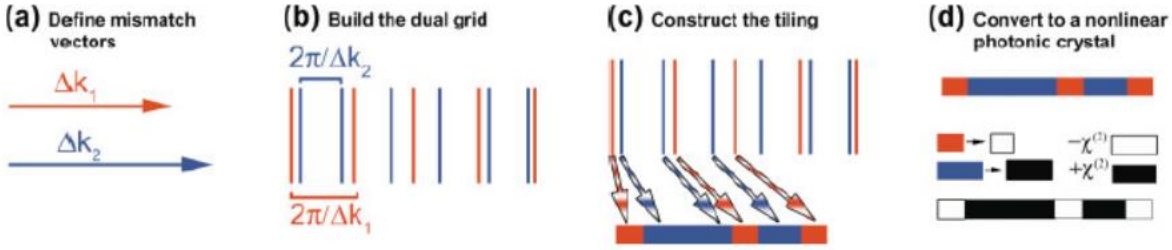


Figure IV.3 : Illustration de la méthode LAB utilisée pour concevoir un cristal permettant le quasi-accord de phase simultané de deux processus non linéaires [22]. (a) Schéma des deux désaccords de phase. (b) Construction de la double grille (deux peignes), dans laquelle les lignes de chaque couleur correspondent à un désaccord de phase et donc au vecteur de pavement $a^{(i)}$ associé. (c) Création du pavage dans l'espace réel en fonction de l'ordre d'apparition des dents du peigne de chaque famille. (d) Attribution d'un signe à chaque vecteur de pavement pour la susceptibilité électrique de deuxième ordre. Dans cet exemple, les zones rouges sont de signe négatif et les zones bleues de signe positif.

Le design d'un cristal à domaines ferroélectriques inversés de manière quasi-périodique par la méthode L.A.B passe donc par la détermination des vecteurs de pavement $a^{(i)}$ qui sont liés aux désaccords de phase demandés. L'application de cette méthode à la THG, et donc à la TPG, dans un cristal de QPPKTP sera le sujet de la partie suivante.

IV.4 Conception d'un cristal de KTP à domaines ferroélectriques inversés quasi-périodiquement

C'est dans le cadre d'un projet de recherche déposé au sein du laboratoire international franco-israélien Imaginano entre les équipes de Benoît Boulanger à l'Institut Néel et celle d'Ady Arie de l'Université de Tel-Aviv qu'ont été conçus les cristaux de QPPKTP. L'objectif à terme est de réaliser la TPG dans la bande télécom, à partir de faisceau lasers de pompe à 527 ou à 532nm. Plusieurs schémas de domaines ont donc été conçus, avec des configurations expérimentales, en termes de longueurs d'onde d'accord de phase et polarisation des photons, qui sont différentes et donc correspondant à des quasi-périodicités différentes, comme illustré en Figure IV.4.

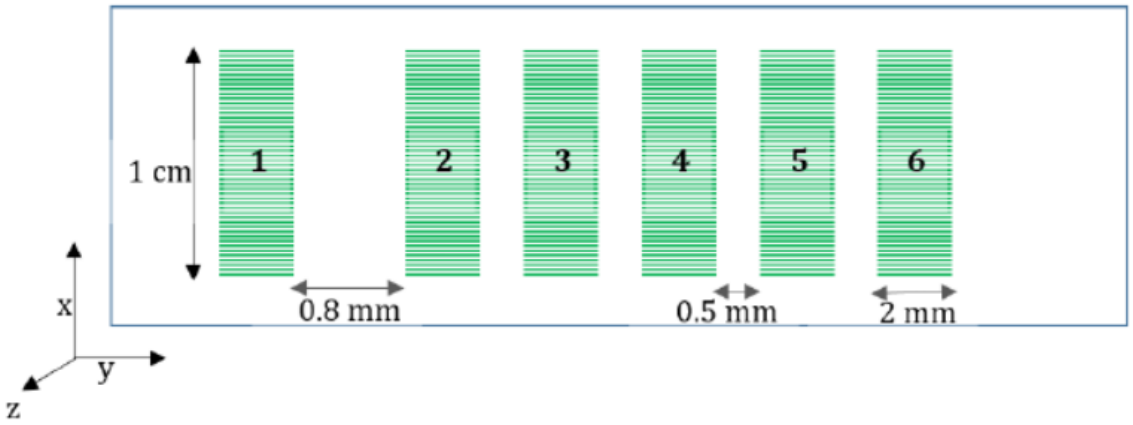


Figure IV.4 : Schématisation du cristal de QPPKTP (vue de dessus). La propagation est prévue pour être effectuée selon l'axe x du repère diélectrique.

L'utilisation de la méthode LAB sera illustrée ici pour la zone n°4 qui a été caractérisé de manière précise lors de cette étude à travers la caractérisation de la THG, processus inverse mais plus efficace que la TPG.

Dans le sens de la THG, la cascade modélisée dans cette zone 4 est constituée d'une SHG de type 0, pour laquelle tous les champs sont polarisés selon l'axe z du cristal, et d'une SFG de type II, soit :

$$\begin{cases} 1581^z + 1581^z \rightarrow 790,5^z \ (SHG) \\ 790,5^z + 1581^y \rightarrow 527^y \ (THG) \end{cases} \tag{IV.6}$$

Ceci correspond à une TPG pompée à 527nm, l'une des longueurs d'onde de pompe ciblées dans le projet, avec $\lambda_\omega = 1581nm$, $\lambda_{2\omega} = 790,5nm$, $\lambda_{3\omega} = 527nm$.

A partir de l'équation (IV.1), les désaccords de phase s'écrivent de la façon suivante en fonction des indices de réfraction :

$$\begin{cases} \Delta k_{SHG}(\omega,T) = \dfrac{4\pi}{\lambda_\omega}\left[n^z(2\omega,T) - n^z(\omega,T)\right] \\ \Delta k_{THG}(\omega) = \dfrac{2\pi}{\lambda_\omega}\left[3n^y(3\omega,T) - 2n^z(2\omega,T) - n^y(\omega,T)\right] \end{cases} \tag{IV.7}$$

L'accord de phase est alors calculé pour une température de travail de 100°C. A partir des relations de Sellmeier et de l'évolution en température des indices principaux de KTP données par les équations (I.15) et (I.16) et les Tableaux I.1 et I.2, sont calculés les désaccords de phase donnés par (IV.8). Les valeurs obtenues sont données ci-dessous.

$$\begin{cases} \Delta k_{SHG} = 0,24441 \mu m^{-1} = G_{SHG} \\ \Delta k_{THG} = 0,22031 \mu m^{-1} = G_{THG} \end{cases} \quad \text{(IV.8)}$$

Les facteurs G_{SHG} et G_{THG} sont ceux qui sont définis en équation (I.41) pour le quasi-accord de phase classique. Ces désaccords de phase calculés servent alors de paramètres injectés dans le programme de calcul de la méthode LAB. Les vecteurs de pavement ainsi obtenus sont :

$$\begin{cases} a^{(1)} = 14,1836 \mu m \\ a^{(2)} = 12,7849 \mu m \end{cases} \quad \text{(IV.9)}$$

La figure de Fourier obtenue après optimisation par les calculs numériques réalisés par Sivan Trajtenberg-Mills à l'Université de Tel-Aviv est présentée en Figure IV.5 (d).

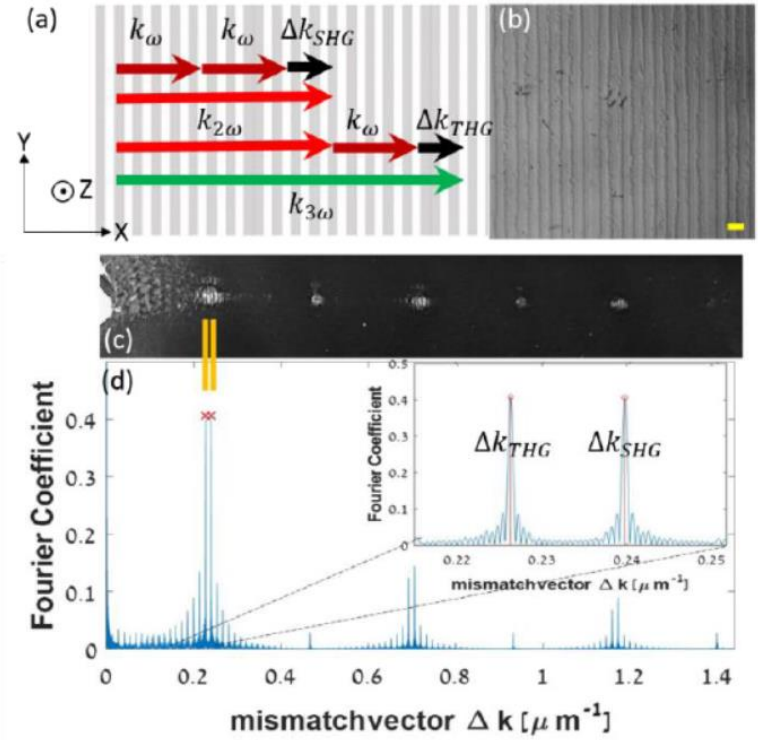


Figure IV.5 : (a) Schéma de la cascade quadratique présentant les différents vecteurs d'onde et désaccords de phases mis en jeu, sans correspondance entre la taille des vecteurs et l'espacement des briques élémentaires dans le fond de l'image. (b) Image microscopique en vue du dessus du cristal de QPPKTP qui met en évidence le pavage réalisé. L'échelle horizontale en jaune vaut 28µm. (c) Diffraction du cristal en champ lointain, en orange sont les pics qui correspondent à ceux désirés par la conception théorique. (d) Transformée de Fourier du pavage théorique de la zone n°4 pour laquelle ressortent deux pics d'ordonnées F_{SHG}=0,4 et F_{THG}=0,4 aux valeurs Δk_{SHG} et Δk_{THG} . Tiré de [147].

Le système d'équations couplées des champs mis en jeu au sein de la zone 4 est obtenu à partir du système d'équations (I.26) :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial E_{\omega}^{z}(X)}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{\omega} n_z(\lambda_{\omega})}\chi_{33}^{(2)}(\omega = 2\omega - \omega)E_{2\omega}^{z}(X).E_{\omega}^{z*}(X)F^{SHG}e^{j(\Delta k_{SHG} - G_{SHG})X} \\ \dfrac{\partial E_{\omega}^{y}(X)}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{\omega} n_y(\lambda_{\omega})}\chi_{24}^{(2)}(\omega = 3\omega - 2\omega)E_{3\omega}^{y}(X).E_{2\omega}^{z*}(X)F^{THG}e^{j(\Delta k_{THG} - G_{THG})X} \\ \dfrac{\partial E_{2\omega}^{z}(X)}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{2\omega} n_z(\lambda_{2\omega})}\chi_{33}^{(2)}(2\omega = \omega + \omega)E_{\omega}^{z}(X).E_{\omega}^{z}(X)F^{SHG}e^{-j(\Delta k_{SHG} - G_{SHG})X} \\ \qquad + j\dfrac{\pi}{\lambda_{2\omega} n_z(\lambda_{2\omega})}\chi_{24}^{(2)}(2\omega = 3\omega - \omega)E_{3\omega}^{y}(X).E_{\omega}^{y*}(X)F^{THG}e^{j(\Delta k_{THG} - G_{THG})X} \\ \dfrac{\partial E_{3\omega}^{y}(X)}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{3\omega} n_y(\lambda_{3\omega})}\chi_{24}^{(2)}(3\omega = \omega + 2\omega)E_{\omega}^{y}(X).E_{2\omega}^{z}(X)F^{THG}e^{-j(\Delta k_{THG} - G_{THG})X} \end{cases} \quad \text{(IV.10)}$$

Les facteurs F^{SHG} et F^{THG} sont les coefficients de Fourier associés aux deux étapes de la cascade. Ils correspondent à la hauteur des pics dans l'espace réciproque de la Figure IV.5 (d). Il est à noter que la représentation de Fourier dans le cas d'un quasi-accord de phase classique avec domaines inversés périodiquement donnerait un unique pic à $\Delta k = G$.

Le terme qui sollicite $\chi_{24}^{(2)}$ dans l'équation différentielle d'évolution du champ de second harmonique est celui qui gouverne le couplage entre les interactions quadratiques. Il est responsable de la combinaison de tous les champs en interaction. C'est donc sur ce terme que repose la valeur ajoutée des cristaux quasi-périodiques étudiés dans ce chapitre, vis-à-vis des technologies reposant sur l'utilisation de deux cristaux à domaines périodiquement inversés.

La zone 4 présentée en Figure IV.4 a été détaillée dans la partie précédente. Les 6 zones sont sur un cristal de L=1cm de long, et sont disposées de manière à être espacées de 0,5mm. Les trois premières sont prévues pour fonctionner avec des photons pompe à 532nm pour la TPG ; pour les trois dernières, la source de pompe est à 527nm. Les combinaisons de longueurs d'onde et de polarisations des autres domaines seront données pour la THG.

Pour la zone 1, une SHG de Type 0 suivie d'une SFG de type II ont été choisis.

$$\begin{cases} 1596^{z} + 1596^{z} \rightarrow 798^{z} \ (SHG) \\ 798^{z} + 1596^{y} \rightarrow 532^{y} \ (THG) \end{cases} \quad \text{(IV.11)}$$

Cela permet, à partir d'un faisceau laser à 532nm de générer des triplets de photons à 1596nm, avec la possibilité d'une séparation en polarisation en utilisant un prisme de Glan-Laser des

deux photons polarisés selon l'axe z et du photon polarisé selon y. Les désaccords de phase calculés pour ces deux étapes valent $\Delta k^1_{SHG} = 0,2398 \mu m^{-1}$ et $\Delta k^1_{THG} = 0,2263 \mu m^{-1}$.

La zone 2 est définie à partir de la même configuration que la zone 1 ; ce sont les valeurs des coefficients de Fourier qui diffèrent. Le coefficient non linéaire $\chi^{(2)}_{zzz}$ associé à la SHG étant plus fort que le coefficient $\chi^{(2)}_{yzy}$ sollicité par la SFG, l'idée est d'associer un coefficient de Fourier *via* la méthode LAB plus fort pour la SFG, et ainsi d'avoir la même efficacité pour les deux étapes. La figure IV.6 illustre la différence des coefficients de Fourier théorique associée à la zone 2.

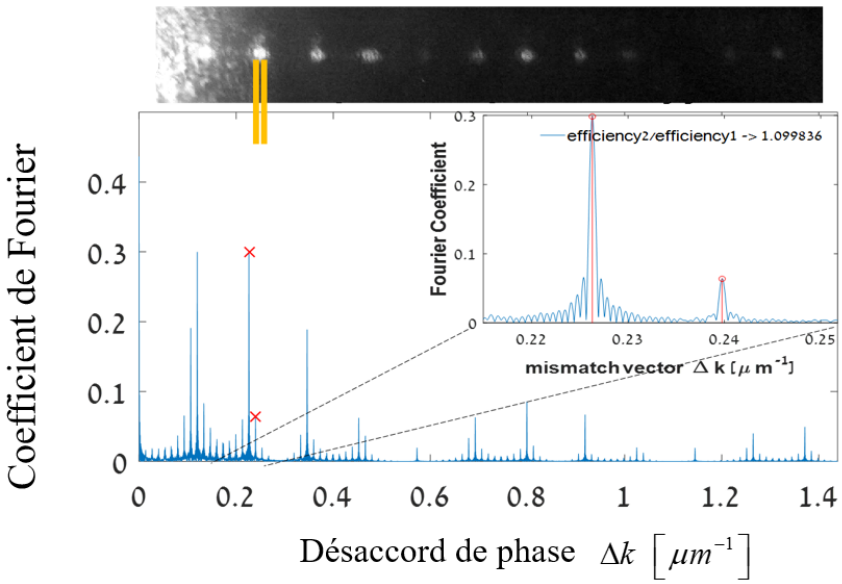


Figure IV.6 : Transformée de Fourier du pavage théorique associée à la zone 2. Les deux pics théoriques, correspondant aux désaccords de phases des deux étapes de la cascade, sont identifiés par la diffraction du cristal en champ lointain.

La zone n°3 est conçue pour n'utiliser que le coefficient le plus fort à travers deux interactions quadratiques de type 0. Elle ne fait donc intervenir que des photons polarisés selon l'axe z du cristal.

$$\begin{cases} 1596^z + 1596^z \rightarrow 798^z \ (SHG) \\ 798^z + 1596^z \rightarrow 532^z \ (THG) \end{cases} \qquad \text{(IV.12)}$$

Malheureusement, au moment de la modélisation, il y a eu une erreur de calcul sur les désaccords de phase. Cette zone n'est donc pas utilisable. La même erreur est intervenue pour la zone 6. Les configurations expérimentales de la zone 5 sont identiques à celles de la zone 4, c'est encore une fois sur la valeur des coefficients de Fourier sollicités que se fait la différence.

A partir des résultats de l'algorithme basé sur la méthode LAB, le schéma de pavage a été transmis à la société Israélienne Raicol qui synthétise des cristaux de KTP. Les indices pris lors des calculs théoriques de ce chapitre sont ceux qui ont été mesurés préalablement par Ady Arie autour de 100°C sur un cristal de KTP de la même provenance. Raicol réalise également l'inversion des domaines. Cette inversion repose sur l'application d'un champ coercitif sur les briques élémentaires désirées. Dans ce but, une couche photosensible est déposée sur le cristal. Un masque de lithographie spécifique est créé, et par photolithographie ne laisse le matériau photosensible que là où l'on ne souhaite pas inverser les domaines. Ce protocole est présenté en Figure IV.7. Une fois ce traitement terminé, les zones apparaissent visibles comme illustré sur la Figure IV.5 (b). Ce contraste visuel est dû à la différence intrinsèque entre les faces z+ et z- du cristal de KTP qui sont inversés quasi-périodiquement. L'observation des pics de diffraction en champ lointain permet également de vérifier la qualité de l'inversion.

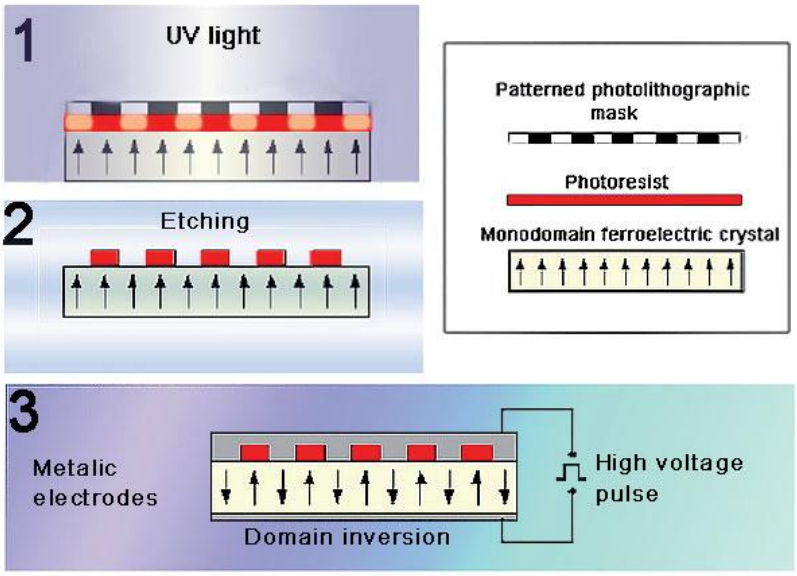


Figure IV.7 : Illustration de la technique utilisée pour l'inversion des domaines, dans le cas simple d'une inversion périodique. 1) Photolithographie du cristal sur lequel une couche photosensible a été déposée. 2) Gravure des parties exposées. 3) Application du champ coercitif qui renverse les dipôles dans les zones où le métal est en contact direct avec le cristal. Tiré de [22].

Mis à part les zones 3 et 6 pour lesquels une erreur de modélisation a été commise avant fabrication, toutes les zones sont fonctionnelles. Notre choix s'est porté sur la zone 4 pour deux raisons. Premièrement, la source de pompe accordable que nous avons utilisée pour caractériser la THG fonctionne mal autour de 1600 nm du fait d'un changement de réseau utilisé pour l'affinement spectral de l'Oscillateur Paramétrique Optique. Or, les deux premières zones sont prévues pour un accord de phase de THG avec des photons de pompe proches de 1600 nm. Nous avons par conséquent choisi de concentrer nos efforts sur les zones 4 et 5 pour lesquelles l'accord de phase est attendu vers 1581 nm, soit un faisceau pompe à 527 nm dans le cadre de la TPG. La zone 4 a rapidement donné de meilleurs résultats de rendement de conversion pour la THG. C'est donc sur elle que s'est centrée notre étude. L'accord de phase étant prévu pour 100°C, il faut avant toute chose s'assurer de pouvoir maintenir le cristal dans une température

stable proche de cette valeur théorique. Un four spécifique a donc été adapté et calibré. Les détails en sont donnés dans la partie suivante.

IV.5 Dispositif expérimental pour la caractérisation de la SHG et de la THG

Le four utilisé dans le cadre de cette étude est un four commercial résistif, adapté à la thermorégulation de gros cristaux et modifié par Laurent Del Rey du pôle mécanique de l'Institut Néel. Un insert en cuivre adapté à la taille du cristal (typiquement 10x11x2mm) a été fabriqué afin d'assurer une stabilité suffisante sur les platines optiques, et surtout un contact thermique de haute qualité entre le cristal et le métal. Une photographie du cristal pris de face dans le four est reproduite sur la Figure IV.8. Hormis les faces d'entrée et de sortie, les autres faces du cristal sont en contact avec l'insert en cuivre. Une masse thermique conséquente entoure l'ensemble afin de stabiliser au mieux la température. La fonction de chauffage résistif est régulée par un boitier de consigne équipé d'un régulateur PID (Proportionnel-Intégral-Dérivé). Ceci permet de sélectionner une température de travail qui est stabilisée en environ 5min, ce qui est compatible avec nos expériences.

La pièce a été usinée pour insérer plusieurs thermocouples Chromel/Alumel type K en contact direct avec l'échantillon de manière à contrôler la température à divers endroits du cristal. Ces thermocouples sont parfaitement adaptés aux températures de travail, qui peuvent s'échelonner de 20°C à 200°C. Ceci permet à la fois de calibrer la température de consigne et de vérifier que les gradients de température ne seront pas source de modification des conditions d'accord de phase lors de la propagation de la lumière dans une zone spécifique du cristal.

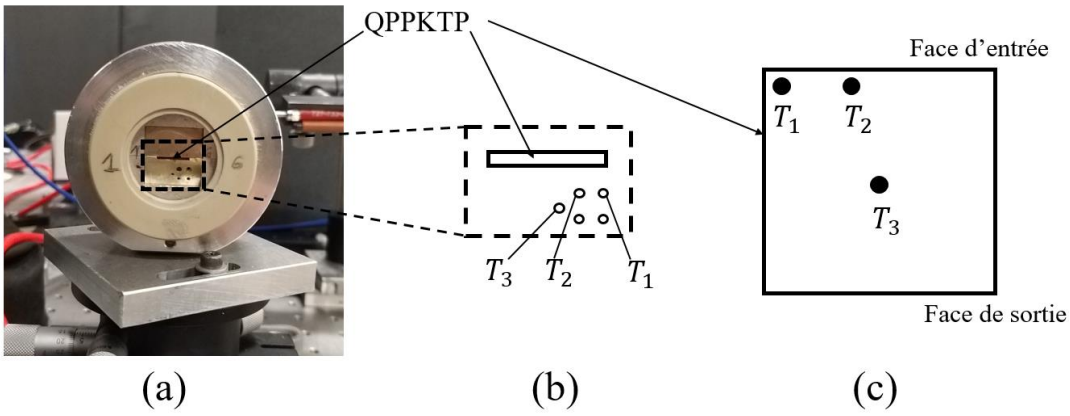


Figure IV.8 : (a) Photographie du four, du côté de la face d'entrée du cristal. (b) Schéma zoomé de la zone délimitée en pointillés sur lequel sont représentés les points d'insertion des gaines de thermocouples. (c) Schématisation de la vue de dessous du cristal et des points de contact des thermocouples avec le cristal permettant la mesure des températures T_1, T_2 et T_3.

Les mesures des températures relevées, T_1, T_2 et T_3, en fonction de la température de consigne sont reproduites sur la Figure IV.9. A chaque fois, un très bon accord entre la température de

consigne et la température mesurée sur le cristal est observé. L'écart relatif se creuse un peu lorsque la température de consigne augmente, mais c'est extrêmement faible. Ces mesures donnent aussi accès aux gradients de température au sein du cristal. L'écart moyen entre T_1 et T_2 est de 0,3°C. En conséquence, le gradient transverse augmente faiblement avec la température de consigne. Concernant le gradient longitudinal, l'écart moyen entre T_2 et T_3 est encore meilleur, d'environ 0,15°C. Même lorsque les thermocouples sont placés directement sur les faces d'entrée et de sortie, l'écart de température mesurée avec le centre du cristal est de 0,5°C au plus, ce qui est tout à fait raisonnable.

Ainsi, une fois la température de consigne fixée, la température de travail au sein du cristal ne devrait pas varier de plus d'un degré. En prenant en compte les équations de variation des indices de réfraction de KTP avec la température qui sont explicitées en équations (I.16) et (I.17), cet écart maximal sera responsable d'une variation d'indice inférieure à 10^{-5}. L'accord de phase ne devrait donc pas être perturbé par les fluctuations thermiques au sein du cristal. Ce point sera bien sûr à vérifier lors de la mesure de l'acceptance thermique. Notons que la température que nous avons choisie de relever au cours des expériences suivantes est la température T_3. La précision de mesure sur la température du cristal est donc de 0,5°C.

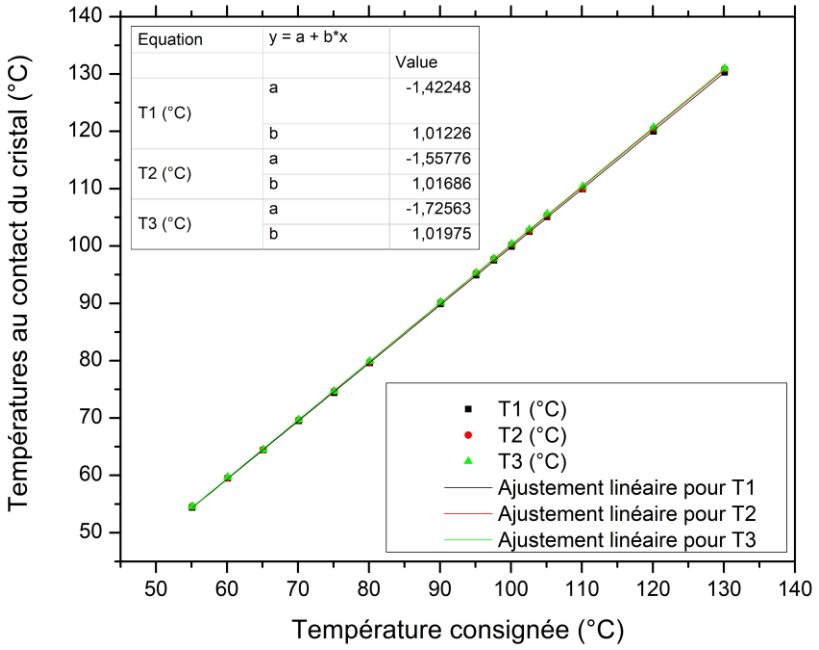


Figure IV.9 : Mesure des températures au contact du cristal en fonction de la température de consigne.

Le four, dont la hauteur peut être contrôlée par un support élévateur, est finalement placé sur une pièce opto-mécanique, type support de prisme, permettant la rotation selon trois degrés de liberté afin de s'assurer de l'auto collimation du cristal. Enfin, Une platine micrométrique de translation complète le montage pour sélectionner la zone dans laquelle le faisceau est injecté.

La calibration du four a permis de vérifier la fiabilité de la consigne. Une fois la température de consigne fixée, les indices seront supposés constants dans tout le volume du cristal à l'étude car les gradients de température mesurés sont négligeables. Les zones ont une largeur de 1mm, et une longueur de 1cm. Il faut donc un faisceau laser focalisé sur un diamètre inférieur à 1 mm et de longueur de Rayleigh suffisante pour que l'approximation des ondes planes s'applique.

Comme il a été vu dans le chapitre III, quand il s'agit d'utiliser des guides cristallins taillés en arête, l'injection de la pompe est critique mais la caractérisation du faisceau est facilitée du fait de la section transverse et de la propagation confinée de la lumière sur toute la longueur du guide. Pour les échantillons de QPPKTP étudiés dans ce chapitre, la taille du rayon de ceinture et la longueur de Rayleigh du faisceau sont déterminantes, d'où la nécessité d'une caractérisation précise du faisceau de pompe de façon à s'assurer de conditions optimales pour les expériences et les modélisations.

Dans les expériences de THG par cascades quadratiques, le faisceau pompe est dans l'infrarouge moyen, proche de 1600nm. Les caméras silicium à notre disposition n'étant sensibles que dans le visible et le très-proche infrarouge, un cristal de KTP doubleur a été utilisé pour pouvoir caractériser le faisceau pompe. Il s'agit d'une lame fine taillée à $\theta = 52°$ permettant de réaliser la SHG de type II $\omega^y + \omega^z \rightarrow 2\omega^y$. Ainsi le rayon du faisceau généré à 2ω est mesuré par une caméra Spiricon SP907, et il est possible de cette mesure de déduire le rayon de la pompe à 1600 nm.

Le montage utilisé est présenté en Figure IV.10. Une lentille ayant une focale de 50cm dans le visible est placée derrière une lame demi-onde et focalise le faisceau au centre du cristal dans le four. Le choix d'une longue focale est guidé par la nécessité d'avoir une longueur de Rayleigh suffisante, plus grande que la longueur du cristal de KTP. Une lame de saphir réfléchissant 4% du faisceau est placée à 45° en sortie du cristal doubleur et la caméra est placée sur un rail, ce qui permet sa translation. La position de la caméra est conjuguée avec la partie transmise par la lame de saphir. La mesure du rayon du faisceau pour différentes positions de la caméra permet de remonter à la taille du rayon de ceinture et à la longueur de Rayleigh.

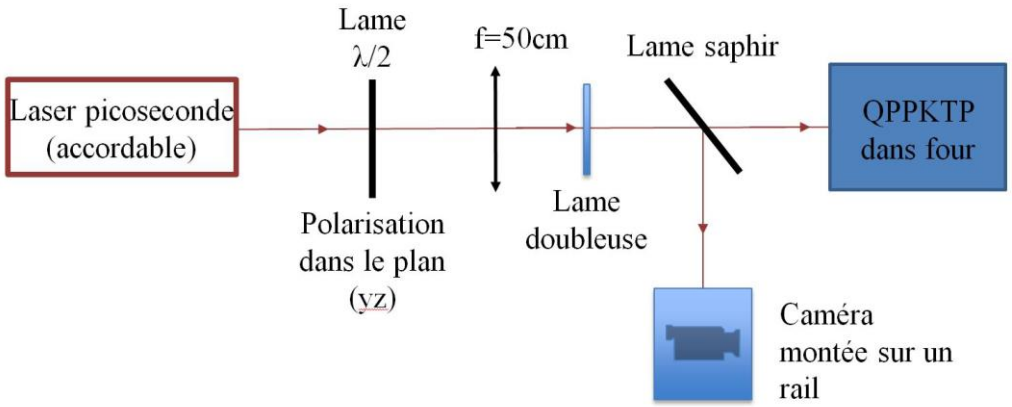


Figure IV.9 : Schéma du dispositif expérimental permettant la caractérisation du faisceau gaussien à 1600nm.

La distance focale mesurée à 1600nm est $f \approx 70cm$. La longueur de Rayleigh mesurée est d'environ 15cm, ce qui valide l'utilisation de cette lentille pour un cristal de 1cm de longueur. Le rayon du faisceau doublé est donc considéré comme constant et vaut $r(2\omega) = 145 \pm 15\mu m$. Ces notions sont rappelées en Figure I.13. La valeur du rayon du faisceau pompe est alors déduite de l'équation (I.68). Ce rayon, égal à $r(\omega) = 205 \pm 21\mu m$, sera utilisé dans les calculs d'intensité nécessaires à l'interprétation de nos résultats expérimentaux. Le faisceau ainsi caractérisé est optimal pour l'étude d'une zone de 1mm de large et de 1cm de long. L'étape suivante concerne donc les expériences de THG, avec une étude précise des deux étapes de la cascade quadratique. Trois paramètres ont été identifiés comme cruciaux dans l'optimisation de l'interaction : la température, la longueur d'onde et la polarisation des photons pompe. Le dispositif expérimental présenté en Figure IV.10 permet d'étudier leurs influences.

Le montage donné en Figure IV.10 a pour but de permettre la caractérisation optique non linéaire des deux étapes de la cascade quadratique, que sont la SHG et la THG au sein de la zone 4 du cristal de QPPKTP. Les désaccords de phase donnés en équation (IV.8), sur lesquels la conception du cristal est basée, dépendent de deux paramètres expérimentaux : la température du cristal et la longueur d'onde comme décrit en équation (IV.7). De plus, l'accord de phase de la THG qui est étudiée nécessite l'emploi de deux photons pompe polarisés selon l'axe z du cristal et un autre polarisé selon l'axe y. Le dispositif a donc été conçu de façon à pouvoir étudier le processus en fonction de T et λ_ω, mais également de sorte à faire varier la proportion des photons polarisés sur les axes y et z du QPPKTP.

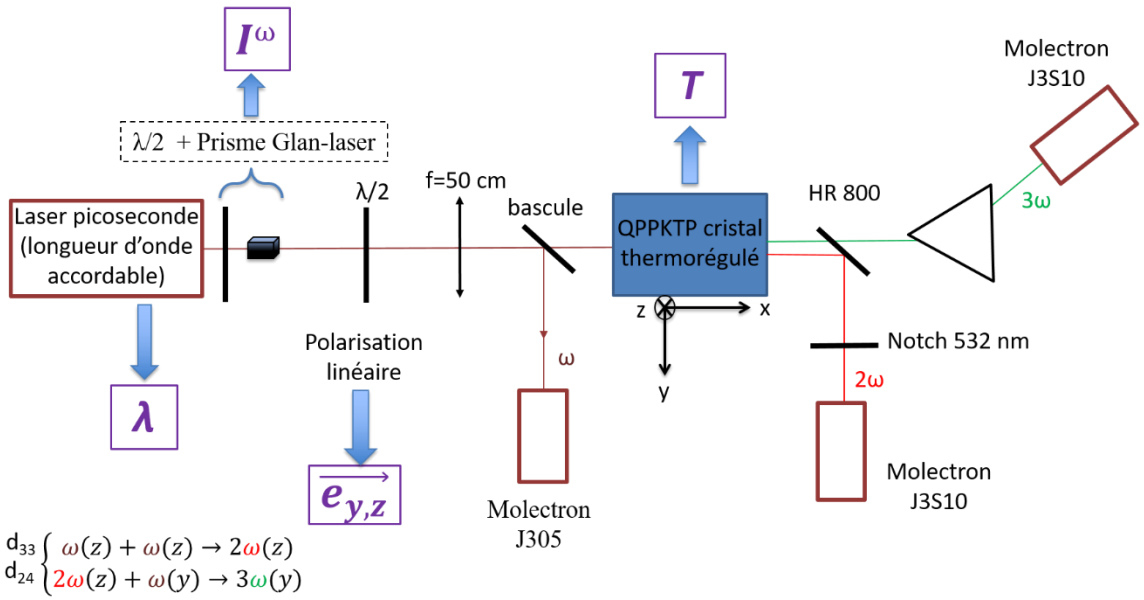


Figure IV.10 : Montage expérimental utilisé pour la caractérisation optique non linéaire de la zone 4 de QPPKTP.

Le faisceau pompe à λ_ω est émis par le générateur paramétrique optique TOPAS, ayant un taux de répétition de 10Hz et une durée de pulse $\tau_\omega = 15ps$. La longueur d'onde émise est accordable, et sa calibration est vérifiée à l'aide d'un spectromètre OceanOptics NIRQuest avec

une précision de 1nm. La température de thermorégulation du cristal est elle aussi accordable grâce au four présenté en section IV.2.2. Comme décrit précédemment, la précision sur la mesure de température est de 0,5°C. L'intensité du faisceau pompe est contrôlée par la combinaison d'une lame demi-onde et d'un prisme Glan-laser. La répartition en polarisation linéaire des photons pompe entre les axes *y* et *z* du repère diélectrique du cristal de QPPKTP est gérée par l'intermédiaire d'une autre lame demi-onde. Un miroir escamotable placé à 45° permet de mesurer l'intensité de pompe en entrée du cristal en déviant le faisceau sur un joule-mètre Molectron J3S05.

En sortie de cristal, un miroir possédant un haut coefficient de réflexion dans la gamme spectrale proche de 800nm à 45° est placé et permet de séparer le faisceau à 2ω de l'ensemble à ω et 3ω. Sur cette voie, un filtre Notch (Semrock) permet de filtrer les photons résiduels à 532nm réfléchis par le miroir HR800 nm ; l'énergie du signal à 2ω est finalement mesurée par un pico-joulemètre Molectron J3S10. Le signal à 3ω est, quant à lui, séparé spatialement de la pompe à ω grâce à un prisme, et un second Molectron J3S10 collecte le faisceau au bout d'une distance de propagation d'environ 1m, ce qui permet une excellente séparation des deux canaux à ω et 3ω.

Les paramètres du faisceau pompe sont donc :

$$\begin{cases} \tau_\omega = 15ps \\ W_\omega = 205 \pm 21\mu m \end{cases} \qquad \text{(IV.13)}$$

Le travail expérimental nécessite de la rigueur puisque 3 paramètres vont influer sur l'efficacité du processus. Il a fallu procéder par dichotomie afin de s'approcher des triades optimales, en longueur d'onde, température et polarisation. Des mesures préliminaires ont conduit à des valeurs autour de 95°C et 1585nm pour observer un fort signal vert en sortie du cristal, très probablement celui à 3ω attendu. Ces premières valeurs, déjà proches des paramètres théoriques (100°C et 1581nm) ont alors été affinées avec les mesures d'acceptance en longueur d'onde et en température.

IV.6 Caractérisation optique non linéaire

Dans cette partie sera détaillé le travail réalisé sur l'optimisation de la THG au sein de la zone 4 du cristal de QPPKTP. Les différentes mesures seront comparées avec les prédictions théoriques. Le but est de valider la conception du cristal et de mesurer le rendement de conversion maximal de la THG.

IV.6.1 Détermination expérimentale des conditions optimales de la THG dans la zone 4

Les conditions optimales de température et de longueur d'onde sont étudiées à faible intensité de pompe. Cela a notamment pour but d'éviter l'occurrence de tout phénomène non linéaire parasite qui pourrait fausser les mesures d'acceptance. Ainsi, l'approximation de la pompe non dépeuplée s'applique pour toutes ces premières séries de mesure. La première étape expérimentale a pour objectif de déterminer les conditions pour lesquelles les deux étapes de la cascade sont en accord de phase en même temps, afin de maximiser le rendement total. Pour se faire, les acceptances, thermique et spectrale, de la SHG et de la THG sont mesurées.

IV.6.1.1 Etude de l'acceptance thermique des deux étapes de la cascade

Dans un premier temps, c'est l'influence de la température de thermorégulation qui a été étudiée. La longueur d'onde de pompe est donc fixée dans cette partie.

IV.6.1.1.1 Calcul de l'acceptance thermique

Les expressions des acceptances thermiques de SHG et de THG sont obtenues à partir des équations couplées (IV.10) en régime de la pompe non dépeuplée. Le calcul est équivalent à celui qui conduit à l'obtention de l'équation (I.30).

Ainsi, l'évolution de l'intensité des signaux de second et de troisième harmonique s'écrivent de la façon suivante en fonction de la température :

$$\begin{cases} I_{SHG}(T)\alpha \sin c^2\left(\dfrac{\left[\Delta k_{SHG}(T)-G_{SHG}\right]L}{2}\right) \\ I_{THG}(T)\alpha \sin c^2\left(\dfrac{\left[\Delta k_{THG}(T)-G_{THG}\right]L}{2}\right) \end{cases} \quad \text{(IV.14)}$$

Les coefficients G_{SHG} et G_{THG} sont, pour rappel, les grandeurs calculées avec le modèle LAB pour compenser les désaccords de phase de chaque processus quadratique. Ils fixent la structure quasi périodique du cristal, comme indiqué en Figure IV.6 pour la zone 4. Les désaccords de phase en fonction de T sont calculés à partir de l'équation (IV.8). Les courbes théoriques obtenues pour la zone 4 sont présentées en Figure IV.11. Ce sont des pics en sinus cardinal carré qui présentent, comme attendu, une légère asymétrie puisque l'argument est une fonction non linéaire de la température. Ces pics sont centrés en T=100°C.

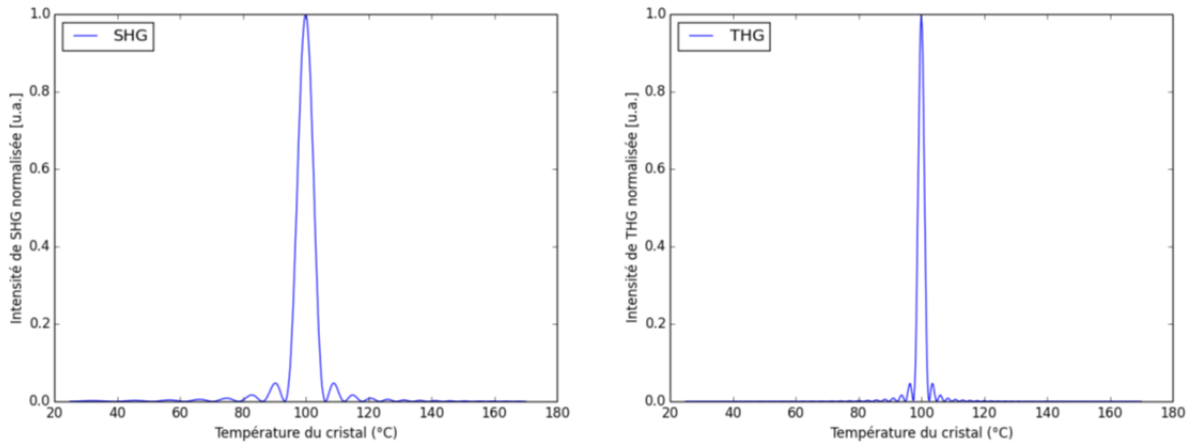


Figure IV.11 : Evolution théorique des intensités normalisées des signaux de second et troisième harmonique en fonction de la température du cristal de QPPTKP (zone 4) de longueur L=1cm, la longueur d'onde de pompe étant fixée à $\lambda_\omega = 1581nm$.

A partir de ces courbes sont déduites les largeurs à 0,405 du maximum. Ces tolérances thermiques valent $L\delta T_{SHG}^{th} = 7,7°.cm$ et $L\delta T_{THG}^{th} = 2,6°.cm$. Elles seront comparées aux valeurs mesurées expérimentalement et pourront permettre d'évaluer la longueur effective d'interaction.

IV.6.1.1.2 Mesure de l'acceptance thermique de chaque étape de la cascade

La mesure des acceptances thermiques pour la SHG et la THG, respectivement première et seconde étape de la cascade, est réalisée *via* le montage expérimental présenté en Figure IV.10. La longueur d'onde du faisceau pompe a été fixée à 1585nm pour cette acquisition. Concernant l'angle de la lame demi-onde qui fixe la polarisation de la pompe, deux cas de figure sont à considérer selon que l'objectif est de maximiser l'efficacité de la THG ou de la SHG. Pour la mesure de l'acceptance de la SHG, la lame demi-onde est réglée de manière à n'avoir que des photons pompes polarisés selon l'axe z du cristal, et ainsi avoir uniquement de la SHG. En revanche, pour étudier l'acceptance thermique de la THG, l'angle de la lame demi-onde a été choisi de façon à maximiser le signal de THG. L'intensité du faisceau pompe est ici encore fixée à 0,2GW.cm^{-2}. La température initiale du cristal est prise à 20°C, puis augmentée par paliers successifs de 10°C. Chaque point de mesure au centre du cristal (T_3) a été enregistré lorsque la température du palier est stabilisée au dixième de degré Celsius. Les deux courbes d'acceptance obtenues en fonction de T_3 sont données en Figure IV.12 : les carrés noirs correspondent aux points expérimentaux de la mesure de la SHG, les ronds bleus ceux relatifs à la THG.

Les points expérimentaux sont très bien ajustés à partir de fonctions sinus cardinal carré conformément à l'évolution attendue, décrite par l'équation (IV.14). L'évolution mesurée est donc en parfait accord avec la théorie. Les températures pour lesquelles les deux étapes de la cascade sont optimisées à la longueur d'onde de pompe de 1585 nm sont ici déduites de ces ajustements et valent respectivement $T_{SHG}^{\exp} = 94 \pm 1°C$ et $T_{THG}^{\exp} = 99 \pm 1°C$. Les températures optimales sont donc proches des valeurs prévues lors du design du cristal, ce qui est un franc succès. Ces conditions expérimentales ne sont cependant pas optimales puisque les deux étapes ne sont pas en accord de phase exactement à la même température. C'est une des étapes de la recherche du point de fonctionnement par dichotomie évoquée précédemment. Par la suite, il nous faudra fixer la température et effectuer la mesure de l'acceptance spectrale pour nous rapprocher d'un optimum commun entre SHG et THG. Cette mesure renseigne de surcroît sur le fait que le gradient de température au sein du cristal est négligeable du point de vue de l'accord de phase, comme cela était attendu. En effet, un écart de 1°C sur la température du cristal par rapport à la température d'accord de phase a, expérimentalement, une influence négligeable sur les intensités générées.

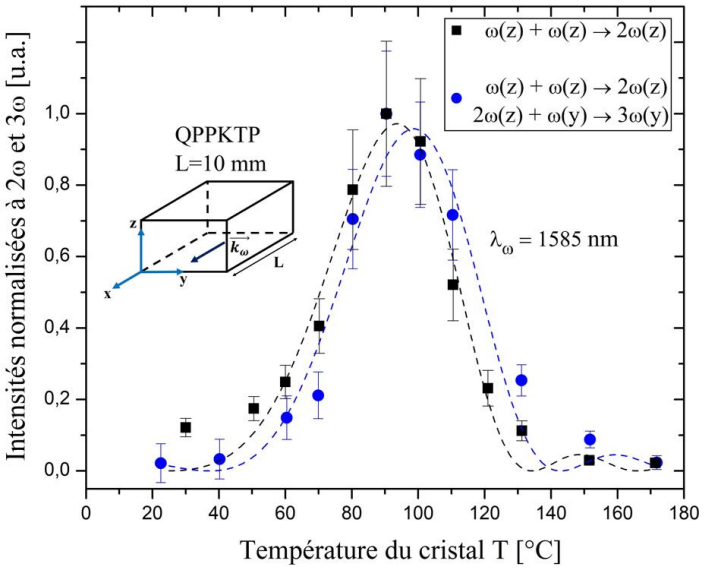


Figure IV.12 : Acceptances thermiques mesurées de SHG et THG en fonction de la température T_3 mesurée au centre du cristal. Les points expérimentaux sont en noir pour la SHG et en bleu pour la THG. Les ajustements des courbes sont donnés en pointillés.

Les tolérances thermiques sont déduites de ces courbes et valent $L\delta T_{SHG}^{\exp} = 48,3°.cm$ et $L\delta T_{THG}^{\exp} = 49,6°.cm$. Ces valeurs sont environ 7 fois plus grandes que les valeurs théoriques (cf. Figure IV.11). A l'inverse des prédictions théoriques, la tolérance mesurée est plus grande pour la THG que pour la SHG. Ce comportement expérimental est probablement dû au fait que la longueur d'onde de pompe n'est pas rigoureusement optimum pour la THG.

Les longueurs effectives seront déterminées une fois les deux étapes de la cascade simultanément en accord de phase. Cette concomitance sera obtenue sur les courbes d'acceptances spectrales données dans la partie ci-après.

L'accord théorie/expérience est toutefois déjà très bon, ce qui valide la conception du cristal, la qualité de l'inversion des domaines et l'utilisation des valeurs théoriques des indices de réfraction en fonction de la longueur d'onde et de la température.

IV.6.1.2 Etude de l'acceptance spectrale

Dans cette partie, l'influence de la longueur d'onde du fondamental sur les intensités de second et de troisième harmonique sera étudiée. Dans ce cas, la température du cristal est fixée à une valeur constante.

IV.6.1.2.1 Calcul des acceptances spectrales

L'évolution des intensités des signaux en fonction de la longueur d'onde est obtenue de manière similaire à ce qui a été fait pour la température. Elle est fonction des paramètres d'inversion de domaine GSHG et GTHG et s'écrit :

$$\begin{cases} I_{SHG}(\lambda)\alpha \sin c^2\left(\dfrac{\left[\Delta k_{SHG}(\lambda)-G_{SHG}\right]L}{2}\right) \\ I_{THG}(T)\alpha \sin c^2\left(\dfrac{\left[\Delta k_{THG}(\lambda)-G_{THG}\right]L}{2}\right) \end{cases} \quad \text{(IV.15)}$$

Les courbes théoriques calculées sont reproduites sur la Figure IV.13. Elles atteignent leur maxima à 1581 nm. Les largeurs obtenues à 0,405 du maximum valent :

$$\begin{cases} L\delta\lambda^{th}_{\omega,SHG} = 2,2nm.cm \\ L\delta\lambda^{th}_{\omega,THG} = 1,8nm.cm \end{cases} \quad \text{(IV.16)}$$

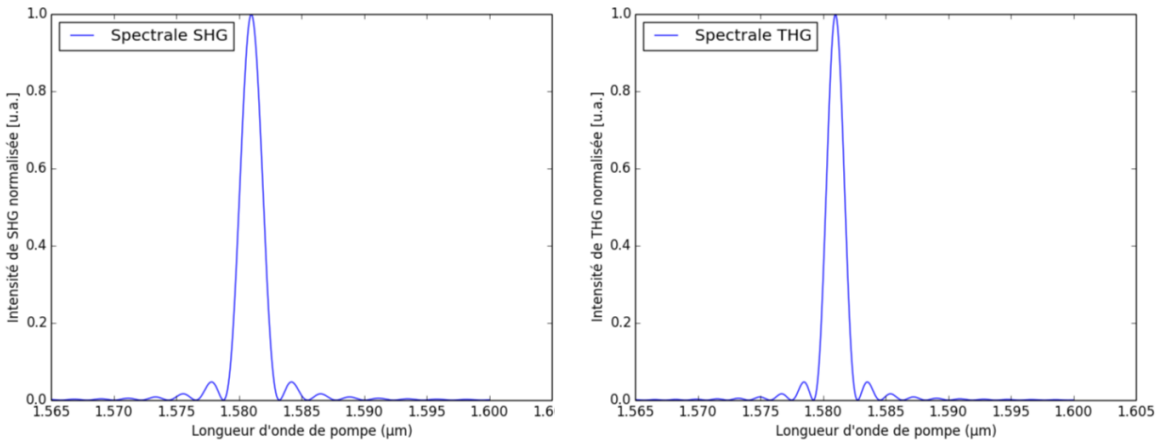


Figure IV.13 : Acceptances spectrales théoriques des deux étapes de la cascade quadratique, dans un cristal de QPPKTP (zone 4) de longueur L=1cm, la température étant fixée à 100°C. L'échelle est volontairement prise comme celle des courbes expérimentales pour faciliter la comparaison.

A partir des calculs présentés dans cette partie sont trouvées les tolérances spectrales théoriques qui valent respectivement $L\delta\lambda^{th}_{\omega,SHG} = 2,2nm.cm$ et $L\delta\lambda^{th}_{\omega,THG} = 1,8nm.cm$. Ces valeurs sont à comparer aux observations expérimentales obtenues à température fixée, ce qui est présenté dans la partie suivante.

IV.6.1.2.2 Mesure des acceptances spectrales

La mesure des acceptances spectrale est réalisée en utilisant le montage expérimental présenté en Figure IV.10, et repose sur l'accordabilité de la source de pompe qui est un OPG (TOPAS). Cette fois-ci, la température du cristal a été fixée à 90,7°C. L'angle de la lame demi-onde a été optimisé pour chaque étape de la cascade de la même façon que pour la mesure des acceptances thermiques. L'intensité du faisceau pompe est fixée comme précédemment à 0,2GW.cm^{-2}. Les longueurs d'onde des faisceaux à 2ω et 3ω sont mesurées par un spectromètre Ocean Optics USB 2000+ calibré en sortie de cristal. Les intensités de SHG et de THG obtenues sont données en Figure IV.14 en fonction de la longueur d'onde de pompe : les points noirs correspondent aux points de mesures de la SHG, les ronds bleus à la THG. Les pointillés correspondent aux ajustements réalisés à partir d'une fonction sinus cardinal carré, comme pour la dépendance en température.

La confiance dans la réussite du design et dans la modélisation des indices principaux de KTP est à nouveau grandement renforcée par ces mesures. En effet, l'accord observé entre la théorie et l'expérience est excellent : les deux courbes se comportent en sinus cardinal carré comme attendu, et les deux pics atteignent leurs valeurs maximales pour des longueur d'onde proches de ce qui était prévu par le calcul (1581nm à 100°C). En effet, les longueurs d'onde expérimentales d'accord de phase de la SHG et de la THG valent :

$$\begin{cases} \lambda_{\omega,SHG} = 1587nm \\ \lambda_{\omega,THG} = 1586nm \end{cases} \qquad \text{(IV.17)}$$

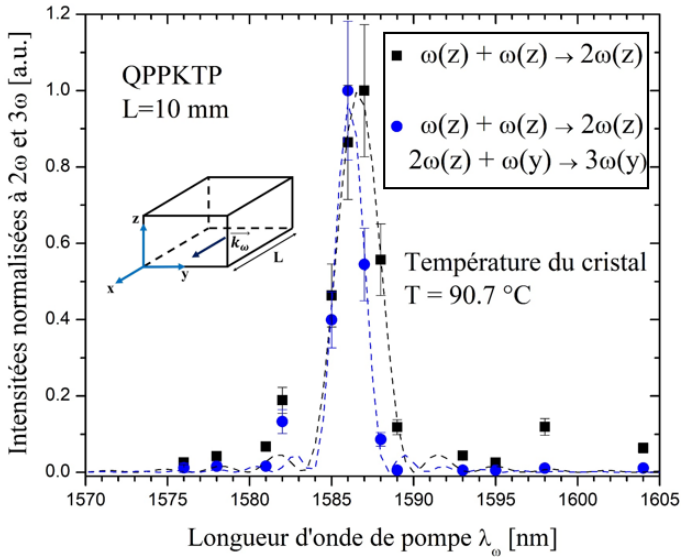


Figure IV.14 : Acceptances spectrales de SHG et THG mesurées à température fixe. Les points expérimentaux sont en noir pour la SHG et en bleu pour la THG. Les ajustements des courbes sont donnés en pointillés.

L'incertitude en longueur d'onde est de ± 1nm, due à la précision du spectromètre et à la lecture. Par conséquent, ces résultats témoignent d'un accord de phase concomitant aux deux étapes de la cascade. Plusieurs autres combinaisons ont ensuite été trouvées. Après plusieurs itérations d'optimisation successives en température et en longueur d'onde, le rendement de conversion optimal a été obtenu avec les valeurs suivantes :

$$\begin{cases} \lambda_{\omega} = 1587nm \\ T = 95°C \end{cases} \tag{IV.18}$$

Les largeurs des pics à 0,405 du maximum sont données en ci-dessous, ainsi que les longueurs effectives relatives aux deux étapes de la cascade qui sont ensuite déduites de ces mesures et des valeurs théoriques données en (IV.16), soit :

$$\begin{cases} L\delta\lambda_{\omega,SHG}^{\exp} = 3,4nm.cm \\ L\delta\lambda_{\omega,THG}^{\exp} = 2,3nm.cm \\ L_{eff}^{SHG} = L\,\delta\lambda_{\omega,SHG}^{calc} / \delta\lambda_{\omega,SHG}^{\exp} = 6.6mm \\ L_{eff}^{THG} = L\,\delta\lambda_{\omega,THG}^{calc} / \delta\lambda_{\omega,THG}^{\exp} = 7.8mm \end{cases} \tag{IV.19}$$

Les longueurs effectives sont donc proches de la longueur totale du cristal. C'est de bon augure pour le rendement de l'interaction puisque de 65 à 78 % de la longueur du cristal contribue à l'interaction d'après les calculs de longueurs effectives. L'étape suivante de la caractérisation consiste à analyser quantitativement la répartition optimale en polarisation des photons pompe pour réaliser l'accord de phase de la cascade quadratique.

IV.6.2 Influence de la répartition en polarisation des photons pompe

L'orientation de la polarisation du faisceau pompe par rapport au repère diélectrique de QPPKTP est rappelée en Figure IV.15. La direction de propagation est selon l'axe x. L'angle de polarisation α est défini à partir de l'axe y du cristal ; il est ajusté expérimentalement grâce à la rotation de la lame demi-onde représentée en Figure IV.10. Quand il vaut 0°, tous les photons pompe sont polarisés selon l'axe y, et lorsqu'il est fixé à 90°, les photons pompe sont polarisés selon l'axe z.

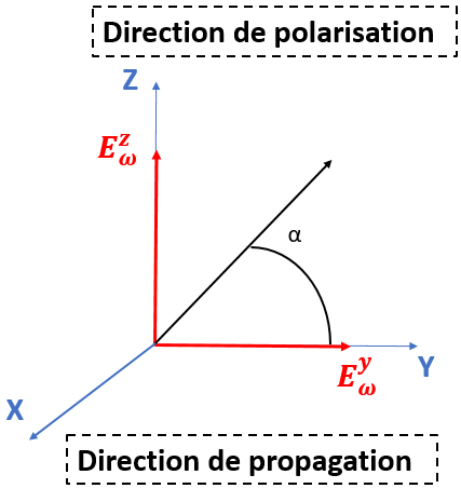


Figure IV.15 : Projection du champ pompe sur les axes y et z du repère diélectrique de QPPKTP. Les champs générés à 2ω et 3ω ne sont pas représentés, sachant qu'ils sont polarisés selon les axes z et y respectivement.

Dans cette partie seront détaillés les calculs des évolutions des intensités des champs de second et troisième harmonique en fonction de l'angle de polarisation α. Ces calculs seront ensuite comparés aux mesures expérimentales.

IV.6.2.1 Éléments de théorie

Les dépendances des champs générés en fonction de l'angle de polarisation α sont calculées à partir du système d'équations couplées (IV.10). Dans l'hypothèse de la pompe non dépeuplée, avec l'angle α défini par rapport à l'axe y comme présenté en Figure IV.15, elles s'écrivent :

$$\begin{cases} E_{2\omega}^{z}(\alpha) \propto (E_\omega)^2 \sin^2(\alpha) \\ E_{3\omega}^{y}(\alpha) \propto E_\omega E_{2\omega}^{z}(\alpha)\cos(\alpha) \end{cases} \quad \text{(IV.20)}$$

Les dépendances des intensités sont donc obtenues en combinant les eqs. (IV.20) et (I.5), ce qui donne :

$$\begin{cases} I_{2\omega}(\alpha) \propto (I_\omega)^2 \sin^4(\alpha) \\ I_{3\omega}(\alpha) \propto (I_\omega)^3 \cos^2(\alpha)\sin^4(\alpha) \end{cases} \quad \text{(IV.21)}$$

Ces intensités sont tracées sur la Figure IV.16. Les deux angles α théoriques correspondant aux maximas des intensités de second et troisième harmonique sont donc :

$$\begin{cases} \alpha_{SHG}^{th} = 90° \\ \alpha_{THG}^{th} = 54° \end{cases} \qquad \text{(IV.22)}$$

Cette étude théorique met bien en évidence le fait que lorsque les photons pompe sont tous polarisés selon l'axe z du cristal, l'intensité du signal de second harmonique est maximale et la seconde étape de la cascade (THG) n'a pas lieu. Cette particularité, voulue par le choix initial d'une SFG de type II comme deuxième étape de la cascade de la THG sera utilisée dans la section IV.3.3 pour évaluer les rendements de chaque étape de la cascade quadratique.

IV.6.2.1.1 Mesure expérimentale

Les intensités normalisées mesurées $I_{2\omega}(\alpha)$ et $I_{3\omega}(\alpha)$ des champs générés à 2ω et à 3ω sont tracées en fonction de l'angle de polarisation α en Figure IV.16. Pour cette mesure, la température et la longueur d'onde de pompe sont fixées à $T = 95°C$ et $\lambda_\omega = 1587nm$. L'intensité du fondamental est fixée à 0,2GW.cm^{-2} de manière à être dans les conditions où l'hypothèse de la pompe non dépeuplée s'applique. Les intensités normalisées, calculées à partir de (IV.21), sont en excellent accord avec les mesures. Ces mesures confirment l'absence de THG lorsque l'angle de polarisation vaut 90°, donc lorsque la pompe est polarisée selon y. De plus, ces mesures mettent en évidence que pour l'angle $\alpha = 54°$ maximisant le signal de troisième harmonique, l'intensité du second harmonique n'est pas nulle. Par ailleurs, pour la mesure du rendement de THG, il sera nécessaire de fixer l'angle de polarisation à $\alpha = 54°$.

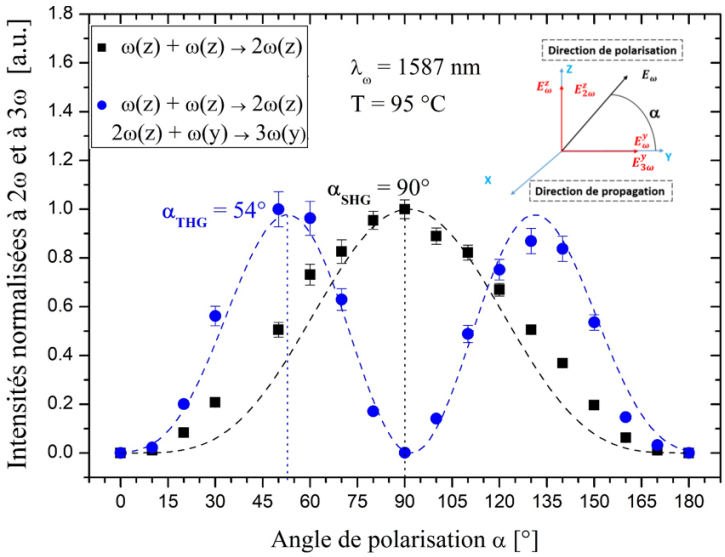


Figure IV.16 : Evolution des intensités des champs à 2ω (en noir) et à 3ω (en bleu) en fonction de l'angle de polarisation α du champ pompe à ω. Les courbes en pointillés sont issues des calculs des intensités réalisés à partir des équations (IV.21).

Les trois séries de mesures présentées dans cette partie ont permis d'établir une triade de paramètres expérimentaux optimaux pour la THG en cascade, triade qui sera également utile pour les expériences de TPG puisque les conditions d'accord de phase sont identiques. Les longueurs effectives des deux processus quadratiques mis en jeu ont été déduites des mesures des acceptances. Les paramètres importants qui ont été déduits de ces mesures sont :

$$\begin{cases} \lambda_{\omega} = 1587nm \\ T = 95°C \\ \alpha = 54° \\ L_{eff}^{THG} = L\left(\lambda_{\omega,THG}^{calc} / \lambda_{\omega,THG}^{\exp}\right) = 7.8mm \\ L_{eff}^{SHG} = L\left(\lambda_{\omega,SHG}^{calc} / \lambda_{\omega,SHG}^{\exp}\right) = 6.6mm \end{cases} \qquad \text{(IV.23)}$$

L'étude des rendements de conversion des deux interactions, détaillée dans la partie suivante, repose sur la qualité de ces mesures, qui est certifiée par l'accord général obtenu avec la théorie.

IV.6.3 Rendements de conversion pour la SHG et la THG en accord de phase

IV.6.3.1 Eléments de théorie

Le système d'équations d'évolution des champs mis en jeu lors de la propagation selon l'axe x est donné en équation (IV.10) .

Dans cette partie, les intensités de pompe atteintes, et les rendements de conversion considérés seront tels que l'hypothèse de la pompe non dépeuplée ne sera plus applicable.

En revanche, le quasi-accord de phase est obtenu pour la SHG et la THG sous les conditions expérimentales équivalentes décrites en équation (IV.23), obtenues grâce aux mesures précédentes. Dans ces conditions de température du cristal et de longueur d'onde de pompe, l'accord de phase est vérifié, soit : $\Delta k_{SHG} - G_{SHG} = 0$ et $\Delta k_{THG} - G_{THG} = 0$. Cela entraine une simplification des termes exponentiels, de sorte que le système devient :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial E_{\omega}^{z}(X)}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{\omega} n_z(\lambda_{\omega})}\chi_{33}^{(2)}(\omega = 2\omega - \omega)E_{2\omega}^{z}(X).E_{\omega}^{z*}(X)F^{SHG} \\ \dfrac{\partial E_{\omega}^{y}(X)}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{\omega} n_y(\lambda_{\omega})}\chi_{24}^{(2)}(\omega = 3\omega - 2\omega)E_{3\omega}^{y}(X).E_{2\omega}^{z*}(X)F^{THG} \\ \dfrac{\partial E_{2\omega}^{z}(X)}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{2\omega} n_z(\lambda_{2\omega})}\chi_{33}^{(2)}(2\omega = \omega + \omega)E_{\omega}^{z}(X).E_{\omega}^{z}(X)F^{SHG} \\ \qquad + j\dfrac{\pi}{\lambda_{2\omega} n_z(\lambda_{2\omega})}\chi_{24}^{(2)}(2\omega = 3\omega - \omega)E_{3\omega}^{y}(X).E_{\omega}^{y*}(X)F^{THG} \\ \dfrac{\partial E_{3\omega}^{y}(X)}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{3\omega} n_y(\lambda_{3\omega})}\chi_{24}^{(2)}(3\omega = \omega + 2\omega)E_{\omega}^{y}(X).E_{2\omega}^{z}(X)F^{THG} \end{cases} \tag{IV.24}$$

Cependant, même dans ces conditions, le système (IV.10) n'a pas de solution analytique. La résolution numérique du système est également fortement demandeuse en ressources. Elle est grandement simplifiée dans le cas où se sont les amplitudes réelles des champs $\left|E_{\omega_i}^{k}\right|$, avec $k = \{y, z\}$ et $\omega_i = \{\omega, 2\omega, 3\omega\}$ qui sont considérées, les amplitudes complexes et réelles étant reliées par :

$$E_{\omega_i}^{k}(X) = \left|E_{\omega_i}^{k}\right|(X)\cdot e^{j\phi_{\omega_i}^{k}(X)} \tag{IV.25}$$

où sont introduites les phases initiales des champs $\phi_{\omega_i}^{k}(X)$ et leurs amplitudes $\left|E_{\omega_i}^{k}\right|$, avec $k = \{y, z\}$, $\omega_i = \{\omega, 2\omega, 3\omega\}$.

En combinant les eqs. (IV.10) et (IV.25), il vient :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial\left|E_{\omega}^{z}(X)\right|}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{\omega} n_z(\lambda_{\omega})}\chi_{33}^{(2)}(\omega = 2\omega - \omega)\left|E_{2\omega}^{z}(X)\right|.\left|E_{\omega}^{z*}(X)\right|F^{SHG}e^{j\left[\phi_{2\omega}^{z}(X) - 2\phi_{\omega}^{z}(X)\right]} \\ \dfrac{\partial\left|E_{\omega}^{y}(X)\right|}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{\omega} n_y(\lambda_{\omega})}\chi_{24}^{(2)}(\omega = 3\omega - 2\omega)A_{3\omega}^{y}(X).\left|E_{\omega}^{z*}(X)\right|F^{THG}e^{j\left[\phi_{3\omega}^{y}(X) - \phi_{\omega}^{z}(X) - \phi_{2\omega}^{z}(X)\right]} \\ \dfrac{\partial\left|E_{2\omega}^{z}(X)\right|}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{2\omega} n_z(\lambda_{2\omega})}\chi_{33}^{(2)}(2\omega = \omega + \omega)\left|E_{\omega}^{z}(X)\right|.\left|E_{\omega}^{z}(X)\right|F^{SHG}e^{-j\left[\phi_{2\omega}^{z}(X) - 2\phi_{\omega}^{z}(X)\right]} \\ \qquad + j\dfrac{\pi}{\lambda_{2\omega} n_z(\lambda_{2\omega})}\chi_{24}^{(2)}(2\omega = 3\omega - \omega)\left|E_{3\omega}^{y}(X)\right|.\left|E_{\omega}^{y*}(X)\right|F^{THG}e^{j\left[\phi_{3\omega}^{y}(X) - \phi_{\omega}^{z}(X) - \phi_{2\omega}^{z}(X)\right]} \\ \dfrac{\partial\left|E_{3\omega}^{y}(X)\right|}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{3\omega} n_y(\lambda_{3\omega})}\chi_{24}^{(2)}(3\omega = \omega + 2\omega)\left|E_{\omega}^{y}(X)\right|.\left|E_{2\omega}^{z}(X)\right|F^{THG}e^{-j\left[\phi_{3\omega}^{y}(X) - \phi_{\omega}^{z}(X) - \phi_{2\omega}^{z}(X)\right]} \end{cases} \tag{IV.26}$$

Par identification des parties réelles des équations du système (IV.26), est obtenu le nouveau système d'équation suivant :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial\left|E_{\omega}^{z}(X)\right|}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{\omega}n_{z}(\lambda_{\omega})}\chi_{33}^{(2)}(\omega=2\omega-\omega)\left|E_{2\omega}^{z}(X)\right|.\left|E_{\omega}^{z*}(X)\right|F^{SHG}\sin\left[\Delta\phi_{SHG}\left(X\right)\right] \\ \dfrac{\partial\left|E_{\omega}^{y}(X)\right|}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{\omega}n_{y}(\lambda_{\omega})}\chi_{24}^{(2)}(\omega=3\omega-2\omega)A_{3\omega}^{y}(X).\left|E_{\omega}^{z*}(X)\right|F^{THG}\sin\left[\Delta\phi_{THG}\left(X\right)\right] \\ \dfrac{\partial\left|E_{2\omega}^{z}(X)\right|}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{2\omega}n_{z}(\lambda_{2\omega})}\chi_{33}^{(2)}(2\omega=\omega+\omega)\left|E_{\omega}^{z}(X)\right|.\left|E_{\omega}^{z}(X)\right|F^{SHG}\sin\left[-\Delta\phi_{SHG}\left(X\right)\right] \\ \qquad\qquad + j\dfrac{\pi}{\lambda_{2\omega}n_{z}(\lambda_{2\omega})}\chi_{24}^{(2)}(2\omega=3\omega-\omega)\left|E_{3\omega}^{y}(X)\right|.\left|E_{\omega}^{y*}(X)\right|F^{THG}\sin\left[\Delta\phi_{THG}\left(X\right)\right] \\ \dfrac{\partial\left|E_{3\omega}^{y}(X)\right|}{\partial X} = j\dfrac{\pi}{\lambda_{3\omega}n_{y}(\lambda_{3\omega})}\chi_{24}^{(2)}(3\omega=\omega+2\omega)\left|E_{\omega}^{y}(X)\right|.\left|E_{2\omega}^{z}(X)\right|F^{THG}\sin\left[-\Delta\phi_{THG}\left(X\right)\right] \end{cases}$$

(IV.27)

avec $\Delta\phi_{SHG}\left(X\right)=\phi_{2\omega}^{z}\left(X\right)-2\phi_{\omega}^{z}\left(X\right)$ et $\Delta\phi_{THG}(X)=\phi_{3\omega}^{y}\left(X\right)-\phi_{\omega}^{z}\left(X\right)-\phi_{2\omega}^{z}\left(X\right)$.

Les phases des champs pompe à ω sont fixées en entrée dans le cristal. Puisque ce n'est pas le cas pour les champs à 2ω et 3ω, leurs phases respectives peuvent prendre n'importe quelle valeur. Cependant, seuls les champs dont les phases initiales en X=0 conduisent à un déphasage de π/2 auront une intensité significative après propagation sur plusieurs longueurs de cohérence car il maximise la fonction sinus. Dans le cadre de ce système où sont considérées les parties réelles des champs, la prise en compte de ces phases conduit à l'obtention de signes différents dans les équations d'évolution (IV.28), selon que le champ est généré (+) ou consommé (-) par le processus décrit par l'équation. Finalement, le système qui sera résolu de manière numérique s'écrit :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial\left|E_{\omega}^{z}(X)\right|}{\partial X} = -\dfrac{\pi}{\lambda_{\omega}n_{z}(\lambda_{\omega})}\chi_{33}^{(2)}(\omega=2\omega-\omega)\left|E_{2\omega}^{z}(X)\right|.\left|E_{\omega}^{z*}(X)\right|F^{SHG} \\ \dfrac{\partial\left|E_{\omega}^{y}(X)\right|}{\partial X} = -\dfrac{\pi}{\lambda_{\omega}n_{y}(\lambda_{\omega})}\chi_{24}^{(2)}(\omega=3\omega-2\omega)A_{3\omega}^{y}(X).\left|E_{\omega}^{z*}(X)\right|F^{THG} \\ \dfrac{\partial\left|E_{2\omega}^{z}(X)\right|}{\partial X} = +\dfrac{\pi}{\lambda_{2\omega}n_{z}(\lambda_{2\omega})}\chi_{33}^{(2)}(2\omega=\omega+\omega)\left|E_{\omega}^{z}(X)\right|.\left|E_{\omega}^{z}(X)\right|F^{SHG} \\ \qquad\qquad - \dfrac{\pi}{\lambda_{2\omega}n_{z}(\lambda_{2\omega})}\chi_{24}^{(2)}(2\omega=3\omega-\omega)\left|E_{3\omega}^{y}(X)\right|.\left|E_{\omega}^{y*}(X)\right|F^{THG} \\ \dfrac{\partial\left|E_{3\omega}^{y}(X)\right|}{\partial X} = +\dfrac{\pi}{\lambda_{3\omega}n_{y}(\lambda_{3\omega})}\chi_{24}^{(2)}(3\omega=\omega+2\omega)\left|E_{\omega}^{y}(X)\right|.\left|E_{2\omega}^{z}(X)\right|F^{THG} \end{cases} \qquad \text{(IV.28)}$$

Ce sont donc les amplitudes réelles des champs qui seront intégrées numériquement afin de simuler les interactions non linéaires sous champ de pompe fort. Les amplitudes des champs pompe à ω sont reliées à l'énergie de pompe totale en entrée de cristal $\varepsilon_{\omega}^{tot}(X=0)$ selon les équations suivantes, obtenues en combinant les équations (I.5) et (I.67), soit :

$$\begin{cases} \left|E_{\omega}^{y}(X=0)\right| = \sqrt{\dfrac{\mu_0 c}{n_y(\lambda_\omega)\kappa_\omega} T_{\omega}^{y} \cos^2(\alpha)\varepsilon_{\omega}^{tot}(X=0)} \\ \left|E_{\omega}^{z}(X=0)\right| = \sqrt{\dfrac{\mu_0 c}{n_z(\lambda_\omega)\kappa_\omega} T_{\omega}^{z} \sin^2(\alpha)\varepsilon_{\omega}^{tot}(X=0)} \end{cases} \tag{IV.29}$$

avec :

$$\begin{cases} T_{\omega}^{y,z} = \dfrac{4n_{y,z}(\lambda_\omega)}{[1+n_{y,z}(\lambda_\omega)]^2} \\ \kappa_\omega = \left(\dfrac{\pi}{2}\right)^{3/2} \dfrac{\tau_\omega}{2} w_\omega^2 \end{cases} \tag{IV.30}$$

Les paramètres du faisceau pompe, la durée d'impulsion et la taille du rayon de ceinture τ_ω *et* w_ω sont celles respectivement données et mesurées en équation (IV.13). De la même façon, les amplitudes des champs à 2ω et à 3ω sont reliées aux énergies obtenues en sortie de cristal par :

$$\begin{cases} \varepsilon_{2\omega}(X=L) = \kappa_{2\omega} T_{2\omega}^{z} \dfrac{n_z(\lambda_{2\omega})}{\mu_0 c} \left|E_{2\omega}^{z}(X=L)\right|^2 \\ \varepsilon_{3\omega}(X=L) = \kappa_{3\omega} T_{3\omega}^{y} \dfrac{n_y(\lambda_{3\omega})}{\mu_0 c} \left|E_{3\omega}^{y}(X=L)\right|^2 \end{cases} \tag{IV.31}$$

avec :

$$\begin{cases} T_{2\omega}^{z} = \dfrac{4n_z(\lambda_{2\omega})}{[1+n_z(\lambda_{2\omega})]^2} \\ \kappa_{2\omega} = \left(\dfrac{\pi}{2}\right)^{3/2} \dfrac{\tau_{2\omega}}{2} w_{2\omega}^2 \\ T_{3\omega}^{y} = \dfrac{4n_y(\lambda_{3\omega})}{[1+n_y(\lambda_{3\omega})]^2} \\ \kappa_{3\omega} = \left(\dfrac{\pi}{2}\right)^{3/2} \dfrac{\tau_{3\omega}}{2} w_{3\omega}^2 \end{cases} \tag{IV.32}$$

Finalement, les rendements de conversion sont définis selon :

$$\begin{cases} \eta_{SHG} = \dfrac{\varepsilon_{2\omega}(X=L)}{\varepsilon_{\omega}^{tot}(X=0)} \\ \eta_{THG} = \dfrac{\varepsilon_{3\omega}(X=L)}{\varepsilon_{\omega}^{tot}(X=0)} \end{cases} \quad \text{(IV.33)}$$

Les relations entre les paramètres des faisceaux Gaussiens à ω et celles des faisceaux générés à 2ω et 3ω sont données par les équations (I.68) et (I.69). L'ensemble des outils théoriques qui permettent de simuler les interactions a été détaillé. Les calculs seront confrontés aux expériences dans les deux prochaines sections.

IV.6.3.2 Mesure des efficacités de la Génération de Second Harmonique

Les valeurs d'efficacité sont déterminées en mesurant l'énergie générée en fonction de l'intensité de pompe. Cette dernière est ajustée grâce à la combinaison d'une lame demi-onde et d'un prisme Glan-Laser en amont du cristal de QPPKTP, comme présenté en Figure IV.10.

Dans un premier temps, le rendement de la SHG est mesuré lorsque seule l'étape de SHG a lieu, c'est-à-dire lorsque l'angle de polarisation de la pompe est fixé à α=90°, (voir Figure IV.16). Ensuite, la mesure est effectuée à nouveau, pour l'angle maximisant l'efficacité de la THG, soit α=54°. Dans les deux cas, les processus sont en quasi-accord de phase. Les deux rendements ainsi mesurés sont tracés en Figure IV.17.

Les deux rendements augmentent progressivement avec l'intensité de pompe, jusqu'à atteindre un palier pour des intensités de pompe supérieures au $GW.cm^{-2}$. C'est le comportement attendu pour des interactions parfaitement en quasi-accord de phase et en régime de la pompe dépeuplée Par contre, une nette différence est obtenue entre les valeurs maximales calculée et mesurée, soit :

$$\begin{cases} \eta_{SHG}^{\max}(\alpha = 90°) = 45 \pm 7\% \\ \eta_{SHG}^{\max}(\alpha = 54°) = 17 \pm 3\% \end{cases} \quad \text{(IV.34)}$$

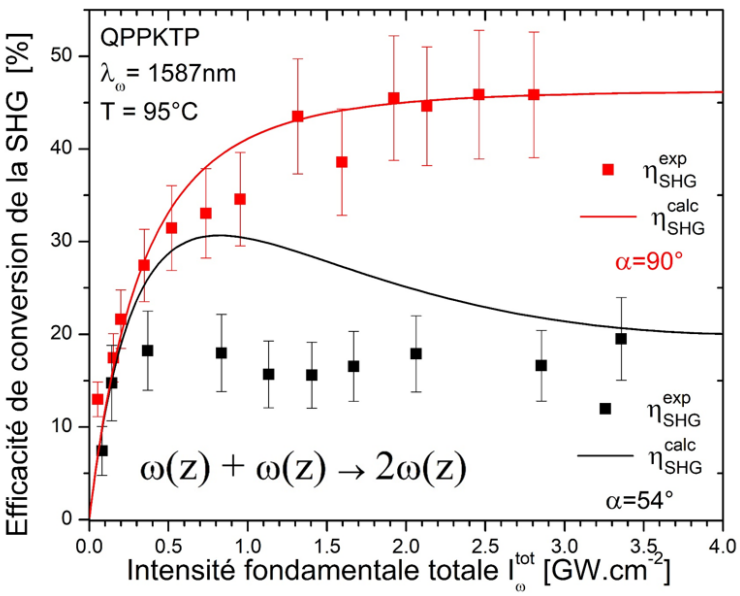


Figure IV.17 : Rendements de conversion en énergie de la SHG. Les points correspondent aux données expérimentales. Les traits pleins sont obtenus par résolution numérique du système (IV.28) avec les coefficients de Fourier du réseau comme paramètres ajustables. La courbe rouge correspond au cas où la SHG est seule (α=90°), la courbe noire au cas où les photons de SHG sont consommés par la deuxième étape de la cascade (α=54°).

Les forts rendements de conversion corroborent l'allure des courbes et prouvent que la SHG est réalisée dans le régime de la pompe dépeuplée. La différence observée entre les rendements, en présence ou non de la seconde étape de la cascade, prouve également le fait que le signal de second harmonique est dépeuplé par la THG, autrement dit que les photons de SHG sont consommés par la seconde étape de la cascade. C'est l'effet attendu de la combinaison des interactions au sein du cristal. Il est à noter que le rendement de 45% est très bon, légèrement inférieur aux valeurs maximales observées dans la littérature dans des conditions expérimentales similaires, c'est-à-dire sans cavité [127].

Les ajustements ont été réalisés à partir des équations (IV.28) et (IV.33). La résolution numérique du système d'équations couplées est basée sur la méthode Runge-Kutta, en prenant les longueurs effectives des SHG et THG déterminées précédemment. Les seuls paramètres d'ajustement que nous avons considérés sont les coefficients de Fourier F^{SHG} et F^{THG} afin de prendre en compte les imperfections du réseau que nous nous considérons comme dominantes par rapport à d'autres paramètres du système.

Les autres paramètres physiques qui ont été utilisées pour effectuer les calculs sont donnés dans le Tableau IV.2. Les indices ont été calculés à partir des données de [9] et des relations (I.15)-(I.18). Les coefficients non linéaires ont été calculés à partir des valeurs issues de [16] et des équations de Miller (I.46). Les durées d'impulsion et les rayons au col ont été calculés à partir des équations (I.68) et (I.69).

	λ_{ω_i} [nm]	τ_{ω_i} [ps]	$n_y(\lambda_{\omega_i})$	$n_z(\lambda_{\omega_i})$	w_{ω_i} [µm]	$T^z_{\omega_i}$	$T^y_{\omega_i}$	$\chi^{(2)}_{33}$ [pmV^{-1}]	$\chi^{(2)}_{24}$ [pmV^{-1}]
ω	1587	15.0	1.7363	1.8150	205	0.917	0.929	16.1	3.8
2ω	793.5	10.6	-	1.8445	145	0.912	-	19.2	4.8
3ω	529	8.7	1.7907	-	118	-	0.920	-	5.3

Tableau IV.2 : Paramètres utilisés pour l'intégration numérique du système (IV.28).

L'ajustement concernant le cas où la SHG est la seule interaction (α=90°) est réalisé en premier, et permet de fixer le coefficient F^{SHG}. Le meilleur accord a été obtenu pour $F^{SHG} = 0,28$, ce qui correspond à une diminution de 30% par rapport à sa valeur théorique. La forme de la courbe obtenue (en noir sur la Figure IV.17) est en très bon accord avec les mesures. L'ajustement suivant (en rouge sur la Figure IV.17) a été réalisé en prenant cette fois-ci F^{THG} comme paramètre d'ajustement, pour le système prenant en compte la THG, avec $F^{SHG} = 0,28$. Un très bon accord a été obtenu avec une diminution de 8% de ce coefficient qui est donc égal à $F^{THG} = 0,368$.

IV.6.3.3 Efficacité de la Génération de Troisième Harmonique

Les mesures du rendement de la THG ont été réalisées simultanément à l'acquisition des données SHG de la courbe noire présentée en Figure IV.17 en utilisant le montage expérimental décrit précédemment utilisant deux joule-mètres : l'un dédié à la mesure de la SHG, l'autre à la mesure de la THG.

Les résultats expérimentaux obtenus pour la THG sont repris sur la Figure IV.18. L'évolution du rendement est la même que pour les courbes d'évolution de la SHG, avec une augmentation rapide jusqu'à une valeur palier. Cette évolution est compatible une fois de plus avec le régime des pompes dépeuplées : la pompe à ω et la pompe à 2ω.

Le rendement maximal est donc atteint pour des intensités de pompe supérieures au GW.cm^{-2} et vaut :

$$\eta_{THG}^{\max} = 40 \pm 8\% \qquad \text{(IV.35)}$$

Sur la Figure IV.18, la courbe en trait plein correspond au résultat de la résolution du système d'équations couplées en utilisant les paramètres ajustés précédemment F^{SHG} et F^{THG}. L'accord observé avec la théorie est bon, principalement au niveau de l'allure de la courbe. Les simulations ont également montré que l'évolution des rendements devient chaotique pour de grandes longueurs de cristal, ce qui avait été souligné par Alekseev [148]. Ainsi, augmenter la longueur du cristal au-delà de 1cm n'augmenterait pas forcément le rendement de conversion.

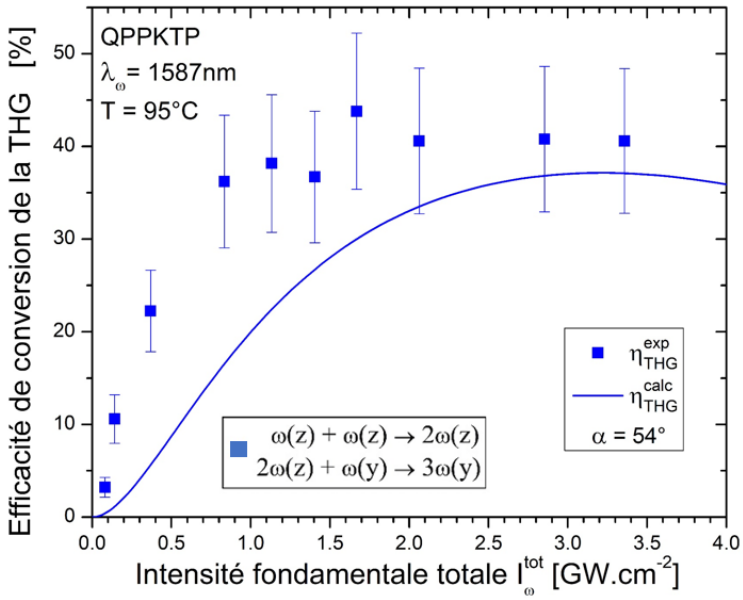


Figure IV.18 : Rendement de conversion en énergie de la THG. Les points sont les données expérimentales, le trait plein est un calcul numérique effectué à partir du système d'équations couplées qui régit l'évolution des deux étapes de la cascade.

Selon l'étude bibliographique qui a été menée, le rendement de THG mesuré, $\eta_{THG}^{\max} = 40 \pm 8\%$, est le plus fort jamais rapporté. La plus haute valeur que nous ayons trouvé est en effet rapportée à 30,7% dans un cristal de KDP [132]. Un rendement de 27% a également été rapporté dans un cristal quasi-périodique [141]. En outre, il est fort probable que le rendement aurait été plus fort dans la zone n°6 du cristal, puisque les deux étapes de la cascade auraient été gouvernées par le coefficient non linéaire $\chi_{33}^{(2)}$ le plus fort disponible. Il ressort donc de cette étude que ces cristaux sont d'excellents candidats pour la réalisation industrielle de système compacts de génération dans l'ultra-violet autour de 330nm à partir des faisceaux laser proches de 1µm.

IV.7 Conclusion

Une alternative technologique basée sur l'idée d'une génération de triplets par cascade de deux processus quadratiques successifs a été étudiée. Le contexte scientifique dans lequel le choix et la conception du cristal ont été réalisés a été rappelé. La caractérisation complète des deux étapes de la cascade pour l'une des zones du cristal fabriqué en Israël et conçu par l'équipe d'Ady Arie a ensuite été effectuée. Des conditions de SHG et THG en quasi-accord de phase simultané ont été déterminées expérimentalement, en excellent accord avec la théorie qui a été présentée. Les mesures d'efficacité de THG, processus inverse de la TPG, ont été réalisées avec succès, en très bon accord avec la théorie. Le rendement obtenu est par ailleurs considérable puisqu'il atteint $\eta_{THG}^{\max} = 40 \pm 8\%$. Ce travail a fait l'objet d'une publication [147] et de plusieurs communications orales.

Ce cristal de QPPKTP qui permet d'optimiser la cascade quadratique a donc un très fort potentiel en tant que source de triplets de photons, puisque TPG et THG présentent les mêmes conditions d'accord de phase. De plus, la THG la plus efficace a été ici obtenue en pompant à 1587±1nm. Ainsi, le quasi-accord de phase de la TPG pompée à 527nm ne sera pas exactement atteint, mais il sera possible d'agir sur la température du cristal pour le réaliser. Il faudra procéder de même si l'intention est d'utiliser un laser de pompe à 532nm. Quelle que soit la longueur d'onde de pompe utilisée pour la TPG, il sera important de porter une attention particulière au filtrage des photons intermédiaires à 2ω. La comparaison des propriétés quantiques des triplets ainsi obtenus avec celles des triplets par interaction $\chi^{(3)}$ pure s'annonce particulièrement exaltante d'un point de vue fondamental.

V Mesures de coïncidences

Heureux qui, comme Ulysse, a fait un beau voyage

Joachim Du Bellay, *Les Regrets*

V.1 Introduction

Les solutions technologiques que sont les guides d'onde taillés en arête et les cristaux de QPPKTP étudiées dans les chapitres III et IV permettent d'atteindre de plus forts rendements de THG que les records mesurés dans le cristal massif. Ainsi, les triplets de photons seront générés dans l'infrarouge de manière plus efficace que dans un cristal massif. Toutefois, la fluorescence paramétrique d'ordre 3 ou la cascade de deux processus d'ordre 2 ont de faibles efficacités. Le modèle quantique développé dans l'équipe donne une valeur de l'ordre de 100 triplets par seconde générés dans un guide arête de 3 cm de long pompé avec 5 W à 532 nm en régime continu. C'est aussi de cet ordre de grandeur pour QPPKTP. Ces flux de photons sont donc très petits. C'est pourquoi il faut pouvoir disposer de détecteurs ultra-sensibles dans la gamme d'émission des triplets, c'est-à-dire entre 1500 nm et 1600 nm. Par ailleurs, l'objectif est d'utiliser les sources de triplets de photons dans le développement de nouveaux protocoles de communication quantique. Or, le développement de protocoles de cryptographie quantique basés sur des sources de photons jumeaux résumé dans le chapitre II a permis l'essor de détecteurs de plus en plus sensibles dans ce domaine spectral. Les principales caractéristiques que le détecteur « idéal » doit combiner sont données ci-dessous.

- Son *efficacité quantique* doit être élevée sur une grande largeur spectrale.
- La probabilité de générer intrinsèquement un bruit (*dark count*), c'est-à-dire un signal en l'absence de photon incident, doit être faible.
- L'intervalle de temps entre la détection d'un photon et la génération d'un signal électrique doit être le plus constant possible. La gigue temporelle (*jitter*) doit donc être faible pour maximiser la résolution temporelle.
- Le temps de récupération (*dead time*) doit être suffisamment court pour permettre de fonctionner à une vitesse importante.

Dans les années 2000, les détecteurs qui ont été utilisés pour les premières démonstrations de cryptographie quantique ont été des photodiodes à avalanche (APD) de type InGaAs [149–151]. Toutefois, les APD InGaAs ont l'inconvénient de donner lieu à un rebond (*after-pulse*) important qui limite leur mode d'utilisation dans les expériences de cryptographie. Par ailleurs, les efficacités quantiques dépassent rarement les 30% surtout si l'on veut détecter des photons au-delà de 1,5 µm ; dans ce cas elles n'excèdent pas 10% [53]. C'est insuffisant pour la détection des rares évènements de génération de triplets de photons. Par exemple, l'étude de Jennewein et al., qui utilisait des APD pour les mesures de coïncidences temporelles de triplets

de photons générés par cascade de second ordre, avaient nécessité l'intégration de plus de 72 heures d'acquisition et n'avaient pas permis d'analyses plus poussées [84].

Une innovation qui a récemment émergé et repoussé les limites de sensibilité des compteurs de photons dans l'infrarouge est la technologie SNSPD (*Superconducting Nanowire Single Photon Detectors*) [152]. Les SNSPD ont de très bonnes efficacités quantiques [153], un courant d'obscurité très faible pouvant descendre jusqu'à 1 Hz [154], un temps de récupération ultracourt [155] de l'ordre de la centaine de picosecondes, et un *jitter* qui n'excède pas quelques dixièmes de picosecondes [156,157]. Toutes ces caractéristiques font des SNSPD un candidat idéal pour la détection des triplets de photons et l'étude de leurs propriétés quantiques [158].

Un des seuls inconvénients des SNSPD réside dans la température de fonctionnement qui est ultra-basse, ce qui ajoute quelques contraintes expérimentales. Il faut en effet installer les détecteurs au cœur d'un cryostat à Hélium liquide et par conséquent travailler avec des fibres optiques. Le couplage entre la fibre optique et le détecteur nécessite une expertise particulière. Il y a également un gros travail électronique pour la lecture des données. Une excellente revue de Dauler *et al.* sur ce sujet permet de constater l'immense défi technologique relevé sur chacun de ces aspects [159]. L'équipe du GAP à l'Université de Genève, qui appartient au consortium de l'ANR franco-suisse TriQuI, est au cœur de ce travail. Elle a activement participé à cette révolution. Grâce à notre collaboration, nous avons pu acquérir des détecteurs ultra-performants dont l'efficacité quantique est souvent supérieure à 70%.

L'objectif principal est dans un premier temps la mesure d'histogrammes de coïncidences temporelles entre les photons triplets générés, la mesure d'un pic de coïncidences étant la signature de corrélations temporelles. Ces mesures ne suffisent toutefois pas à démontrer le fait que l'état généré soit non classique. C'est pour cette raison que l'équipe du GAP est en train de développer des protocoles de caractérisation des états quantiques basés sur ces mesures de coïncidences.

La première partie de ce chapitre sera consacrée à la présentation succincte du fonctionnement de ces détecteurs et des caractéristiques des détecteurs développés par le GAP qui seront, à terme, utilisés pour les expériences de génération de triplets La seconde partie détaillera la mise en place de ces détecteurs à travers une expérience de génération de photons jumeaux au voisinage de 1600 nm dans un cristal de KTP pompé par un laser Ti :Saphir. En conclusion seront tirés les premiers enseignements de ces expériences, qui sont cruciales pour la préparation des expériences de mesures de coïncidences des photons triplets.

V.2 Nanofils Supraconducteurs Détecteurs de Photons Uniques

V.2.1 Principe de fonctionnement d'un SNSPD

En 1971, la perte de la supraconductivité d'un film de Pb a été mise en évidence suite à l'exposition à un faisceau laser, cet état résistif ne pouvant pas être expliqué par des effets thermiques [160]. L'explication défendue par les auteurs considère que l'énergie des photons absorbés conduit à un état hors équilibre avec des quasiparticules excitées à une température supérieure à celles des paires de Cooper du supraconducteur, ce qui conduit à la perte locale de supraconductivité. Sur ce principe, en 2001, Gol'tsman *et al.* ont mis au point le premier compteur de photon unique basé sur un nanofil supraconducteur de NbN [161].

Un schéma de principe du fonctionnement d'un SNSPD est donné sur la Figure V.1.(a) tirée de l'article de revue par Natarajan *et al.* [162].

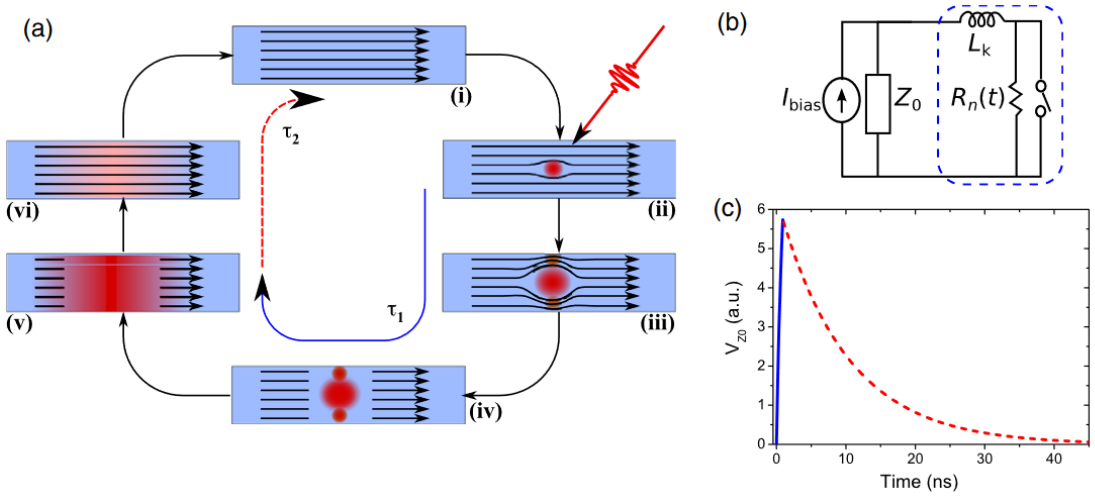


Figure V.1 : (a) Schéma de principe du fonctionnement d'un SNSPD. (i) Un nanofil en matériau supraconducteur est placé en dessous de sa température critique T_c. Le courant de *bias* qui le traverse, symbolisé par les flèches, est alimenté à une valeur légèrement inférieure à son courant critique. (ii) L'absorption d'un photon crée un point chaud résistif. (iii) Le courant supraconducteur est alors contraint à se détourner vers la périphérie du nanofil. Du fait de l'étroitesse du nanofil, la densité de courant autour du point chaud augmente jusqu'à dépasser la densité de courant critique ; il y a donc perte de l'état supraconducteur. (iv) Il y a donc formation d'une barrière résistive ; cette apparition subite d'une résistance génère une tension en sortie mesurable. (v) Le chauffage par effet Joule induit par le courant de *bias* DC contribue à augmenter la taille de la barrière résistive jusqu'à interruption totale du courant de *bias*. (vi) Le retour à l'état initial se fait après un temps caractéristique. (b) Circuit électrique équivalent à ce SNSPD. (c) simulation de l'évolution temporelle de la tension de sortie du SNSPD. Tiré de [162].

La Figure V.1.(b) donne le schéma d'un circuit électrique équivalent à ce SNSPD. L_k est l'inductance du nanofil supraconducteur et R_n est la résistance (*hotspot*) du SNSPD. Le courant dans le SNSPD est fixé à I_{bias}. L'ouverture/fermeture de l'interrupteur simule l'absorption d'un photon par le SNSPD. Une impulsion de sortie obtenue quand le nanofil devient résistif est mesurée à travers la résistance Z_0. Quand un photon est absorbé et casse la supraconductivité, la résistance (*hotspot*) est de l'ordre de R_n =1 kΩ. Le courant est alors dévié vers le circuit de lecture avec une constante de temps de l'ordre de L_k/R_n =1ns. Lorsque le courant a été coupé dans le nanofil, celui-ci se refroidit avec une constate de temps L_k/Z_0, souvent proche de 50Ω [163]. Sur la courbe tracée en Figure V.1(c) est proposée une simulation de l'évolution temporelle de la tension de sortie du SNSPD. Le front montant de la tension de sortie est donné en trait plein bleu. La queue de ce même signal est en pointillés rouge.

Finalement, ce sont les constantes de temps qui permettent de mieux appréhender le déroulement de toutes les étapes que décrit la Figure V.1(a).

Les détecteurs qui ont été conçus par l'équipe du GAP ont été optimisés notamment au niveau du temps de retour à l'équilibre qui permet d'augmenter la cadence de détection. De plus, les nanofils ont été mis en cavité afin d'optimiser la détection de photons dans la bande télécom comme présenté en Figure V.2(b). Ils sont décrits dans la partie suivante.

V.2.2 Caractéristiques des SNSPD conçus au GAP

Le GAP a livré à l'Institut Néel deux séries de 3 SNSPD. Ces nanostructures sont des supraconducteurs amorphes Molybdène-Silicium (MoSi) [164,165]. La figure V.2 donne un aperçu de la structure des nanofils et de l'ingénierie permettant d'optimiser le taux de détection dans la bande télécom.

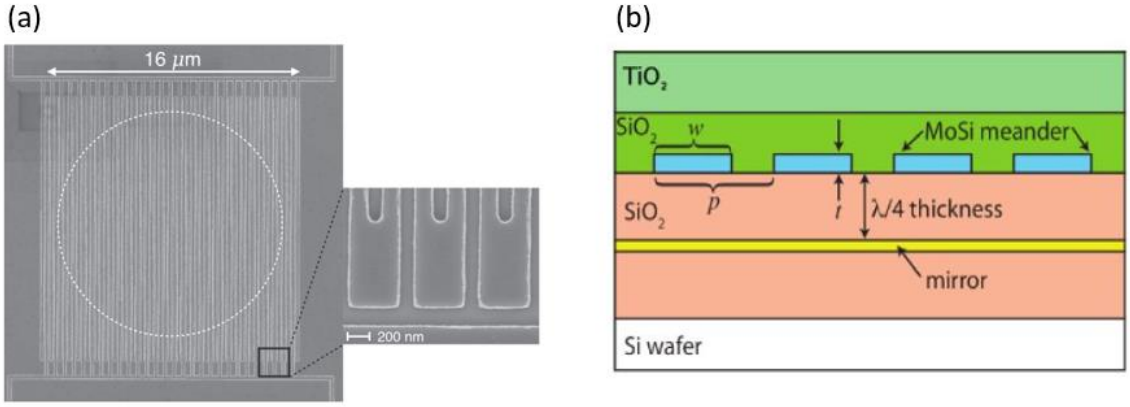


Figure V.2 : (a) Cliché MEB de la structure des nanofils de MoSi [166]. Un faisceau d'électron est utilisé pour inscrire la structure en nanofils à partir d'un film mince de MoSi. Le cercle en pointillés indique la zone sur laquelle les photons seront absorbés, ce qui correspond à la limite du mode gaussien à la sortie de la fibre optique. L'encart propose un zoom sur la qualité et la finesse des structures obtenues. (b) Schématisation de la structure au sein de laquelle les nanofils sont placés en cavité afin d'optimiser le taux de détection dans l'IR.

Seront décrites ici les caractéristiques de la seconde série de détecteurs fournie par le GAP. Ces SNSPD sont installés au cœur d'un cryostat à Helium liquid (Sumitomo) en circuit fermé, comme présenté en Figure V.3. La température de fonctionnement des SNSPD est de 0,8 K. Un *time controller* (ID900) de la société IDQ permet de contrôler un à quatre SNSPD à la fois, et de construire les histogrammes de coïncidences entre les différentes voies de mesures.

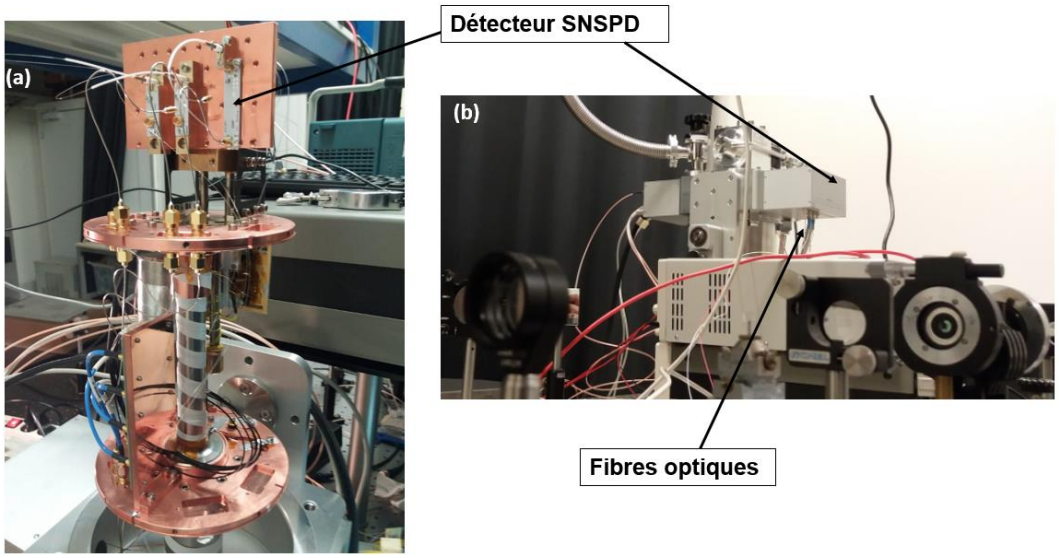


Figure V.3 : (a) Cryostat Sumitomo ouvert pour l'installation des SNSPD. (b) Cryostat sous vide, installé sur le banc optique. Les photons générés sont collectés par des fibres optiques.

Chaque SNSPD est livré avec deux caractéristiques. La première donne l'efficacité de détection à une longueur d'onde donnée en fonction du courant de bias. La seconde donne le bruit mesuré (*dark counts*) également en fonction de ce courant de bias.

Ce nombre de d*ark counts* va également dépendre du seuil fixé électroniquement pour la détection d'un photon, de sorte que l'opérateur peut optimiser le rapport signal sur bruit. La Figure V.4 présente les caractéristiques des trois détecteurs optimisés pour une détection dans la bande télécom. Ces caractéristiques permettent d'identifier la tension de *bias* optimale pour chaque détecteur ; elle est directement reliée au courant de *bias*. Pour le détecteur 1, elle est de 2,7 V, soit 27 µA ; 2,8 V pour le deuxième ; 3 V pour le détecteur 3.

Le nombre de *dark counts* pour ces détecteurs est d'environ 1100 Hz dans les conditions expérimentales actuelles, pour un seuil de détection fixé à -150 mV. Il sera important de diminuer ce nombre lorsqu'il s'agira de mesurer les coïncidences dans les expériences de génération de triplets de photons. Une façon de procéder est de veiller à filtrer les longueurs d'ondes dans l'infrarouge moyen, au-delà de 2 µm.

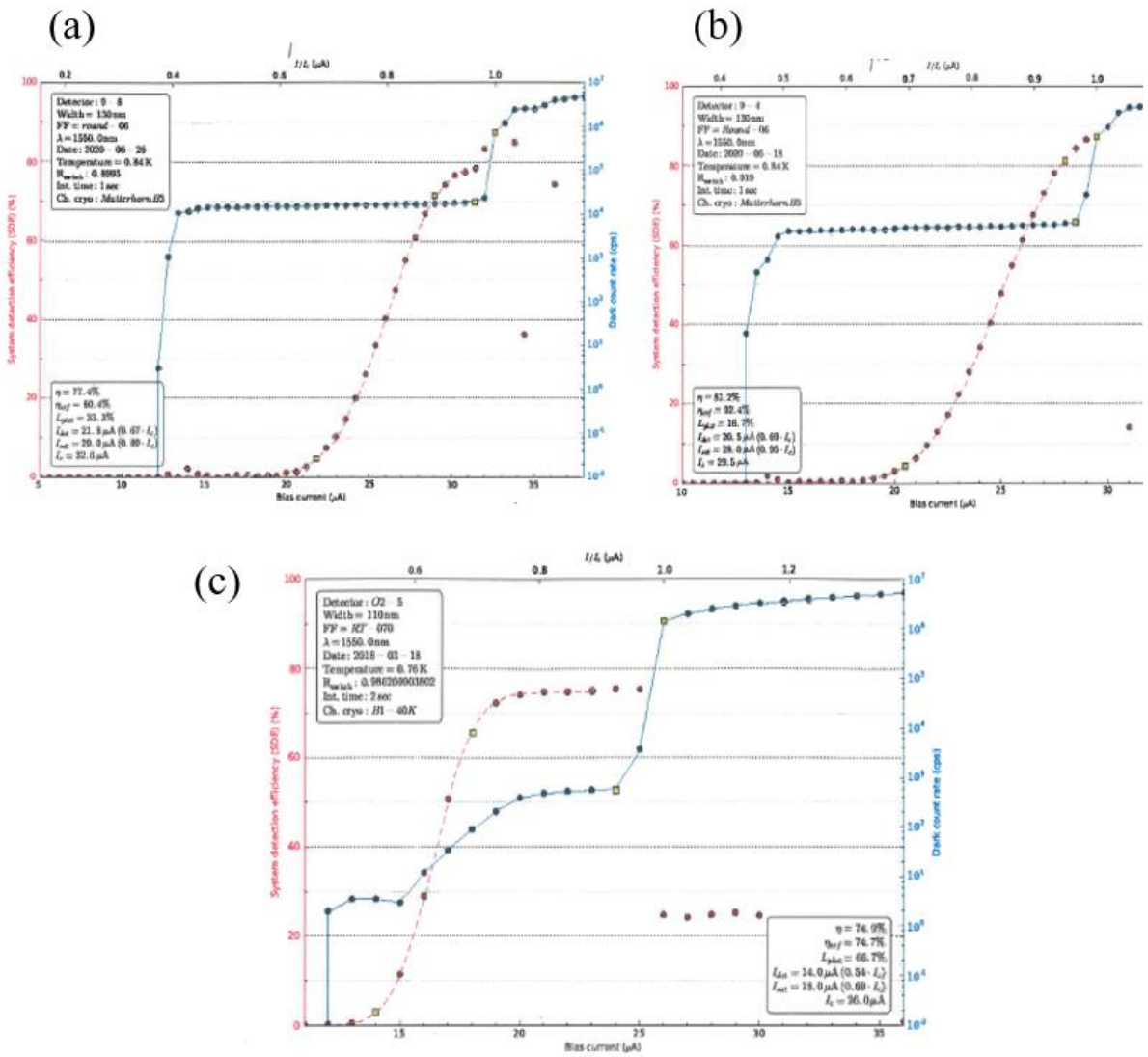


Figure V.4. Evolution de l'efficacité de détection (en rouge) et du niveau moyen de bruit (en bleu) en fonction du courant de *bias* pour les détecteurs 1 (a), 2 (b) et 3 (c) fournis à l'Institut Néel par le GAP. Les caractéristiques sont données pour une longueur d'onde de 1550 nm.

L'efficacité optimale de détection à 1550 nm pour chacun de ces détecteurs est donc supérieure ou égale à 80% et reste excellente jusqu'à 1600nm. Apparaît également qu'au-delà d'un certain courant de *bias*, le SNSPD perd son caractère supraconducteur, et le détecteur n'est plus opérationnel. Du fait de la fragilité des dispositifs, le transport des détecteurs depuis la Suisse et leur installation dans le cryostat ont été risquées. Un moyen de vérifier leur bon fonctionnement a été de mesurer à nouveau le nombre de photons détectés en fonction de la tension de *bias* (courbes bleues de la Figure V.4). Cette caractérisation a été notamment réalisée pour le détecteur 4, issu de la première génération des SNSPD fournis à l'Institut Néel. Elle est donnée ci-dessous en Figure V.5.

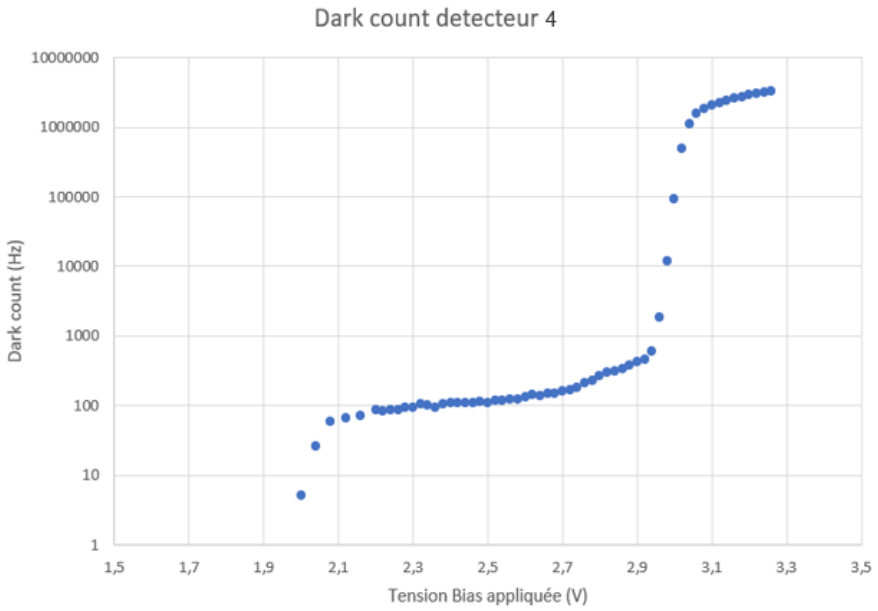


Figure V.5 : Caractéristique du nombre de photons détectés (bruit de fond) pour le détecteur 4 en fonction de la tension de *bias*. Ce type de courbe permet de vérifier le bon fonctionnement du SNPD.

Les expériences d'optique non linéaire quantique qui vont reposer sur ces détecteurs font intervenir des longueurs d'onde différentes. L'étude de la dépendance spectrale de l'efficacité des détecteurs présentée dans la section suivante est donc d'une importance capitale.

V.2.3 Dépendance spectrale de l'efficacité de détection

L'efficacité quantique des détecteurs en fonction de la longueur d'onde est donc un paramètre de première importance pour une utilisation optimale de ces détecteurs SNSPD dans des expériences de génération de paires ou de triplets de photons. La Figure V.6 montre que ces détecteurs, s'ils sont optimisés pour de grandes longueurs d'onde, sont également sensibles aux longueurs d'onde plus courtes. L'efficacité maximale est même atteignable pour les courtes longueurs d'onde, avec des courants de *bias* plus faibles que ceux fixés dans le cadre de nos expériences. Il faudra tout de même veiller ici à filtrer drastiquement, par exemple avec des filtres *Notch* étroits, les photons de pompe et les photons parasites comme ceux de second harmonique par exemple. Le but est de diminuer au maximum le bruit pour les mesures de coïncidences qui nécessitent le meilleur rapport signal sur bruit possible.

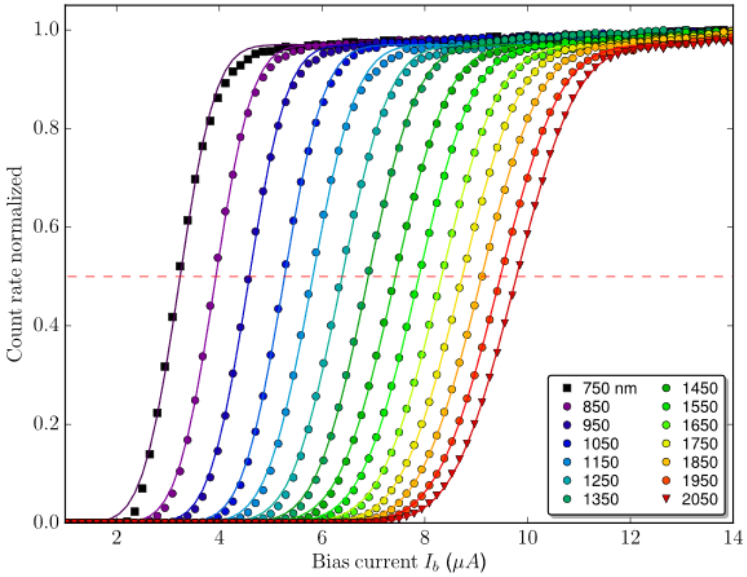


Figure V.6 : Efficacité du comptage des photons en fonction du courant de *bias* pour diverses longueurs d'onde, de 750 nm à 2050 nm. Tiré de [166].

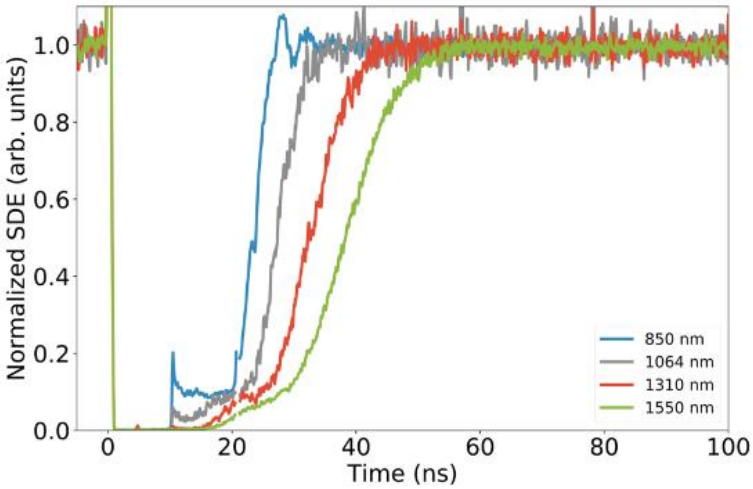


Figure V.7 : Mesure du temps de retour à l'équilibre de l'efficacité de détection en fonction de la longueur d'onde. Tiré de [163].

Il a été vu qu'un autre paramètre important du fonctionnement d'un SNSPD est le temps de retour à l'équilibre de l'efficacité de détection après absorption d'un photon. Ce temps caractéristique dépend lui aussi de la longueur d'onde du photon absorbé. Comme le montre la Figure V.7, plus la longueur d'onde est courte plus le détecteur retrouve son efficacité quantique maximale rapidement. Ainsi, lors de la détection d'un photon parasite de longueur d'onde inférieure à 1600nm, le temps de retour à l'équilibre sera rapide, ce qui est un avantage certain pour notre application.

Tous ces paramètres seront pris en compte lors des expériences de TPG pour lesquelles la détection sera optimisée, particulièrement vis-à-vis du rapport signal sur bruit. Nous avons eu la chance de bénéficier de l'expertise du GAP qui a conçu ces détecteurs. La prochaine partie s'attachera à décrire les expériences de génération de photons jumeaux dans la bande télécom, ce qui nous a permis la prise en main des détecteurs et la préparation des expériences de TPG.

V.3 Mesures préliminaires de paires de photons

Afin de prendre en main les détecteurs et l'électronique sur laquelle reposent les mesures de coïncidences, nous avons mis en place une expérience de génération de paires de photon utilisant un cristal de KTP taillé à $\theta \approx 52°$ dans le plan XZ. L'objectif est de générer des paires dans la gamme spectrale ciblée pour TPG, entre 1500 et 1600 nm. La source de pompe utilisée est un laser Ti:Saphir en mode continu ou femtoseconde, lui-même pompé par le laser qui servira de source pour les futures expériences de génération de triplets. L'ensemble de ces similarités permet de préparer au mieux les expériences de TPG. La conception du générateur de paires sera explicitée dans un premier temps. Le dispositif expérimental sera ensuite présenté. Les premières mesures de paires seront finalement décrites et analysées.

V.3.1 Conditions d'accord de phase de la fluorescence paramétrique d'ordre 2 dans un cristal de KTP

La conception du générateur de paires dans la bande télécom passe par la détermination des conditions d'accord de phase. La direction de propagation est choisie dans le plan xOz du cristal de KTP. L'accord de phase par biréfringence est de type II, ce qui va permettre de séparer en polarisation les photons générés. La relation correspondante s'écrit :

$$\frac{n^y(\lambda_{2\omega})}{\lambda_{2\omega}} - \frac{n^{xz}(\lambda_\omega, \theta, \varphi = 0)}{\lambda_\omega} - \frac{n^y(\lambda_\omega)}{\lambda_\omega} = 0 \qquad \text{(V.1)}$$

L'indice de réfraction $n^{xz}(\lambda_\omega, \theta, \varphi = 0)$ est décrit par une ellipse obtenue à partir de l'équation (I.12), ce qui donne :

$$n^{xz}(\lambda_\omega, \theta, \varphi = 0) = \left(\frac{\cos^2(\theta)}{\left[n^x(\lambda_\omega)\right]^2} - \frac{\sin^2(\theta)}{\left[n^z(\lambda_\omega)\right]^2} \right)^{-1/2} \qquad \text{(V.2)}$$

Ainsi, il est possible de déduire pour quel couple (λ_ω, θ) l'accord de phase de la génération de paires de photons est vérifié. La courbe d'accord de phase obtenue par résolution de l'équation (V.1) est donnée sur la Figure V.8. Le calcul est réalisé avec les coefficients de Sellmeier issus de l'étude de Kato [9].

Pour générer des paires de photons dans la bande télécom, la longueur d'onde de pompe doit donc être située dans la gamme spectrale 780-820 nm, ce qui correspond à la gamme d'émission d'un laser Ti :Sa standard. Il ressort de la Figure V.8 qu'il faut choisir un cristal de KTP taillé dans le plan XZ à $\varphi = 0$ et θ entre 52 et 54°.

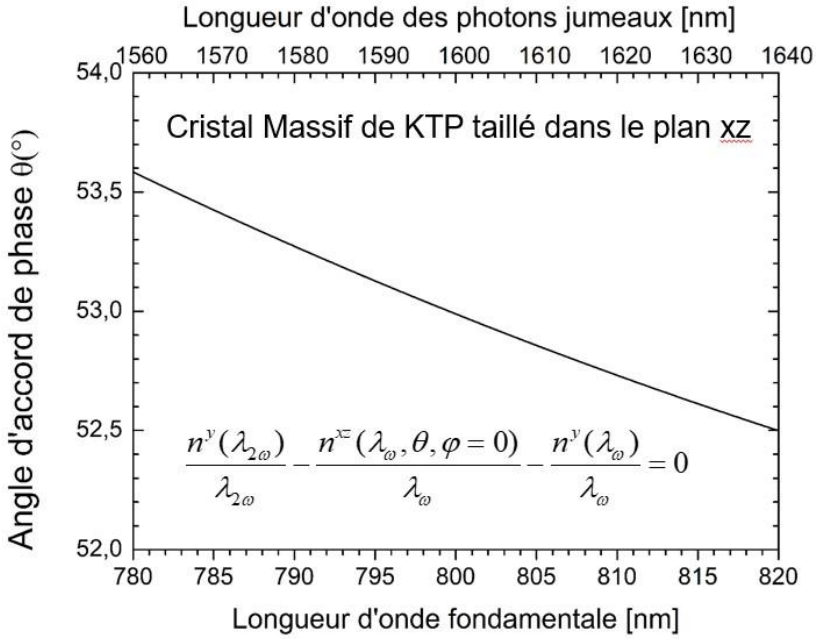


Figure V.8 : Angle d'accord de phase de type II calculé en fonction de la longueur d'onde de pompe pour la génération de paires de photons.

V.3.2 Dispositif expérimental pour la génération de paires de photons.

Compte-tenu des calculs présentés dans la section précédente, l'expérience de génération de paires a été bâtie autour d'un cristal taillé à θ =52° de 2 mm d'épaisseur. Le dispositif expérimental est schématisé Figure V.9.

Le laser de pompe est un oscillateur TI :Sa pompé par le second harmonique d'un laser continu Nd :YAG. Deux fonctionnements sont possibles. Soit le laser est utilisé en mode continu (CW), de sorte que l'émission est monochromatique, pouvant être ajustée entre 780 et 810 nm. Soit il fonctionne en régime impulsionnel : le laser émet alors des impulsions femtosecondes, donc très larges spectralement, environ 50 nm, à un taux de répétition proche de 73 MHz. La puissance moyenne accessible pour chaque type de fonctionnement est de l'ordre de 300 mW.

Une combinaison d'une lame demi-onde et d'un prisme Glan-Taylor permet d'adapter la puissance de pompe sur le cristal de KTP. Le faisceau est focalisé au centre du cristal à l'aide d'une lentille de focale de 10 cm. Le cristal est monté sur une platine qui permet d'accéder à une variation de l'angle θ (plan horizontal) et de l'angle φ (plan vertical), ce qui permet d'accéder à la direction d'accord de phase ; trois platines de translation permettent le réglage vertical et latéral du cristal et d'ajuster sa position dans le plan focal de la lentille.

Une seconde lentille placée après le cristal de KTP permet d'assurer la collimation des faisceaux de pompe et de paires générées. Il s'agit d'un montage classique de type 4f. Le faisceau pompe est ensuite filtré drastiquement à l'aide de deux filtres passe-haut (Semrock, edge filter) à 1319 nm : toutes les longueurs d'onde en dessous de 1319 nm sont ainsi filtrés deux fois avec un taux d'extinction de 10^{-4}. Ainsi à 800 nm, pour un faisceau pompe de 1 mW @ 800 nm, il ne restera après les deux filtres qu'environ 10 pW, alors que plus de 90 % du faisceau de paires de photons à 1600 nm traverse ces deux filtres. Le faisceau de paires est ensuite injecté dans une fibre optique monomode à maintien de polarisation (PN1550 Thorlabs) par l'intermédiaire d'un objectif de microscope x20. Cette fibre optique est un dispositif particulier parce qu'elle comporte un prisme de Glan-Taylor intégré qui distribue les faisceaux selon leur polarisation, horizontale ou verticale, sur deux fibres optiques différentes. Ces deux fibres, propageant chacune un des deux photons de la paire, sont ensuite connectées chacune à un détecteur SNSPD. Les SNSPD étant sensibles à la polarisation de la lumière qu'ils reçoivent, l'efficacité de détection est ajustée par des boucles de Lefèvre sur le trajet de chaque fibre optique.

Le signal électrique issu de chaque détecteur est exprimé en Hz pour indiquer le nombre de photons détectés par seconde ; il est envoyé sur l'électronique (Time Controller) de IDQ. Grâce à cette électronique, les coïncidences entre les deux voies, autrement dit entre les deux polarisations différentes, sont mesurées. Les mesures réalisées sont présentées dans la partie suivante.

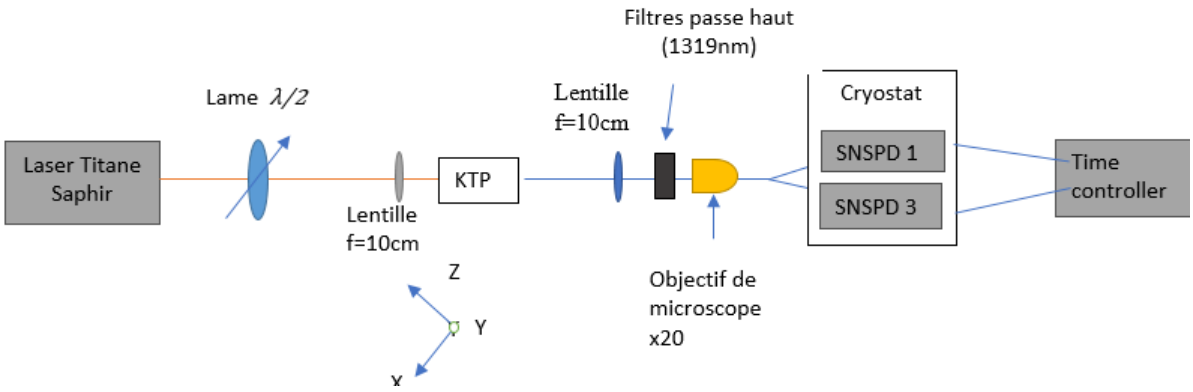


Figure V.9 : Schéma du montage optique utilisé pour la mesure de paires de photons. Le cristal de KTP est taillé à θ=52° dans le plan XZ. Le faisceau de pompe est filtré en sortie du laser par un set de deux filtres passe haut à 1319nm.

V.3.3 Mesures des coïncidences de photons jumeaux

V.3.3.1 Histogramme de coïncidences pour un laser de pompe en modes bloqués

Les premiers histogrammes de coïncidences ont été obtenus en utilisant le Ti:Sa en fonctionnement impulsionnel. Sur la Figure V.10, un histogramme typique de cette situation est reproduit, obtenu avec une puissance de pompe de 110mW et un temps d'intégration de 6000s. La présence de pics est constatée à intervalle régulier, toutes les 13,7ns, soit l'inverse de la cadence impulsionnelle qui est de 73MHz. Sur cet histogramme, seul le pic le plus intense signe la présence d'un signal de paires de photons. Les autres occurrences correspondent principalement à des photons résiduels du laser de pompe. En effet, si la puissance moyenne de la pompe laser n'est que de 200mW au plus, la puissance crête est en revanche considérable. Pour des impulsions de 35fs, elle atteint environ 80kW, ce qui affecte sans doute la transmission à travers les filtres passe-haut.

Par conséquent, dans la suite de ce chapitre, seuls les histogrammes de coïncidences pour un fonctionnement avec le laser de pompe en mode continu seront commentés.

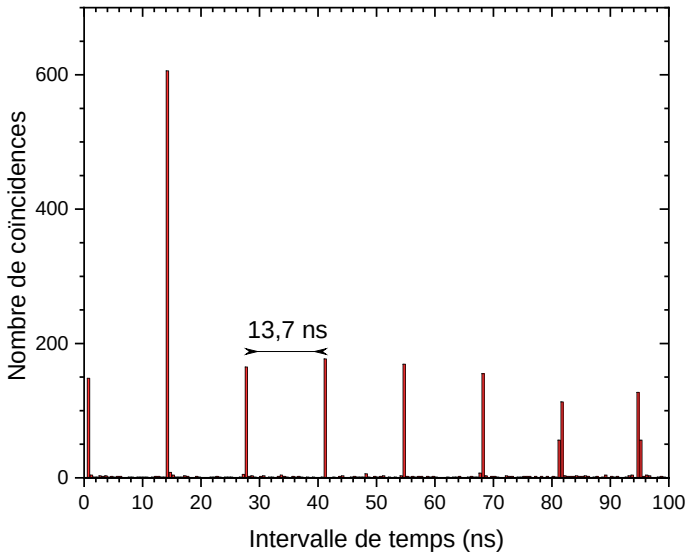


Figure V.10 : Histogramme de coïncidences pour un fonctionnement du laser impulsionnel (impulsions femtosecondes à une cadence de 73 MHz). Puissance de pompe sur le cristal : 110 mW. L'intervalle entre deux pics de coïncidences est donc de 13,7 ns. La signature de paires de photons est clairement visible. Temps d'intégration : 6000 s.

V.3.3.2 Histogramme de coïncidences pour un laser de pompe en mode continu

Dans le cas du fonctionnement en mode continu, les histogrammes sont très différents comme le montre celui tracé sur la Figure V.11. En effet, un bruit de fond d'environ 4 coïncidences par intervalle de 500 ps est observé. Un pic plus de dix fois plus intense (63 coïncidences) signe clairement la corrélation en temps d'arrivée des photons jumeaux. Il est à noter que le pic de coïncidences, comme pour le fonctionnement en régime femtoseconde, n'est pas centré à un délai nul. Lors de leur propagation dans le cristal de KTP, les deux photons d'une paire ne sont pas régis par le même indice de réfraction parce qu'ils sont issus d'un accord de phase de type II. Ainsi, ils ne se propagent pas à la même vitesse.

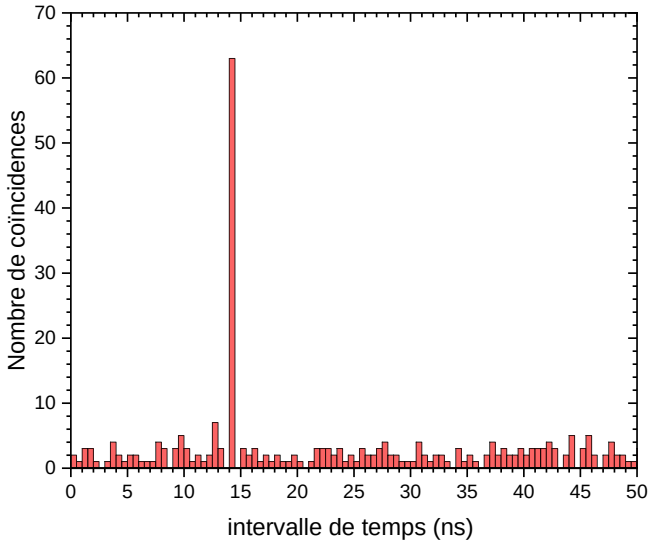


Figure V.11 : Histogramme de coïncidences entre les deux canaux de polarisations croisées en fonction du temps. L'intensité de pompe est fixée à 100mW. L'intégration est réalisée sur 2000s.

Ces premiers histogrammes ont été enregistrés avec un dispositif expérimental non optimisé. Ultérieurement, la distance entre le cristal et l'objectif de microscope a été considérablement réduite. Par ailleurs, l'Université de Genève a mis à notre disposition de nouveaux détecteurs beaucoup plus sensibles, dont les caractéristiques ont été données dans les paragraphes précédents. L'efficacité de détection du dispositif a alors été grandement amélioré. Ainsi sur la Figure V.12, un histogramme de coïncidences est tracé pour une puissance de pompe de 95mW et un temps d'intégration de 120s. Le bruit moyen est de l'ordre de 68 coïncidences, et un pic de paires réparti sur 300 ps rassemble 1646 occurrences. Etant donné que l'objectif de microscope utilisé pour cette mesure ne transmet que 19% du signal à 1600 nm, le nombre de paires de photons générés est au moins égal à 8400 pour 120 secondes, et donc de 70 par seconde. Les détecteurs utilisés donnent un signal moyen de 48000 Hz pour le détecteur 1 et 59900 Hz pour le détecteur 2. Le bruit (*dark count*) sur chaque détecteur est de 1200 Hz environ.

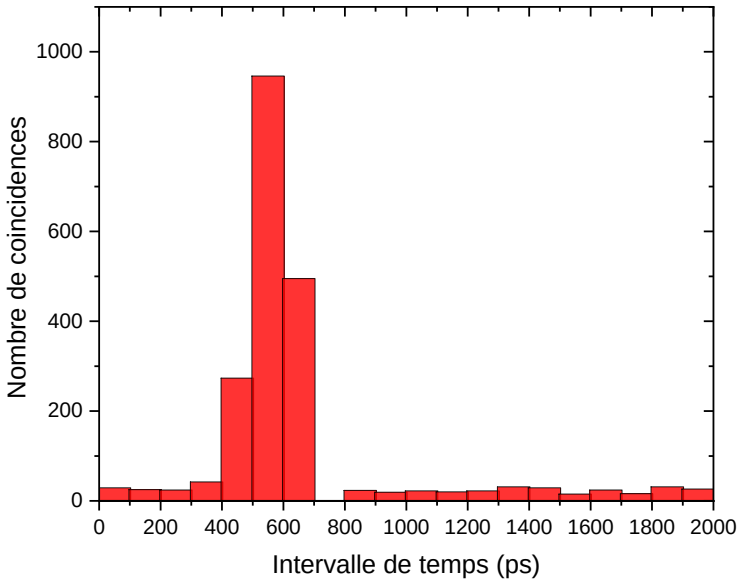


Figure V.12 : Histogramme de coïncidences obtenu après amélioration du dispositif expérimental et installation des nouveaux détecteurs (1 et 2). Temps d'intégration : 120 s. Puissance de pompe : 95 mW. *Binning* 100 ps.

Dans la suite de ce travail seront explorées les limites de la détection pour ce générateur de paires en fonction de la puissance de pompe ou de l'état de polarisation du faisceau de pompe.

V.3.4 Etude du nombre de paires en fonction de la puissance de pompe

La caractérisation de ce générateur de paires et de son étage de détection est poursuivie par l'évaluation du nombre de paires détectées en fonction de la puissance du laser de pompe. Pour cette première série d'expérience, la longueur d'onde du laser Ti:Sa a été fixée à 792 nm. L'angle θ dans le plan xOz du cristal a été ajusté de façon à réaliser l'accord de phase. La puissance de la pompe a été ajustée de 154 mW jusqu'à 1,46 mW. Les détecteurs 1 et 2 décrits ci-avant ont été utilisés. Le bruit résiduel sur chaque détecteur est de 1150 Hz pour le détecteur 1 et 1200 Hz pour le détecteur 2. Les histogrammes de coïncidences entre le détecteur 1 et le détecteur 2 ont été enregistrés avec un temps d'intégration de 120 s. L'intervalle de temps (*binning*) utilisé pour construire l'histogramme est fixé à 100 ps. La largeur du pic de coïncidences, clairement observable sur la Figure V.12, est de 300 ps. C'est pourquoi la déduction du nombre de paires générées à partir des histogrammes obtenus est faite par la somme des contributions sur 300 ps. Par ailleurs, pour tracer l'évolution du nombre de paires en fonction de la puissance de la pompe, le nombre de paires a été corrigé de la transmission à 1600 nm de l'objectif de microscope. La Figure V.13 reproduit cette évolution.

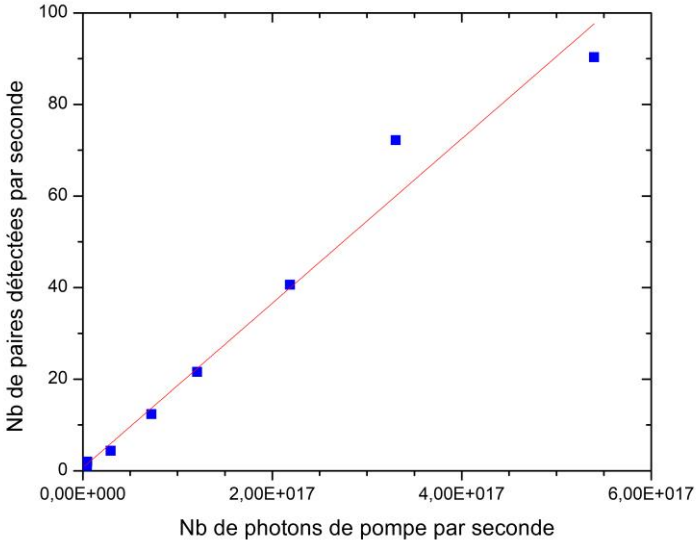


Figure V.13 : Evolution de nombre de paires détectées par seconde en fonction du nombre de photons de pompe. La longueur d'onde de pompe est fixée à 792 nm.

Par ailleurs, à très basse puissance de pompe, soit 1,4 mW, nous avons enregistré un histogramme en intégrant sur 60 mn. Le signal sur chaque détecteur n'excède pas 1300 Hz, ce qui est très proche de leur bruit résiduel. Dans ce cas présenté en Figure V.14, le nombre de « fausses » coïncidences est très faible, et le pic dû aux paires est clairement visible malgré tout : 56 paires ont été détectées, soit environ une paire par minute. C'est une performance honorable qui peut encore être améliorée en soignant le dispositif expérimental, en particulier vis-à-vis de la transmission de l'objectif, et en diminuant le bruit sur chaque détecteur à l'aide d'un meilleur filtrage des hautes longueurs d'onde.

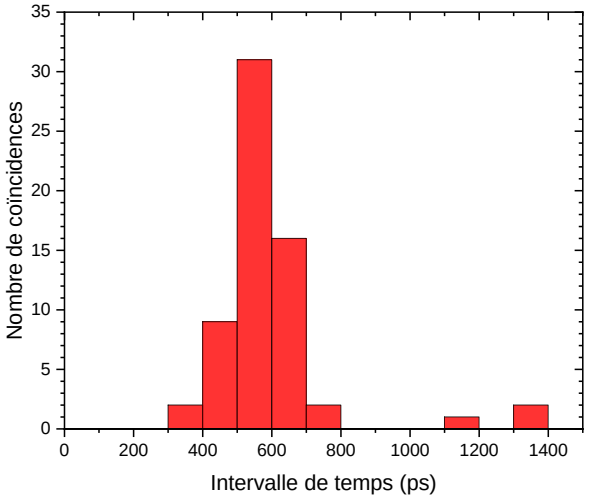


Figure V.14 : Histogramme de coïncidences pour une puissance de pompe de 1,46 mW à 792 nm. Le temps d'intégration est de 60minutes.

L'étape suivante consiste à vérifier que les photons mesurés sont bien issus de la fluorescence paramétrique. Ceci est réalisé par l'étude de l'influence de la polarisation du faisceau pompe.

V.3.5 Etude du nombre de paires en fonction de la polarisation de la pompe

Cette seconde série d'expérience a été réalisée en installant une lame demi-onde à 800 nm en amont du cristal de KTP de façon à changer la polarisation de la pompe. Pour que la génération de paires soit en accord de phase de type II, il faut que les photons de la pompe soient polarisés selon l'axe y de KTP. Changer la polarisation de la pompe grâce à la lame demi-onde constitue donc une autre façon de changer la puissance utile pour la génération de paires. Cela permet donc de vérifier que les coïncidences mesurées sont bien dues au phénomène optique non linéaire visé et non pas à de la luminescence de centres colorés.

Ces expériences ont été réalisées à 798 nm, qui est une longueur d'onde légèrement différente des expériences précédentes. Il a donc fallu régler l'angle du cristal pour retrouver un accord de phase parfait. La puissance de pompe est fixée à 163mW. La proportion utile au processus non linéaire de cette puissance incidente va donc dépendre de l'angle de la lame demi-onde. La Figure V.15 montre l'évolution du nombre de coïncidences correspondant aux paires de photons en fonction de l'angle de la lame demi-onde. De ces résultats est déduite la Figure V.16 qui présente l'évolution du nombre de paires corrigé des pertes optiques en fonction de la puissance utile de pompe.

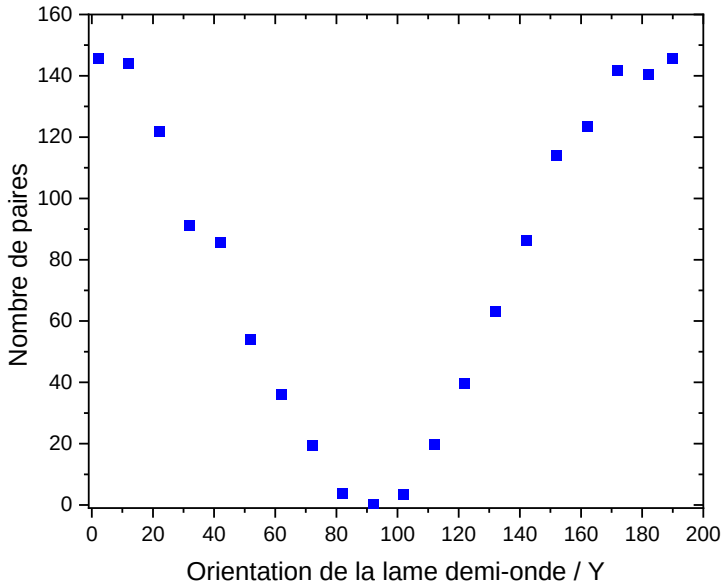


Figure V.15 : Evolution du nombre de paires en fonction de l'orientation de la lame demi-onde. A 0° et 180°, la pompe est polarisée selon la direction Y du cristal et l'interaction est donc la plus efficace.

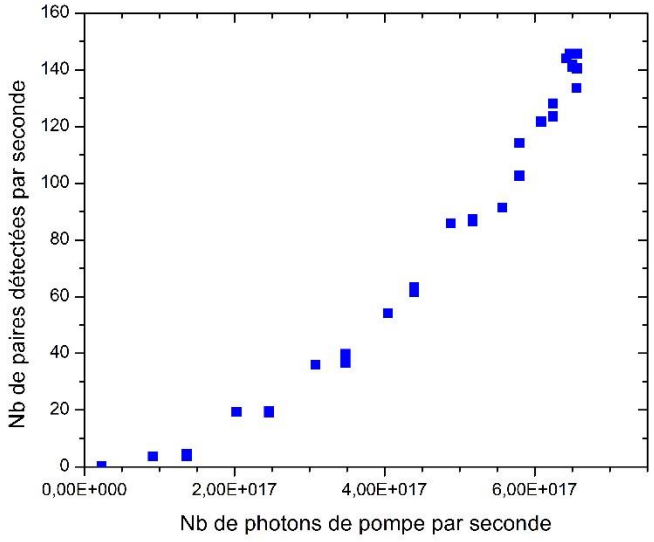


Figure V.16 : Evolution du nombre de paires détectées en fonction de la puissance de pompe « utile ». La longueur d'onde de la pompe est ici fixée à 798 nm.

L'évolution linéaire ainsi obtenue est comparable avec ce qui a été obtenu en diminuant directement la puissance de pompe. Ce qui confirme que les photons responsables des coïncidences sont bien générés par fluorescence paramétrique. Ces résultats seront comparés avec le modèle quantique donné en section I.5.

V.4 Comparaison avec les prévisions théoriques de la règle d'or de Fermi

Des deux séries de mesures précédentes, il est possible de déduire que le nombre de paires détectées par seconde pour une puissance de pompe de l'ordre de 100 mW (soit environ 3.10^{17} photons par seconde) varie entre 50 et 60. Ce chiffre ne tient toutefois pas compte de toutes les pertes, en particulier celles dues à l'injection et de la propagation du signal dans les fibres optiques, qui restent difficiles à évaluer. En revanche, il est intéressant de comparer ces mesures avec la prédiction théorique utilisant la règle d'or de Fermi pour la génération de paires, décrite dans la section I.5, et rappelée ici :

$$P = \frac{128\hbar\pi^4 c}{\varepsilon_0}\left[\chi^{(2)}(2\omega)\right]^2 \frac{1}{n^2(2\omega)} P_0 L \frac{\lambda_\omega}{\lambda_{2\omega}{}^7} d\lambda \qquad \text{(V.3)}$$

Le Tableau V.1 donne les paramètres utilisés pour estimer le nombre de paires à partir de l'équation (I.71).

$\lambda_{2\omega}$ (nm)	λ_ω(nm)	$\delta\lambda_s$ (nm)	$\chi^{(2)}$ (pm/V)	L (mm)	P_0 (mW)	n	P(W)
800	1600	1	4	2	100	1,7	$2{,}3\text{x}10^{-14}$

Tableau V.1 : Paramètres utilisés pour le calcul du nombre de paires à $\lambda_{2\omega}$ =1600 nm en utilisant la règle d'or de Fermi. $\delta\lambda$ est la largeur spectrale du signal de paires, $\chi^{(2)}$ est le coefficient non linéaire effectif moyen, L est la longueur d'interaction, P_0 la puissance incidente de la pompe, P la puissance générée.

Le nombre de paires par seconde pour une puissance incidente utile de 100 mW est estimé par le modèle à 10^5, soit de trois ordres de grandeur plus élevé que ce que donnent les mesures. Compte tenu du fait qu'il existe une marge de progression pour améliorer le dispositif expérimental et que le calcul par la règle d'or de Fermi est approximatif, ce résultat est satisfaisant et très encourageant pour la mise en œuvre des expériences de génération de triplets de photons à venir.

V.5 Conclusion

Ces nouveaux détecteurs et l'électronique associée ont donc été pris en main par le biais de l'étude de la fluorescence paramétrique d'ordre 2. Si ces détecteurs sont optimisés pour les fréquences correspondant à la bande télécom, les expériences de génération de photons jumeaux ont permis de vérifier leur efficacité et de mettre en lumière leur grande sensibilité aux photons de basse longueur d'onde. Ainsi, le filtrage spectral est primordial.

Les premières mesures de génération de triplets sont encore en cours. Trois cristaux de KTP différents sont étudiés. Le cristal massif est utilisé en fluorescence paramétrique et en régime mono-injecté avec une diode laser émettant un faisceau continu à 1471nm. Ce dernier régime a mis en exergue la nécessité de filtrer fortement les photons d'injection.

La fluorescence paramétrique à partir d'un laser Nd :YAG doublé en fréquence a également été testée au sein du cristal de QPPKTP et du guide d'onde taillé en arête dont les caractérisations ont été décrites dans les chapitres III et IV. Un signal est détecté, clairement dû à la présence du cristal, car il disparait quand le cristal est escamoté : il est de l'ordre de 10 000 Hz pour une puissance de pompe de 0,2W. En revanche, aucun pic de coïncidences n'a pu à ce jour être mesuré. Ce signal est probablement composé de triplets de photons mélangés à des photons générés par un centre coloré de KTP. Une analyse spectroscopique est en cours et devrait permettre d'optimiser le filtrage spectral afin de sortir le pic de coïncidence du bruit de fond. Finalement, l'ensemble du protocole de détection est en cours d'optimisation pour l'observation des triplets de photons.

Conclusion

Il n'est guère de passion sans lutte.
Albert Camus, *Le Mythe de Sisyphe*

Cette thèse a porté sur l'étude de milieux non linéaires pour la génération paramétrique de triplets de photons. Depuis la première démonstration expérimentale de 2004 réalisée au sein de l'équipe à Grenoble dans un cristal massif de KTP, où deux faisceaux de stimulation avaient dû être utilisés pour améliorer le rendement de conversion, l'équipe n'a cessé d'améliorer l'expérience tout en cherchant de nouveaux matériaux et en développant les modèles théoriques associés.

Une caractérisation complète de guides d'ondes monocristallins de KTP taillés en arête a été présentée. Les indices effectifs appropriés ont été déterminés. Ils ont permis la modélisation des interactions optiques non linéaires conduisant à la possibilité de sélectionner les longueurs d'onde d'accord de phase désirées en fonction des dimensions transverses du guide. Grâce à ce modèle, des configurations d'accord de phase ont été calculées pour des générateurs de triplets de photons dans la bande télécom. La validité du modèle et sa précision ont d'abord été confirmées par des expériences de génération de second harmonique puis de génération de troisième harmonique. Cette dernière validation est d'autant plus importante que la génération de troisième harmonique présente les mêmes conditions d'accord de phase que la génération de triplets de photons. C'est aussi la première fois qu'une génération de troisième harmonique en accord de phase par biréfringence est réalisée au sein d'un guide d'onde monocristallin.

La caractérisation de la SHG a été essentiellement menée dans la première génération de guides d'une dizaine de mm élaborés par Femto-ST et fabriqués selon l'axe X du cristal de KTP. Les faibles rendements de conversion mesurés n'excèdent pas 3%. Cette faiblesse ne remet pas en cause l'efficacité du processus de SHG. Seule une modélisation basée sur une pompe dépeuplée permet en effet de rendre compte des observations expérimentales. L'accord entre calcul et expérience est excellent et a fait l'objet d'un article publié dans *Optics Letters* en 2018. Il est à noter que le faible rendement de conversion est à corréler aux pertes conséquentes du signal de second harmonique lors de la propagation dans le guide. Ces pertes sont principalement dues aux effets combinés de défauts introduits dans l'étape de poli-sciage et d'une épaisseur de couche de silice trop faible : du fait de la proximité avec l'or, la lumière fuit par onde évanescente au fur et à mesure de la propagation dans le guide. Il sera possible d'agir sur ces deux paramètres dans les prochaines générations de guide. Cette première étude a également permis d'identifier que la propagation selon la direction Y est à privilégier. En effet, les conditions d'accord de phase pour la TPG, modifiées dans les guides de section micrométrique en comparaison du cristal massif, permettront dans ce cas de travailler dans la bande télécom. Les expériences de THG ont été réalisées dans une nouvelle génération de guides Y pour laquelle l'étape de poli-sciage a été soignée, et présentant une épaisseur de Silice inchangée, de 300 nm. Les conditions d'accord de phase montrent que pour un guide de dimensions transverses proches de 6 µm, il est possible de travailler avec un laser de pompe à 532 ou 527 nm pour générer des triplets de photons vers 1600 nm. Le rendement de conversion de la THG

est de 3,2%, ce qui est un très bon résultat pour une THG directe. De plus l'accord entre théorie et expérience est parfait. Un article est en cours de rédaction. L'ensemble de ces résultats convergents ouvre la voie à des expériences de TPG sur la base des nouvelles générations de guides qui corrigeront tous les défauts identifiés lors du présent travail.

Une alternative à la TPG du troisième ordre a également été étudiée dans les cristaux à domaines ferroélectriques inversés quasi-périodiquement. La caractérisation d'un cristal spécifique à base de KTP a été conçu pour la génération de triplets de photon par cascade de deux processus du deuxième ordre a été réalisée. Cet échantillon a été caractérisé par le biais d'expériences de THG. Partant d'un faisceau pompe aux alentours de 1586 nm, la première étape de la cascade est une SHG. La seconde étape utilise ces photons de SHG pour générer un signal de THG par couplage avec les photons de la pompe. Le rendement de conversion optimisé de la THG dans cet échantillon de QPPKTP de 10 mm de long dépasse les 40%, ce qui est un très bon résultat. Par ailleurs, l'accord entre les calculs qui tiennent compte du couplage entre les deux étapes de la cascade et les mesures est excellent. Ces expériences ont été publiées en 2020 dans *OSA Continuum*.

Un générateur de photons jumeaux basé sur un cristal massif de KTP pompé par un laser Ti:Sa continu a ensuite été conçu et mis en œuvre pour la prise en main de nouveaux détecteurs à base de nanofils supraconducteurs de MoSi de haute sensibilité dans l'infrarouge. Ces compteurs de photons uniques ont permis l'observation de pics de coïncidences caractéristiques de l'occurrence des paires de photons. Dans ce cristal de KTP de 2mm de longueur ont été mesurées environ 100 paires/s, résultat qui se compare bien avec les estimations issues de la règle d'Or de Fermi. Il est aussi à noter que ce taux de paires est également celui qui est attendu pour les triplets en configuration optimale. Ce détecteur est donc parfaitement adapté à la problématique de la TPG. La prise en main de ces détecteurs dans cette première expérience de coïncidence de paires met en lumière les étapes incontournables qui seront nécessaires pour la caractérisation des générateurs de triplets de photon, notamment quand seront utilisés les guides arêtes monocristallins de KTP.

Les mesures de coïncidences dans le cas de la génération de triplets de photons par fluorescence paramétrique du troisième ordre dans des guides cristallins taillés en arête pourront donc commencer lorsque des échantillons de longueurs plus importantes, de l'ordre de 3 cm, et avec une épaisseur de couche de silice de 0,6 à 2µm seront disponibles. Il est alors attendu de l'ordre de 100 triplets par seconde en pompant avec 5W en continu à 532 nm. De tels échantillons sont en cours de fabrication à Femto-ST. Des expériences préliminaires de pompage à 532 nm ont toutefois été menées dans du KTP massif ou avec les guides arêtes de même que dans les QPPKTP. Pour l'instant, aucun pic de coïncidence sortant du bruit de mesure n'a été mesuré, ce qui n'est pas surprenant du fait de la faible longueur d'interaction. Mais ces tentatives ont permis d'identifier un continuum de lumière parasite identique à tous les échantillons. Il s'agit donc-là très probablement de la luminescence d'un centre coloré propre à KTP. La caractérisation de cette fluorescence est actuellement en cours au C2N. Ces mesures devraient permettre une analyse de comment filtrer efficacement ces photons et donc l'amélioration significative du rapport signal sur bruit rendant possibles les nombreuses expériences quantiques. Un soin particulier devra être apporté au couplage de la lumière sortant d'un guide avec les SNSPD fibrés de sorte à limiter les pertes. Tous ces travaux seront menés dans le cadre de l'ANR TriQuI.

Concernant l'optimisation de la technologie QPPKTP, le projet est de tailler des guides arêtes, à l'instar de ce qui a été fait avec le KTP mono-domaine. C'est également un projet en cours qui se fera en collaboration avec l'Université de Tel Aviv et Femto-ST dans le cadre du Laboratoire International Associé Imaginano.

A moyen terme, il est envisagé de réaliser un oscillateur paramétrique optique (OPO) monolithique, c'est-à-dire que les miroirs seront directement déposés sur les faces d'entrée et de sortie du milieu non linéaire. Il pourra s'agir de KTP ou QPPKTP massifs ou en guides arêtes. Une telle architecture devrait permettre une augmentation de l'efficacité du processus ainsi qu'une sélection spectrale adaptée. Cette dernière amélioration sera particulièrement intéressante pour la génération de triplets en accord de phase par biréfringence pour laquelle le spectre d'émission est très large, conduisant ainsi à une forte dilution spectrale de l'énergie générée.

3770 Vol. 43, No. 15 / 1 August 2018 / Optics Letters Letter

Optics Letters

Phase-matched second-harmonic generation in a flux grown KTP crystal ridge optical waveguide

Véronique Boutou,[1,†] Augustin Vernay,[1,†] Corinne Félix,[1] Florent Bassignot,[2] Mathieu Chauvet,[3] Dominique Lupinski,[4] and Benoit Boulanger[1,*]

[1]Univ. Grenoble Alpes, CNRS, Institut Néel, 25 rue des Martyrs, 38000 Grenoble, France
[2]Femto-Engineering, 15B Avenue des Montboucons, 25000 Besançon, France
[3]FEMTO-ST Institute, UMR CNRS 6174, Université de Franche-Comté, 15B Avenue des Montboucons, 25000 Besançon, France
[4]Cristal Laser SA, Parc d'Activités du Breuil—32, rue Robert Schuman, 54850 Messein, France
*Corresponding author: benoit.boulanger@neel.cnrs.fr

Received 4 July 2018; accepted 5 July 2018; posted 10 July 2018 (Doc. ID 337842); published 1 August 2018

Type II second-harmonic generation was performed in a 15.8-mm-long $KTiOPO_4$ (KTP) micrometric ridge waveguide with an average transversal section of 38 μm^2. Theoretical predictions are compared with experiments. Strong agreements are obtained for both phase-matching wavelengths and second-harmonic intensity. This work opens wide perspectives for integrated parametric optics. © 2018 Optical Society of America

OCIS codes: (190.4410) Nonlinear optics, parametric processes; (190.4390) Nonlinear optics, integrated optics; (230.7370) Waveguides.

https://doi.org/10.1364/OL.43.003770

Because of its high optical nonlinearity [1], $KTiOPO_4$ (KTP) is a crystal that has been extensively studied and is widely used in second-harmonic generation (SHG) or squeezed states devices for example [2]. In order to combine the large second-order nonlinear coefficient of KTP with a strong confinement in integrated photonics devices, there is a clear interest to elaborate waveguides with transverse micron-size dimensions. Among several waveguide-fabrication techniques, such as proton exchange [3,4], ion implantation [5], laser micromachining [6], or etching on a platform [7,8], an alternative is the technique that consists in the manufacturing of ridge waveguides [9] with a high index contrast, allowing a strong confinement of light in stable guiding structures. This method had been used earlier, for instance, in periodically poled $LiNbO_3$ ridge waveguides [10–12].

In the present study, we apply the ridge waveguide concept to KTP without any additional refractive index gradient [9] in order to maximize the light confinement. Another objective of this study is to show how the transversal dimensions of the waveguide modify the effective index and, consequently, the birefringence phase-matching (BPM) conditions for SHG, which is a key parameter to define the targeted second-harmonic (SH) wavelength. We present a characterization of SHG in an x-cut KTP ridge waveguide. Prior to nonlinear experiments, we perform calculations for both x- and y-cut crystals. We further compare these calculations with the results of SHG experiments performed with a tunable coherent pump source. The SHG quantitative efficiency in intensity is also measured as a function of the incident intensity and compared with calculations.

Fabrication of the ridge waveguides begins with the cut of a flat rectangular sample from a KTP single crystal grown by the flux technique at Cristal Laser SA. The KTP dimensions are 20 mm along the x axis, 10 mm along the y axis, and 500 μm along the z axis. One z face is polished, while all other faces are ground. A 300-nm-thick SiO_2 layer is deposited by inductively coupled plasma enhanced chemical vapor deposition (ICPECVD) onto the polished face followed by the sputtering of a 300-nm-thick gold layer [12]. A high flatness 3-in.-diameter silicon wafer is also coated with a 300-nm-thick gold layer. The metallized faces of the crystal and the silicon wafer are brought into contact. This hybrid stacking is then pressed in an EVG wafer bonding machine, and high pressure is applied under vacuum at room temperature in order to prevent mechanical stress due to the dissimilar thermal coefficients [13]. A bonding of more than 98% of the surfaces in contact is measured by an ultrasound characterization technique. At this stage, a 1-mm-thick hybrid structure composed of a KTP sample bonded on a silicon substrate is obtained. The next step consists of thinning down the sample by grinding and polishing techniques to obtain a few micrometers (μm)-thick KTP layer. To this end, the KTP layer distribution is assessed by white-light optical reflectometry, indicating a typical thickness variation of 1 μm or less along x. In addition, the surface is analyzed by optical profilometry and atomic force microscopy [12]. The next step consists of using a precision dicing saw equipped with a 56-mm-diameter and 400-μm-thick diamond blades to define the ridges with low blade buckling in the hybrid stack [12]. Micrometric ridges with roughness sides of about 5 nm root mean square (RMS) are manufactured by adjusting the rotation speed and cutting speed of the dicing process to the material [14,15]. Because the KTP layer thickness is uneven

0146-9592/18/153770-04 Journal © 2018 Optical Society of America

Letter Vol. 43, No. 15 / 1 August 2018 / Optics Letters 3771

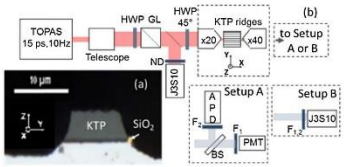


Fig. 1. (a) Image (MO × 100) of the input section of a ridge with a cross section of 7 µm × 5 µm. (b) Experimental setup: HWP, half-wave plate; GL, Glan–Taylor prism; PMT, photomultiplier module (Hamamatsu); APD, InGaAs avalanche photodiode (Thorlabs); J3S10 joulemeter (Molectron); F_1, FGB37 filter to block the fundamental; F_2, long pass filter to block the SH; ND, neutral density filter; BS, beam splitter.

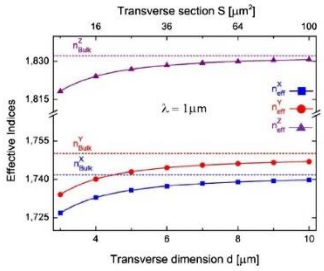


Fig. 2. Effective refractive indices of KTP ridges at $\lambda = 1$ µm calculated as a function of the transversal dimension d or cross section $S = d \times d$.

when approaching the sample edge, the waveguides are cut transversely in the more uniform part to form 15.8-mm-long waveguides along the x axis. Six waveguides were diced out of the initial KTP sample. Figure 1(a) shows the image of a 7 µm × 5 µm cross section waveguide. Side walls of the ridge are curved due to the blunt corner of the blade. We selected the best waveguide out of all of them in order to perform the experiments described hereafter.

Ideally, square section waveguides are favored, since they facilitate excitation of the waveguide fundamental mode. A good overlap is obtained if butt-coupling is realized with a Gaussian beam of proper dimensions [16]. The effective indices of the guided modes have to be determined in order to accurately calculate the SHG BPM wavelengths and to properly design the corresponding waveguides. This task is performed with the commercial software COMSOL based on the finite elements method. A square $S = d \times d$ waveguide structure with propagation along the x axis of KTP is modeled. The bulk KTP refractive index is obtained from Sellmeier equations taken from Ref. [17]. For a given waveguide dimension, the effective index of the fundamental guided mode is calculated for both z-polarized (TM_0) and y-polarized (TE_0) light by considering wavelengths varying between 0.5 to 3.0 µm. Dispersion equations giving the effective indices are retrieved by fitting those numerical data assuming a Sellmeier-like form. This method is iterated for waveguide dimension d spanning from 3 to 10 µm. The best fitting equation we found, with a discrepancy below 1×10^{-4}, is

$$(n_{\mathrm{eff}}^{\omega})_i^d = \left(A_i^d \times \lambda_{\omega}^{B_i^d} + \frac{C_i^d}{10^{-6} \times \lambda_{\omega}^{D_i^d} - E_i^d} - F_d^i \times 10^{-6} \times \lambda^{G_i^d} \right)^{H_i^d} + I_d^i \quad (1)$$

with $i = x, y, x$.

Table 1 gives, as an example, the corresponding dispersion coefficients for a waveguide with $d = 6$ µm. Figure 2 gives the evolution of the effective indices as a function of the waveguide size calculated at the wavelength $\lambda = 1$ µm according to Eq. (1). The effective indices decrease from the bulk value with the transversal dimension of the ridge, which will necessarily imply a change in the BPM conditions. Note that the numerical Eq. (1) keeps some physical meaning, since the quantity $\lambda_i^0 = (E_i^d \times 10^6)^{1/D_i^d}$, which should represent the wavelength corresponding to the ultraviolet oscillator frequency, is very close to that of bulk KTP, i.e., 0.317 µm for the x component from Table 1, compared to 0.206 µm from the Sellmeier equation of Ref. [17]. The proximity is the same kind for the y and z components of the effective index. In the following, we specifically discuss the type II BPM for two different orientations of the KTP ridge: the x-cut that has been investigated experimentally here and the y-cut. We assumed that both fundamental and SH waves propagate in the ridge in their fundamental mode with a perfect overlap. For an x-cut (respectively, y-cut) ridge, the energy conservation law is

$$\frac{1}{\lambda_{2\omega}^{y,x}} = \frac{1}{\lambda_{\omega}^{z}} + \frac{1}{\lambda_{\omega}^{y,x}}, \quad (2)$$

where x, y, and z stand for the directions of polarization of the waves at the fundamental wavelength λ_ω and SH wavelength $\lambda_{2\omega}$. The corresponding mismatch relation $\Delta k(\omega, d)$ is written as

$$\Delta k(\omega, d) = 1/c[\omega(n_{\mathrm{eff}}^{\omega})_d^j + \omega(n_{\mathrm{eff}}^{\omega})_d^z - 2\omega(n_{\mathrm{eff}}^{2\omega})_d^j],$$
$$\text{where } j = \begin{cases} x & \text{for an } y\text{-cut ridge} \\ y & \text{for an } x\text{-cut ridge} \end{cases}. \quad (3)$$

In Fig. 3, the BPM fundamental wavelength is calculated assuming $\Delta k(\omega_{\mathrm{PM}}, d) = 0$ as a function of d. For both x-cut and y-cut KTP ridges, the BPM fundamental wavelength drastically increases when d decreases. This is the signature of a size effect of the waveguide. The bulk limits are indicated by a horizontal dashed line, depending on the orientation axis of the

Table 1. Dispersion Coefficients for a Waveguide Transverse Dimension $d = 6$ µm

i	A_i (nm^{-1})	B_i	C_i (nm)	D_i	E_i (nm)	F_i(nm^{-1})	G_i	H_i	I_i
x	0.4488	0.01948	0.5288	2.277	0.4939	0.88	1.615	0.07128	0.7808
y	1.017	0.004481	1.47	2.323	0.6407	1.242	1.653	0.07207	0.7373
z	2.236	0.006506	0.8399	2.14	0.1814	0.5619	1.811	0.1125	0.7183

3772 Vol. 43, No. 15 / 1 August 2018 / Optics Letters Letter

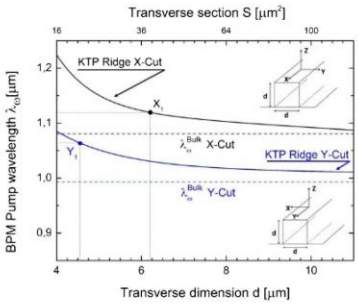


Fig. 3. Calculated SHG BPM fundamental wavelength λ_ω *versus* the transversal dimension d of an x cut (top curve) and a y cut (bottom curve). The dashed lines indicate the bulk limit for an x-cut (top) and y-cut (bottom) KTP.

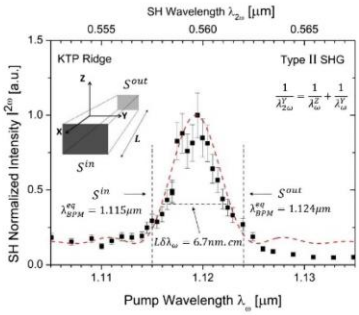


Fig. 4. SH normalized intensity versus the fundamental wavelength obtained for a waveguide with a length $L = 15.8$ mm. The black squares correspond to the experimental data. The dashed curve is a fit by a sinc^2 function, from which we deduced the wavelength acceptance $L.\delta\lambda_\omega$. The two vertical dashed lines indicate the BPM wavelength that should correspond to the measured input ($S_{\text{in}} = 43\ \mu\text{m}^2$) and output ($S_{\text{out}} = 35\ \mu\text{m}^2$) section of the waveguide.

cut. It is then clear that the transversal dimension of the guide can be used to efficiently tune the BPM wavelength: as an example, an y-cut KTP ridge with $d = 4.6$ μm (see Y_1 in Fig. 3) allows SHG to be phase-matched at a fundamental wavelength of 1.064 μm, the well-known fundamental wavelength of a $Nd{:}Y_3Al_5O_{12}$ (Nd:YAG) laser. We will further make use of these calculations for SH experiments in an x-cut KTP ridge.

A scheme of the SH experimental setup is given in Fig. 1(b). The output of a tunable optical parametric amplifier (TOPAS, repetition rate 10 Hz, pulse duration FWHM 15 ps, linear polarization) is used. In order to control and adapt the fundamental intensity, a combination of a half-wave plate (HWP) and a Glan–Taylor prism is installed. A second HWP allows the polarization of the fundamental to be fixed at 45° with respect to the y and z axes of the input face. A ×20 microscope objective (MO) is used to inject the incident pump beam with the right polarization on each of the KTP ridges. The sample is placed on a three-axes micrometric translation stage in order to properly adjust the injection of the pump beam in one of the ridges. At the output of the ridge, the residual transmitted fundamental beam and the SH beam are collected with a ×40 MO also mounted on a three-axes translation stage. Two types of experiments are performed using setup A and setup B, respectively.

The first experiment [Fig. 1(b), setup A] is devoted to the wavelength dependence of the SH signal. The pump beam is tuned between 1.05 and 1.20 μm. At the output of the ridge, a beam splitter is used to separate the transmitted pump and the SH. The fundamental beam is collected by an avalanche InGaAs photodiode (APD), whereas a photomultiplier module (PMT) is chosen to collect the SH signal. Additional filters, F_1 in front of the PMT module and F_2 in front of the APD, are used to prevent any cross talking in both fundamental and SH signals.

Figure 4 gives the result of the SHG wavelength dependence that we obtained. For this experiment, the incident pump beam intensity is estimated to be $I_{\text{pump}} = 0.47\ \text{GW/cm}^2$. The BPM wavelength is measured to be $\lambda_\omega^{\text{PM}} = 1.120$ μm. A comparison with the calculations (Fig. 3, data point X_1) for x-cut ridges indicates that $\lambda_\omega^{\text{PM}}$ is typical of a ridge with a section of about $S_{\text{BPM}} = 38\ \mu\text{m}^2$, i.e., d is close to 6.2 μm. S_{BPM} has to be compared with the input and output sections that we measured from profiles similar to Fig. 1(a). We obtained, respectively, $S_{\text{in}} = 43\ \mu\text{m}^2$ and $S_{\text{out}} = 35\ \mu\text{m}^2$, showing that S_{BPM} belongs to this interval. This experiment well validates our calculation of the effective refractive indices. The agreement, together with the output beam profiles that filled the entire output section as we have observed on a camera, also confirms that the fundamental and SH waves propagate in the fundamental mode of the waveguide.

From this fit, it is possible to retrieve a wavelength acceptance of the BPM SHG equal to $L.\delta\lambda_\omega = 6.7$ nm.cm with L, the length of the ridge. This value is one order of magnitude larger than the 0.65 nm.cm that is expected for a uniform ridge. This discrepancy can be mainly attributed to manufacturing defects formed during the polishing step or at the dicing stage. Indeed, the section of the guide is not constant from the entrance (S_{in}) to the exit (S_{out}), leading to a variation of the BPM wavelength along the direction of propagation, i.e., the x axis. As stated in Fig. 4 (dashed vertical lines) and with the help of calculations in Fig. 3, we attribute an equivalent BPM wavelength of, respectively, $\lambda_{\text{BPM}}^{\text{eq}} = 1.115$ μm for S_{in} and $\lambda_{\text{BPM}}^{\text{eq}} = 1.124$ μm for S_{out}, which roughly corresponds to the wavelength acceptance that is observed.

The second experiment [Fig. 1(b), setup B] is dedicated to the absolute measurement of the SH intensity as a function of the fundamental beam intensity injected in the ridge. For that purpose, the fundamental wavelength is fixed at the BPM value of $\lambda_\omega^{\text{PM}} = 1.120$ μm found in the first experiment. The pump intensity is then changed and monitored prior to the injection in the ridge with a J3S10 joulemeter, using additional neutral density filters (ND), whereas the SH signal is simultaneously monitored at the output of the ridge on a second J3S10 detector. In Fig. 5, the intensity of the pump is tuned between 0.2 and 22.5 GW/cm^2, while the corresponding SH intensity is measured. These experimental results have been compared with calculations. In the general case, i.e., when the pump is depleted, the analytical solution of the coupled equations for

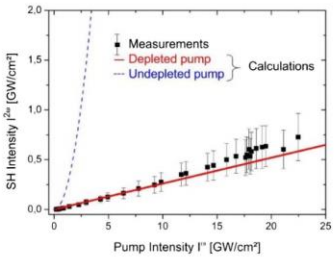


Fig. 5. Output SH intensity as a function of the input fundamental beam intensity at $\lambda_{\omega}^{\mathrm{BPM}} = 1.120\ \mu\mathrm{m}$. The black squares correspond to the experimental data, the error bars being estimated for each pump intensity, taking into account the standard deviations on each signal strength averaged on a scope.

SHG is easily accessible in the parallel beam approximation and by neglecting the spatial walk-off effect. The SHG intensity under phase-matching is then given by [18]

$$I^{2\omega}(L) = I^{\omega}(0)\,T^{\omega}\,T^{2\omega}\,t\,h^2\left(\frac{\omega d_{\mathrm{eff}}}{c n_{\mathrm{eff}}^{2\omega}}\sqrt{\frac{2T^{\omega}I^{\omega}(0)}{\varepsilon_0 c n_{\mathrm{eff}}^{\omega}}}L\right). \quad \textbf{(4)}$$

$I^{\omega}(0)$ is the input fundamental intensity, i.e., just before the waveguide entrance, T^{ω} and $T^{2\omega}$ are, respectively, the fundamental and SH transmission coefficients, and $d_{\mathrm{eff}} = 2.59\ \mathrm{pm}\cdot\mathrm{V}^{-1}$ is the second-order effective coefficient calculated at $\lambda_{\omega}^{\mathrm{BPM}}$ obtained from Ref. [1]. We assumed its value to be the same as in the bulk, according to our fabrication process. L is the propagation length. The effective indices are taken at $d = 6.2\ \mu\mathrm{m}$, which corresponds to the BPM SHG wavelength $\lambda_{\omega}^{\mathrm{BPM}} = 1.120\ \mu\mathrm{m}$, according to Fig. 4.

We estimated T^{ω} and $T^{2\omega}$ by measuring the intensity incident on the waveguide and at its exit of two continuous laser beams at 1.064 and 0.532 μm. For the KTP guide itself, we measured $T_{\mathrm{meas}}^{\omega} = 7.5\%$ and $T_{\mathrm{meas}}^{2\omega} = 18.5\%$, but a further correction was added to remove the coupling efficiency (Fresnel contribution and mode-matching) of the 1.064 μm beam at the exit of the waveguide and that of the beam at 0.532 μm at the entrance, which leads to $T^{\omega} = 9.3\%$ and $T^{2\omega} = 28\%$. Using these values in Eq. (4) without any fitting parameter, we highlight a very good agreement between the calculated and experimental data in the case of pump depletion (see Fig. 5). A maximum intensity SHG conversion efficiency of 3.4% is measured, lower than that in Ref. [9], because of weak input and output coupling efficiencies. However, the depleted pump regime is achieved, which proves that an efficient process exists. Moreover, besides internal propagation losses estimated to be 0.6 dB/cm (1.6 dB/cm) at the pump (SH) wavelengths, our waveguides are very robust. In future generations, the sidewalls and top roughness of the samples, as well as the optical qualities of the input and ouput faces, will need to be improved in order to reduce losses and to increase the confinement [12]. The SiO_2 layer thickness also has to be optimized. Further experiments will then be necessary to compare the robustness of the elaboration procedure in regards to other techniques [4,9]. Indeed, the optimal conversion efficiency we calculated with Fresnel as the only source of losses is 85.3%, which gives us the margin of progress of our elaborating process.

In conclusion, we fabricated ridge waveguides carved in a KTP single crystal. We determined the corresponding wavelength dispersion equations of the effective refractive indices that can be derived for any transversal dimension of the waveguide. We were subsequently able to accurately retrieve the type II SHG BPM conditions that were significantly different than those in the bulk material, which highlights the fact that tailoring the waveguide transversal dimension can be used to reach BPM for specific wavelengths. Moreover, the theoretical prediction of SHG conversion efficiency fully matched the experimental results and that without any fitting parameters. Pump depletion has been achieved. A higher quality sample and extending the waveguide length could lead to even better results, which opens new field for integration of KTP waveguides in photonic nonlinear devices.

Funding. Agence Nationale de la Recherche (ANR) project TRIQUI (ANR-17-CE24-0041-03); RENATECH network FEMTO-ST MIMENTO technological facility.

Acknowledgment. Institut Néel would like to acknowledge David Jegouso for his technical support.

†These authors contributed equally for this work.

REFERENCES

1. B. Boulanger, J. P. Fève, P. Delarue, I. Rousseau, and G. Marnier, J. Phys. B **32**, 475 (1999).
2. J. Gao, F. Cui, C. Xue, C. Xie, and P. Kunchi, Opt. Lett. **23**, 870 (1998).
3. K. R. Parameswaran, R. K. Route, J. R. Kurz, R. V. Roussev, M. M. Fejer, and M. Fujimura, Opt. Lett. **27**, 179 (2002).
4. M. F. Volk, C. E. Rüter, and D. Kip, Proc. SPIE **10516**, 105161A (2018).
5. J.-H. Zhao, X.-F. Qin, F.-X. Wang, G. Fu, J. Du, and X.-L. Wang, Opt. Mater. Express **3**, 954 (2013).
6. L. Li, W. Nie, Z. Li, Q. Lu, C. Romero, J. R. Vázquez De Aldana, and F. Chen, Sci. Rep. **7**, 1 (2017).
7. X. L. Chang, Y. Li, N. Volet, L. Wang, J. Peters, and J. E. Bowers, Optica **3**, 531 (2016).
8. Y. C. Wang, X. Xiong, N. Andrade, V. Venkataraman, X.-F. Ren, G.-C. Guo, and M. Lončar, Opt. Express **25**, 6963 (2017).
9. C. Chen, C. E. Rüter, M. F. Volk, C. Chen, Z. Shang, Q. Lu, S. Akhmadaliev, S. Zhou, F. Chen, and D. Kip, Opt. Express **24**, 16434 (2016).
10. R. Kou, S. Kurimura, K. Kikuchi, A. Terasaki, H. Nakajima, K. Kondou, and J. Ichikawa, Opt. Express **19**, 11867 (2011).
11. S. Kurimura, Y. Kato, M. Maruyama, Y. Usui, and H. Nakajima, Appl. Phys. Lett. **89**, 191123 (2006).
12. M. Chauvet, F. Henrot, F. Bassignot, F. Devaux, L. Gauthier-Manuel, V. Pecheur, H. Maillotte, and B. Dahmani, J. Opt. **18**, 085503 (2016).
13. J. D. Bierlein and H. Vanherzeele, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 622 (1989).
14. M. F. Volk, S. Suntsov, C. E. Rüter, and D. Kip, Opt. Express **24**, 1386 (2016).
15. N. Courjal, B. Guichardaz, G. Ulliac, J. Y. Rauch, B. Sadani, H. H. Lu, and M. P. Bernal, J. Phys. D **44**, 305101 (2011).
16. F. Devaux, E. Lantz, and M. Chauvet, J. Opt. Soc. Am. B **33**, 703 (2016).
17. K. Kato, IEEE J. Quantum Electron. **27**, 1137 (1991).
18. R. Eckardt and J. Reintjes, IEEE J. Quantum Electron. **20**, 1178 (1984).

Research Article Vol. 3, No. 6 / 15 June 2020 / OSA Continuum 1536

OSA CONTINUUM

High efficiency cascaded third-harmonic generation in a quasi-periodically poled $KTiOPO_4$ crystal

AUGUSTIN VERNAY,[1] LUCAS BONNET-GAMARD,[1] VÉRONIQUE BOUTOU,[1] SIVAN TRAJTENBERG-MILLS,[2] ADY ARIE,[2] AND BENOÎT BOULANGER[1,*]

[1] *Univ. Grenoble Alpes, CNRS, Grenoble INP, Institut Néel, 38000 Grenoble, France*
[2] *US School of Electrical Engineering, Faculty of Engineering, Tel Aviv University, Tel Aviv, Israel*
[*] *benoit.boulanger@neel.cnrs.fr*

Abstract: We performed and studied cascaded third-harmonic generation (THG) in a quasi-periodically poled KTP (QPPKTP) crystal allowing simultaneous phase-matching of the two cascading steps $\omega + \omega \rightarrow 2\omega$ and $2\omega + \omega \rightarrow 3\omega$. The phase-matching was achieved at the fundamental wavelength $\lambda_\omega = 1587$ nm when the QPPKTP crystal was heated to 95°C. The energy conversion efficiency reached 40% in the picosecond regime for a fundamental energy of 20 µJ that corresponds to an intensity of 1.5 GW/cm^2. It is the highest value of THG efficiency ever reported to the best of our knowledge. The modeling in the case of the depleted pump regime accurately described the experiments.

© 2020 Optical Society of America under the terms of the OSA Open Access Publishing Agreement

1. Introduction

Extending the bandwidth of laser sources is a huge field of application of parametric nonlinear optics starting from the pioneering work on second-harmonic generation (SHG) [1] and optical parametric oscillators (OPO) [2]. Third-harmonic generation (THG) is also of strong interest in this frame of frequency conversion since it is often used as a pump source of OPO [3], but it is also at the heart of nuclear reactions [4] and optical processing [5] for example. Quantum optics is another area of interest for THG since it can lead to the generation of squeezed light [6,7].

THG can be performed using a direct third order nonlinear process, *i.e.* $\omega + \omega + \omega \rightarrow 3\omega$ that is governed by the third-order nonlinear electric susceptibility $\chi^{(3)}$ [8]. While third-order susceptibility is present in all materials, it is usually very small, causing conversion efficiency of THG to be low and requires very high pump intensities. Another approach is by cascading two processes driven by the second-order susceptibility $\chi^{(2)}$: $\omega + \omega \rightarrow 2\omega$, which corresponds to SHG, and THG it-self, *i.e.* $2\omega + \omega \rightarrow 3\omega$ creating the third harmonic. These two steps can be successive [4] or simultaneous [7,9,10,11].

The second-order susceptibility is available only for non-centrosymmetric materials, but it can be a few orders of magnitude higher than the third-order susceptibility, so that the second-order processes are generally more efficient. Direct as well as cascaded THG can be achieved in phase-matched birefringent crystals of volume [8,10,12] or waveguide [11,13] dimensions. But periodically-poled nonlinear crystals are also a good alternative because of their relatively high non-linearity and their phase-matching flexibility [6,7,14]. Note that the simultaneous cascading configuration had led to the highest THG conversion efficiencies using birefringent phase-matching [10] as well as quasi-phase-matching [9,11].

The present study deals with this latter configuration. We developed theoretical and experimental methods for designing an efficient cascaded THG using a single quasi-periodically poled $KTiOPO_4$ crystal (QPPKTP). KTP crystals are widely used for frequency conversion and quantum optics, they have a high second-order susceptibility and are commercially available. Quasi

#395084 https://doi.org/10.1364/OSAC.395084
Journal © 2020 Received 13 Apr 2020; accepted 19 May 2020; published 1 Jun 2020

Research Article Vol. 3, No. 6 / 15 June 2020 / OSA Continuum 1537
OSA CONTINUUM

periodic structures in KTP have shown to be strong contenders for achieving high conversion efficiencies [9,15,16]. Our objective is then to go beyond these pioneering works by developing a model of THG in the depleted pump regime and by experimentally optimizing the conversion efficiency, in particular in the visible around 0.5 µm. This last point is of prime importance in the more general framework of the generation of new quantum states of light, where the exact reverse of cascaded THG, *i.e.* $3\omega \rightarrow \omega + 2\omega$ coupled with $2\omega \rightarrow \omega + \omega$, is a way to produce three highly correlated photons at ω [17]. The target is then to perform this triple-photon generation (TPG) in the telecom range for quantum information, which means λ_ω around 1.5 µm and so $\lambda_{3\omega}$ around 0.5 µm. Since TPG and THG exhibit the same phase-matching properties, the optimization of one then leads to the optimization of the other.

2. Crystal design

Tailoring the second-order susceptibility of nonlinear crystals can be performed by electric field poling, a process that can flip the sign of some $\chi^{(2)}$ coefficients. The most common use of this is for quasi-phase matching, where a periodic change in the sign of the susceptibility with period Λ can compensate phase mismatch, leading to high conversion efficiencies in crystals and processes that were inefficient otherwise. But not only periodic structures can be created, also 2D modulations have been shown to be useful for beam shaping [18] as well as for general frequency control [19].

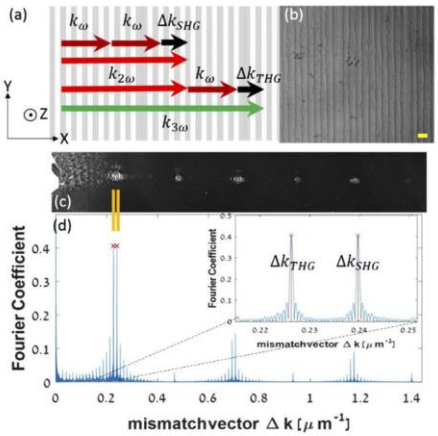


Fig. 1. (a) A schematic picture of the cascaded processes; (x,y,z) refers to the dielectric frame ; $k_{\omega,2\omega,3\omega}$ stands for the wave vectors and $\Delta k_{SHG,THG}$ for the phase-mismatches, with no metric matching between the vector sizes and the pattern in the background. (b) Microscopy picture of the QPPKTP crystal exhibiting the poling pattern; the yellow scale bar is 28 µm long. (c) Far field diffraction pattern from the crystal. In orange are the peaks that correspond to the peaks used for the design. (d) Fourier Transform of the nonlinear modulation pattern, exhibiting two peaks at the mismatch frequencies, *i.e.* $\Delta k_{SHG} = 0.24441 \mu m^{-1}$ for the SHG and $\Delta k_{THG} = 0.22031 \mu m^{-1}$ for the THG.

Research Article Vol. 3, No. 6 / 15 June 2020 / OSA Continuum 1538
OSA CONTINUUM

One interesting way of designing nonlinear crystals is by imposing a quasi-periodic structure [20,21], where multiple periods are combined in the same crystal. This enables to phase-match multiple processes simultaneously through different Fourier components of the crystal modulation. These crystals are designed to have a few discrete peaks in their Fourier spectrum, each corresponding to the phase-matching requirements of each process. This concept was originally based on a Fibonacci tiling of the crystal [9,22], although only specific wave-vectors, whose ratio depends on the Fibonacci golden ratio, are available for phase matching in this type of system. The theory was later extended to provide an arbitrary set of wave vectors with the use of the De Brujin's dual-grid method [20,23], which enables to phase-match an arbitrary combination of multiple nonlinear processes, in one dimension [20,21] as well as two dimensions [24].

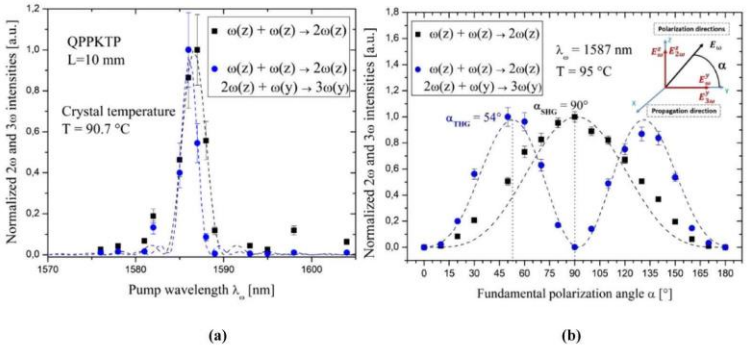
In order to simultaneously phase-match SHG and THG, we used a quasiperiodic modulation in a KTP crystal. We chose the third-harmonic to be $\lambda_{3\omega} = 527\ nm$, so that the lower harmonics are $\lambda_{2\omega} = 790.5\ nm$, and $\lambda_{\omega} = 1581\ nm$. We considered the following cascading processes: type 0 SHG (all fields are z-polarized) $1581_{(z)} + 1581_{(z)} \rightarrow 790.5_{(z)}$ followed by type II THG (input signal is (z) polarized and the rest are (y) polarized) $790.5_{(z)} + 1581_{(y)} \rightarrow 527_{(y)}$ where y and z stand for the direction of polarization of the waves propagating along the x-axis, (x, y, z) being the crystalline axes. We then calculated the corresponding phase-mismatch values, *i.e.*: $\Delta k_{SHG} = k_{2\omega} - 2k_{\omega}$ and $\Delta k_{THG} = k_{3\omega} - k_{2\omega} - k_{\omega}$, where $k_i = 2\pi n(\lambda_i)/\lambda_i$ is the wave vector. Using the refractive indices of KTP as a function of temperature [25,26] at 100°C, we obtained $\Delta k_{SHG} = 0.24441\mu m^{-1}$ and $\Delta k_{THG} = 0.22031\mu m^{-1}$. The flexibility of our design method [20,21] allows us to tailor the nonlinear response of the crystal so that it will provide phase-matching at these two spatial frequencies, with the tiling vectors $\pi/\Delta k_{SHG} = 14.1836\mu m$ and $\pi/\Delta k_{THG} = 12.7849\mu m$, respectively. We fabricated a 1-cm-long QPPKTP crystal, where the width of the poled zone is 1 mm. A microscopy image of the selectively etched surface of the fabricated crystal and the associated Fourier spectrum are shown in Fig. 1.

3. Phase-matching conditions

We experimentally determined the phase-matching wavelengths and the corresponding temperatures of the SHG and THG steps in the 1-cm-long QPPKTP sample described in the previous section. The fundamental beam at λ_{ω}, that is used for pumping the QPPKTP crystal, was emitted by a tunable TOPAS optical parametric generator (OPG) with a repetition rate of 10 Hz, a pulse duration of $\tau_{\omega} = 15ps$ (Full-width at $1/e^2$), and a wavelength tunability with an accuracy of ± 1 nm. The QPPKTP was placed in an oven whose temperature can be tuned from room temperature to 140°C with an accuracy of ± 0.5°C. The longitudinal thermal gradient between the center of the crystal and the entrance or exit face is equal to 0.7°C, while the transverse gradient was estimated to be 0.3 °C. The temperature of the QPPKTP crystal can be assumed to be nearly homogeneous since such a gradient may affect the fifth decimal place of the refractive indices, which cannot modify the phase-matching conditions. The fundamental pump beam is focused inside the crystal with a focal lens $f = 50$ cm; its waist *radius* measured at the center of the crystal is then equal to $w_{\omega} = 205 \pm 21\ \mu m$ (Full-width at $1/e^2$), which leads to a Rayleigh length of ~15 cm, much longer than the crystal length, ensuring propagation in the parallel beam limit. The experiment design enabled to independently measure the energy of the second-harmonic (SH) and third-harmonic (TH) waves. The two corresponding beams were separated using a high reflectivity mirror at 800 nm: the energy at $\lambda_{2\omega}$ was measured by a J3S10 Molectron joulemeter (MJ) placed behind a notch filter at 532-nm, and the energy at $\lambda_{3\omega}$ using also a J3S10 MJ behind a prism. The energy of the incident beam at λ_{ω} was measured before the QPPKTP crystal using a J305 MJ behind a flip mirror. A half-waveplate installed in the input beam path before the QPPKTP allowed us to adjust the polarization of the beam at λ_{ω} according to the required phase-matching condition, *i.e.* that of a pure SHG or that of THG.

Research Article Vol. 3, No. 6 / 15 June 2020 / OSA Continuum 1539
OSA CONTINUUM

By tuning the OPG wavelength λ_ω and the QPPKTP temperature T, we identified several situations for which SHG and THG were phase-matched simultaneously, as shown in Fig. 2(a). In this example, the temperature of the QPPKTP crystal was fixed at T = 90.7 °C, and the 2ω and 3ω peaks are centered at λ_ω = 1587 nm and λ_ω = 1586 nm, respectively. The shift between these two wavelengths was within the measurement accuracy, *i.e.* ± 1 nm.



(a) (b)

Fig. 2. (a) Normalized intensities of the second-harmonic (SH) wave and third-harmonic (TH) waves as a function of the QPPKTP temperature when the waves propagate along the *x*-axis, the quantities *(y)* and *(z)* referring to the polarization directions of the interacting waves; the dots correspond to experimental data and the dashed lines to fits. (b) Normalized intensities of the SH and TH waves as a function of the polarization angle α defined in the right inset. The fundamental intensity was lower than 0.5 GW.cm^{-2}, hence pump depletion is negligible here.

Figure 2(a) shows that a concomitant phase-matching exists in the QPPKTP crystal on the one hand, and that the corresponding values of the phase-matching parameters are close to the theoretical ones, *i.e.* λ_ω = 1581 nm and T = 100°C, on the other hand. This agreement between calculations and experiments validates the design of the quasi-periodic grating as well as of the values of the refractive indices as a function of wavelength and temperature.

There is also a satisfying agreement at the level of the wavelength acceptance, $\delta\lambda_\omega$, that is defined as the full width of the phase-matching peak at 0.405 of its maximum. The experimentally measured bandwidths of $\delta\lambda^{SHG}_{\omega\ exp} = 3.4\ nm$ and $\delta\lambda^{THG}_{\omega\ exp} = 2.3\ nm$, according to Fig. 2(a), are slightly wider than the theoretical values, i.e. $\delta\lambda^{SHG}_{\omega calc} = 2.2\ nm$ and $\delta\lambda^{THG}_{\omega calc} = 1.8\ nm$. This weak discrepancy is probably mainly due to some small imperfections in fabrication. Since the product of the interacting length by the acceptance is constant, we conclude that the effective interaction length for the SHG and THG, L^{SHG}_{eff} and L^{THG}_{eff} respectively, are slightly smaller than the geometrical length = $1cm$, *i.e.* $L^{SHG}_{eff} = L(\delta\lambda^{SHG}_{\omega calc}/\delta\lambda^{SHG}_{\omega\ \exp}) = 6.6mm$ and $L^{THG}_{eff} = L(\delta\lambda^{THG}_{\omega calc}/\delta\lambda^{THG}_{\omega\ \exp}) = 7.8mm$.

A final optimization led to a maximal THG conversion efficiency reached for λ_ω = 1587 nm and T = 95°C. The corresponding polarization curves are shown in Fig. 2(b) where α is the angle between the polarization of the fundamental wave and the *y*-axis of the QPPKTP crystal. There is a perfect agreement between calculation and measurement, the optimal angle for a Type 0 SHG being found at $\alpha = 90°$, while it is $\alpha = 54°$ for THG. Note that these two values of angle can be easily calculated in the undepleted pump approximation (UPA) because the SH intensity is simply proportional to the square of the fundamental intensity, which gives $I_{2\omega} \propto \sin^4(\alpha)$, and

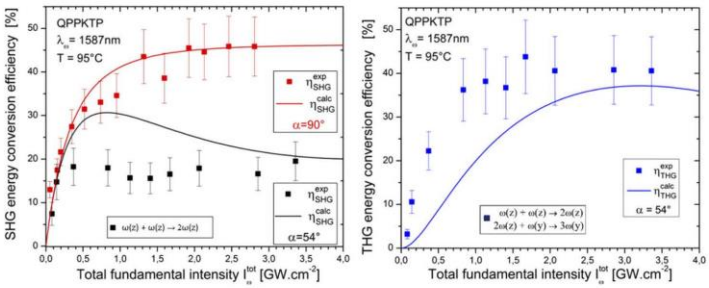
Research Article Vol. 3, No. 6 / 15 June 2020 / OSA Continuum 1540
OSA CONTINUUM

the cascaded TH intensity depends on the product of the fundamental and SH intensities, *i.e.* $I_{3\omega} \propto \sin^4(\alpha)\cos^2(\alpha)$. These values of optimal polarization angles obviously remain the same in the depleted pump regime.

These latter experimental conditions of temperature, wavelength and polarization were kept for measuring the SHG and THG conversion efficiencies, as described in the next section.

4. Conversion efficiencies

The conversion efficiencies, expressed as the power ratios $\eta_{SHG} = \varepsilon_{2\omega}(L)/\varepsilon_{2\omega}(0)$ and $\eta_{THG} = \varepsilon_{3\omega}(L)/\varepsilon_{\omega}(0)$, were measured using the experimental setup described in the previous section. First, we considered SHG alone, so the polarization angle α was fixed at $90°$. Second, we performed THG, which can be achieved for α=$54°$. In this situation, while η_{SHG} decreased to the value of 17% as shown in Fig. 3(a), whereas THG was optimized, the conversion efficiency η_{THG} reaching a maximal value of 40% from a fundamental intensity of about 1.5 GW/cm^2 that corresponds to a fundamental energy of 20µJ. The normalized conversion efficiency with respect to the peak power defined as $([P_{3\omega}(L)/P_{\omega}(0)]L)^2$ is 43.1% /MW.cm^2. Figure 3(a) shows that the SH wave was depleted when the THG was optimized since the corresponding SHG energy conversion efficiency dropped from 45%, to 17%.



(a) (b)

Fig. 3. SHG (a) and THG (b) energy conversion efficiencies as a function of the total incident fundamental intensity. The dots correspond to experimental data and the continuous lines stand for the interpolations.

The comparison with theory was performed using a numerical calculation of the following coupled system of equations relative to real amplitudes, *i.e.* the *moduli* of the complex amplitudes of the electric fields of the interacting waves written $|E_{\omega,2\omega,3\omega}|$. It is assumed that SHG and THG are quasi-phase-matched along the x-axis of the QPPKTP crystal. Therefore, we consider only a single Fourier component for each one of these two processes, so that the effective nonlinear coefficient is given by the product of the material's second-order susceptibility $\chi^{(2)}$ with the corresponding Fourier coefficient F. This system of equations can be written as:

$$\begin{cases} \frac{\partial|E^z_{\omega}(X)|}{\partial X} = -\frac{\pi}{\lambda_{\omega} n_z(\lambda_{\omega})}\chi^{(2)}_{33}(\omega = 2\omega - \omega)F^{SHG}|E^z_{2\omega}(X)|.|E^{z\,*}_{\omega}(X)| \\ \frac{\partial|E^y_{\omega}(X)|}{\partial X} = -\frac{\pi}{\lambda_{\omega} n_y(\lambda_{\omega})}\chi^{(2)}_{24}(\omega = 3\omega - 2\omega)F^{THG}|E^y_{3\omega}(X)|.|E^{z*}_{2\omega}(X)| \\ \frac{\partial|E^z_{2\omega}(X)|}{\partial X} = +\frac{\pi}{\lambda_{2\omega} n_z(\lambda_{2\omega})}\chi^{(2)}_{33}(2\omega = \omega + \omega)F^{SHG}|E^z_{\omega}(X)|.|E^z_{\omega}(X)| \\ \quad -\frac{\pi}{\lambda_{2\omega} n_z(\lambda_{2\omega})}\chi^{(2)}_{24}(2\omega = 3\omega - \omega)F^{THG}|E^y_{3\omega}(X)|.|E^{y*}_{\omega}(X)| \\ \frac{\partial|E^y_{3\omega}(X)|}{\partial X} = +\frac{\pi}{\lambda_{3\omega} n_y(\lambda_{3\omega})}\chi^{(2)}_{24}(3\omega = \omega + 2\omega)F^{THG}|E^y_{\omega}(X)|.|E^z_{2\omega}(X)| \end{cases} \quad (1)$$

Research Article Vol. 3, No. 6 / 15 June 2020 / OSA Continuum 1541

OSA CONTINUUM

Here the quantity X is the longitudinal coordinate along the x-axis, the superscripts y and z stand for the directions of the electric fields, and the wavelengths are the optimal ones derived experimentally, *i.e.* $\lambda_\omega = 1587.0nm$, $\lambda_{2\omega} = 793.5nm$ and $\lambda_{3\omega} = 529.0nm$. The values of the principal refractive indices $n_y(\lambda_{\omega/3\omega})$ and $n_z(\lambda_{\omega/2\omega})$ are given in Table 1; they are calculated according to the considered wavelengths at the working temperature from the dispersion equations of Refs. [25,26]. The second-order nonlinear coefficients $\chi^{(2)}_{24}$ and $\chi^{(2)}_{33}$, also given in Table 1, are calculated from the data at room temperature of Ref. [27] using Miller rule. The Fourier amplitudes F_{SHG} and F_{THG} can be calculated using the method outlined in Ref. [20], but here they are adjustment parameters for fitting the experimental data. Since there is no analytical solution to Eq. (1), the comparison with theory was performed using a parametric numerical resolution based on the *Runge-Kutta* method.

Table 1. Wavelengths λ_{ω_i} where ω_i stands for the frequencies ω, 2ω or 3ω, pulse durations τ_{ω_i}, principal refractive indices $n_y(\lambda_{\omega/3\omega})$ and $n_y(\lambda_{\omega/3\omega})$ [26], beam wait *radii* w_{ω_i}, Fresnel transmissions $T^{y,z}_{\omega_i}$ and nonlinear coefficients $\chi^{(2)}_{ij}$ used for the numerical integration of Eqs. (1) [27].

	λ_{ω_i} [nm]	τ_{ω_i} [ps]	$n_y(\lambda_{\omega_i})$	$n_z(\lambda_{\omega_i})$	w_{ω_i} [µm]	$T^z_{\omega_i}$	$T^y_{\omega_i}$	$\chi^{(2)}_{33}$ [pmV^{-1}]	$\chi^{(2)}_{24}$ [pmV^{-1}]
ω	1587	15.0	1.7363	1.8150	205	0.917	0.929	16.1	3.8
2ω	793.5	10.6	-	1.8445	145	0.912	-	19.2	4.8
3ω	529	8.7	1.7907	-	118	-	0.920	-	5.3

The study of the wavelength acceptances described in the previous section shows that the effective interaction length is slightly smaller than the geometrical length of the QPPKTP crystal, and that this effective length is not the same for SHG and THG. Then the numerical integration of Eq. (1) was made from $X = 0$, *i.e.* the entrance of the crystal, and $X = l^{SHG}_{eff} = 6.6\ mm$ for SHG, to $X = l^{THG}_{eff} = 7.8mm$ for THG.

The electric fields in Eq. (1) are the internal fields inside the QPPKTP crystal. The values of the *moduli* of the complex amplitudes of the fundamental electric fields at the entrance of the crystal, i.e. $|E^y_\omega(X=0)|$ and $|E^z_\omega(X=0)|$ that have to be taken for the integration of Eq. (1) are linked to the total experimental energy of the incident fundamental beam $\varepsilon^{tot}_\omega(X=0)$ by the following equations (assuming plane waves with temporal and transverse Gaussian profiles):

$$\begin{cases} |E^y_\omega(X=0)| = \sqrt{\frac{\mu_0 c}{n_y(\lambda_\omega)\kappa_\omega} T^y_\omega \cos^2(\alpha)\varepsilon^{tot}_\omega(X=0)} \\ |E^z_\omega(X=0)| = \sqrt{\frac{\mu_0 c}{n_z(\lambda_\omega)\kappa_\omega} T^z_\omega \sin^2(\alpha)\varepsilon^{tot}_\omega(X=0)} \end{cases} \tag{2}$$

with

$$\begin{cases} T^{y,z}_\omega = \frac{4n_{y,z}(\lambda_\omega)}{[1+n_{y,z}(\lambda_\omega)]^2} \\ \kappa_\omega = \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \frac{\tau_\omega}{2} w^2_\omega \end{cases} . \tag{3}$$

The quantities $T^{y,z}_\omega$ correspond to the Fresnel transmission in normal incidence, the light being polarized along the y-axis or z-axis respectively, and α=*90°* for the SHG alone and α=*54°* for the optimized THG. The quantity τ_ω corresponds to the pulse duration and w_ω to the beam *radii*.

In the same way, the calculated energy of the generated SH and TH waves at the exit of the QPPKTP crystal, *i.e.* $\varepsilon_{2\omega}(X=L)$ and $\varepsilon_{3\omega}(X=L)$, are linked to the *moduli* of the calculated SH and TH complex amplitudes, *i.e.* $|E^z_{2\omega}(X=L)|$ and $|E^y_{3\omega}(X=L)|$, by:

$$\begin{cases} \varepsilon_{2\omega}(X=L) = \kappa_{2\omega} T^z_{2\omega} \frac{n_z(\lambda_{2\omega})}{\mu_0 c} |E^z_{2\omega}(X=L)|^2 \\ \varepsilon_{3\omega}(X=L) = \kappa_{3\omega} T^y_{3\omega} \frac{n_y(\lambda_{3\omega})}{\mu_0 c} |E^y_{3\omega}(X=L)|^2 \end{cases} \tag{4}$$

Research Article Vol. 3, No. 6 / 15 June 2020 / OSA Continuum 1542
OSA CONTINUUM

with

$$\begin{cases} T^{z}_{2\omega} = \frac{4n_z(\lambda_{2\omega})}{[1+n_z(\lambda_{2\omega})]^2} \\ \kappa_{2\omega} = \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \frac{\tau_{2\omega}}{2} w^2_{2\omega} \\ T^{y}_{3\omega} = \frac{4n_y(\lambda_{3\omega})}{[1+n_y(\lambda_{3\omega})]^2} \\ \kappa_{3\omega} = \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \frac{\tau_{3\omega}}{2} w^2_{3\omega} \end{cases} \tag{5}$$

where the Gaussian relations apply regarding the pulse durations τ_ω, $\tau_{2\omega}$ and $\tau_{3\omega}$ as well as the beam *radii* w_ω, $w_{2\omega}$ and $w_{3\omega}$, *i.e.*:

$$\begin{cases} w_{2\omega} = \frac{w_\omega}{\sqrt{2}}, \tau_{2\omega} = \frac{\tau_\omega}{\sqrt{2}} \\ w_{3\omega} = \frac{w_\omega}{\sqrt{3}}, \tau_{3\omega} = \frac{\tau_\omega}{\sqrt{3}} \end{cases} . \tag{6}$$

The numerical values of the Fresnel transmissions, beam waist *radii* and pulse durations are given in Table 1.

The system of Eq. (1) was first solved for the SHG case only by taking α=*90°*. We performed a parameter adjustment on the Fourier coefficient F_{SHG}. The best fit was found for $F_{SHG} = 0.28$, which is 30% lower than the theoretical value. The shape of the fitting curve is in excellent agreement with the experimental data as shown by the red curve of Fig. 3(a). Afterwards, this value of F_{SHG} was taken for the second step of integration where the whole system has been considered, *i.e.* for α=*54°*. The Fourier coefficient F_{THG} was then taken also as a fitting parameter and ended up only 8% smaller than its theoretical value, *i.e.* $F_{THG} = 0.368$. These deviations from the theoretical Fourier coefficient are thought to be due to fabrication defaults. But the agreement remains very good between the theoretical and experimental curves as shown by the black curves of Fig. 3(a) and by Fig. 3(b). Note that the high values of the conversion efficiency for both SHG and THG are well corroborated by the behaviors of the curves of Fig. 3, which undoubtedly indicate that SHG as well as THG are achieved in the depleted pump regime.

5. Conclusion

We demonstrated a 40% THG energy conversion efficiency in a quasi-periodically poled KTP crystal pumped with an energy as low as 20 µJ. This is the highest THG efficiency ever reported to the best of our knowledge. Previous records using also a quasi-periodic poling structure were 23% [9], and 30.7% in a single KDP crystal allowing simultaneous birefringent phase-matching [12]. Note that using $\chi^{(3)}$ interactions for THG results in efficiencies of single percent only [8].

Our work opens the way to exciting developments regarding frequency up-conversion for numerous applications, in particular for the generation in the ultra-violet range around 330 nm starting from a laser around 1 µm. Moreover, it opens new possibilities in quantum optics for TPG by a $\chi^{(2)}$ cascaded spontaneous parametric down conversion [17] of a 527 nm pump for generating a three-photon state at 1581 nm in a compact single nonlinear crystal, which is an alternative of using a $\chi^{(3)}$ process in a birefringent crystal [28]. Intracavity quasi-phase-matching may also be interesting in this context [29].

Funding

Israel Science Foundation (1415/17); ANR/FNS PRCI France-Switzerland (16707).

Acknowledgments

All the authors wish to thank Imaginano (the France Israël Associated International Laboratory with CNRS – Weizmann Institute of Science - Tel Aviv University – Hebrew University of Jerusalem).

Research Article Vol. 3, No. 6 / 15 June 2020 / OSA Continuum 1542
OSA CONTINUUM

with

$$\begin{cases} T^{z}_{2\omega} = \frac{4n_z(\lambda_{2\omega})}{[1+n_z(\lambda_{2\omega})]^2} \\ \kappa_{2\omega} = \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \frac{\tau_{2\omega}}{2} w^2_{2\omega} \\ T^{y}_{3\omega} = \frac{4n_y(\lambda_{3\omega})}{[1+n_y(\lambda_{3\omega})]^2} \\ \kappa_{3\omega} = \left(\frac{\pi}{2}\right)^{3/2} \frac{\tau_{3\omega}}{2} w^2_{3\omega} \end{cases} \tag{5}$$

where the Gaussian relations apply regarding the pulse durations τ_ω, $\tau_{2\omega}$ and $\tau_{3\omega}$ as well as the beam *radii* w_ω, $w_{2\omega}$ and $w_{3\omega}$, *i.e.*:

$$\begin{cases} w_{2\omega} = \frac{w_\omega}{\sqrt{2}}, \tau_{2\omega} = \frac{\tau_\omega}{\sqrt{2}} \\ w_{3\omega} = \frac{w_\omega}{\sqrt{3}}, \tau_{3\omega} = \frac{\tau_\omega}{\sqrt{3}} \end{cases} . \tag{6}$$

The numerical values of the Fresnel transmissions, beam waist *radii* and pulse durations are given in Table 1.

The system of Eq. (1) was first solved for the SHG case only by taking α=*90°*. We performed a parameter adjustment on the Fourier coefficient F_{SHG}. The best fit was found for $F_{SHG} = 0.28$, which is 30% lower than the theoretical value. The shape of the fitting curve is in excellent agreement with the experimental data as shown by the red curve of Fig. 3(a). Afterwards, this value of F_{SHG} was taken for the second step of integration where the whole system has been considered, *i.e.* for α=*54°*. The Fourier coefficient F_{THG} was then taken also as a fitting parameter and ended up only 8% smaller than its theoretical value, *i.e.* $F_{THG} = 0.368$. These deviations from the theoretical Fourier coefficient are thought to be due to fabrication defaults. But the agreement remains very good between the theoretical and experimental curves as shown by the black curves of Fig. 3(a) and by Fig. 3(b). Note that the high values of the conversion efficiency for both SHG and THG are well corroborated by the behaviors of the curves of Fig. 3, which undoubtedly indicate that SHG as well as THG are achieved in the depleted pump regime.

5. Conclusion

We demonstrated a 40% THG energy conversion efficiency in a quasi-periodically poled KTP crystal pumped with an energy as low as 20 µJ. This is the highest THG efficiency ever reported to the best of our knowledge. Previous records using also a quasi-periodic poling structure were 23% [9], and 30.7% in a single KDP crystal allowing simultaneous birefringent phase-matching [12]. Note that using $\chi^{(3)}$ interactions for THG results in efficiencies of single percent only [8].

Our work opens the way to exciting developments regarding frequency up-conversion for numerous applications, in particular for the generation in the ultra-violet range around 330 nm starting from a laser around 1 µm. Moreover, it opens new possibilities in quantum optics for TPG by a $\chi^{(2)}$ cascaded spontaneous parametric down conversion [17] of a 527 nm pump for generating a three-photon state at 1581 nm in a compact single nonlinear crystal, which is an alternative of using a $\chi^{(3)}$ process in a birefringent crystal [28]. Intracavity quasi-phase-matching may also be interesting in this context [29].

Funding

Israel Science Foundation (1415/17); ANR/FNS PRCI France-Switzerland (16707).

Acknowledgments

All the authors wish to thank Imaginano (the France Israël Associated International Laboratory with CNRS – Weizmann Institute of Science - Tel Aviv University – Hebrew University of Jerusalem).

Research Article Vol. 3, No. 6 / 15 June 2020 / OSA Continuum 1543

OSA CONTINUUM

Disclosures

The authors declare no conflicts of interest.

References

1. P. Franken, A. E. Hills, C. W. Peters, and G. Weinreich, "Generation of Optical Harmonics," Phys. Rev. Lett. **7**(4), 118–119 (1961).
2. J. A. Giordmaine and R. C. Miller, "Tunable coherent parametric oscillation in $LiNbO_3$ at optical frequencies," Phys. Rev. Lett. **14**(24), 973–976 (1965).
3. Y. X. Fan, R. C. Eckardt, R. L. Byer, J. Nolting, and R. Wallenstein, "Visible BaB2O4 optical parametric oscillator pumped at 355 nm by a singleaxialmode pulsed source," Appl. Phys. Lett. **53**(21), 2014–2016 (1988).
4. A. V. Simakin and G. A. Shafeev, "Initiation of nuclear reactions under laser irradiation of Au nanoparticles in the aqueous solution of Uranium salt," Appl. Phys. A **101**(1), 199–203 (2010).
5. R. P. Schmid, T. Schneider, and J. Reif, "Optical processing on a femtosecond time scale," Opt. Commun. **207**(1-6), 155–160 (2002).
6. V. G. Dmitriev and R. Singh, "Generation of polarization squeezed light in PPNC," Int. J. Quantum Inform. **01**(3), 403–416 (2003).
7. A. V Belinsky and R. Singh, "Simultaneous nonlinear conversion of light in periodically poled crystals," Quantum Electron. **48**(7), 611–614 (2018).
8. F. Gravier and B. Boulanger, "Third order frequency generation in TiO_2 rutile and $KTiOPO_4$," Opt. Mater. **30**(1), 33–36 (2007).
9. S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, and N. Ben Ming, "Quasi–Phase-Matched Third-Harmonic Generation in a Quasi-Periodic Optical Superlattice," Science **278**(5339), 843–846 (1997).
10. H. Qi, Z. Wang, F. Yu, X. Sun, X. Xu, and X. Zhao, "Cascaded third-harmonic generation with one KDP crystal," Opt. Lett. **41**(24), 5823–5826 (2016).
11. M. Marangoni, M. Lobino, and R. Ramponi, "Simultaneously phase-matched second- and third-harmonic generation from 1.55 μm radiation in annealed proton-exchanged periodically poled lithium niobate waveguides," Opt. Lett. **31**(18), 2707–2709 (2006).
12. B. Boulanger, J. P. Fève, P. Delarue, I. Rousseau, and G. Marnier, "Cubic optical nonlinearity of $KTiOPO_4$," J. Phys. B: At., Mol. Opt. Phys. **32**(2), 475–488 (1999).
13. V. Boutou, A. Vernay, C. Félix, F. Bassignot, M. Chauvet, D. Lupinski, and B. Boulanger, "Phase-matched second-harmonic generation in a flux grown KTP crystal ridge optical waveguide," Opt. Lett. **43**(15), 3770–3773 (2018).
14. P. S. Banks, M. D. Feit, and M. D. Perry, "High-intensity third-harmonic generation," J. Opt. Soc. Am. B **19**(1), 102 (2002).
15. K. Fradkin-Kashi, A. Arie, P Urenski, and G. Rosenman, "Multiple Nonlinear Optical Interactions with Arbitrary Wave Vector Differences," Phys. Rev. Lett. **88**(2), 023903 (2001).
16. A. Bahabad, R. Lifshitz, N. Voloch, and A. Arie, "Nonlinear photonic quasicrystals for novel optical devices," Philos. Mag. **88**(13-15), 2285–2293 (2008).
17. H. Hübel, D. R. Hamel, A. Fedrizzi, S. Ramelow, K. J. Resch, and T. Jennewein, "Direct generation of photon triplets using cascaded photon-pair sources," Nature **466**(7306), 601–603 (2010).
18. S. Trajtenberg-Mills and A. Arie, "Shaping light beams in nonlinear processes using structured light and patterned crystals," Opt. Mater. Express **7**(8), 2928–2942 (2017).
19. A. Leshem, R. Shiloh, and A. Arie, "Experimental realization of spectral shaping using nonlinear optical holograms," Opt. Lett. **39**(18), 5370–5373 (2014).
20. R. Lifshitz, A. Arie, and A. Bahabad, "Photonic Quasicrystals for Nonlinear Optical Frequency Conversion," Phys. Rev. Lett. **95**(13), 133901 (2005).
21. A. Bahabad, N. Voloch, A. Arie, and R. Lifshitz, "Experimental confirmation of the general solution to the multiple-phase-matching problem," J. Opt. Soc. Am. B **24**(8), 1916 (2007).
22. Z. V. Vardeny, A. Nahata, and A. Agrawal, "Optics of photonic quasicrystals," Nat. Photonics **7**(3), 177–187 (2013).
23. N. G. De Brujin, "Algebraic theory of Penrose's non-periodic tilings of the plane," Indag. Math. (Proc.) **84**(1), 39–52 (1981).
24. A. Bahabad, A. Ganany-Padowicz, and A. Arie, "Engineering two-dimensional nonlinear photonic quasi-crystals," Opt. Lett. **33**(12), 1386–1388 (2008).
25. S. Emanueli and A. Arie, "Temperature-dependent dispersion equations for $KTiOPO_4$ and $KTiOAsO_4$," Appl. Opt. **42**(33), 6661–6665 (2003).
26. K. Kato, "Parametric Oscillation at 3.2 μm in KTP Pumped at 1.064 μm," IEEE J. Quantum Electron. **27**(5), 1137–1140 (1991).
27. B. Boulanger, J. P. Fève, G. Marnier, B. Ménaert, X. Cabirol, P. Villeval, and C. Bonnin, "Relative sign and absolute magnitude of $d^{(2)}$ nonlinear coefficients of KTP from second-harmonic-generation measurements," J. Opt. Soc. Am. B **11**(5), 750–757 (1994).
28. J. Douady and B. Boulanger, "Experimental demonstration of a pure third-order optical parametric downconversion process," Opt. Lett. **29**(23), 2794–2796 (2004).

Research Article Vol. 3, No. 6 / 15 June 2020 / OSA Continuum 1544

OSA CONTINUUM

29. N. V. Kravtsov, G. D. Laptev, I. I. Naumova, A. A. Novikov, V. V. Firsov, and A. S. Chirkin, "Intracavity quasi-phase matched frequency summing in a laser based on a periodically poled active nonlinear Nd:Mg:$LiNbO_3$crystal," Quantum Electron. **32**(10), 923–924 (2002).

Bibliographie

1. C. Fabre, "Atomes et lumière , interactions matière-rayonnement," DEA (2006).
2. M. Born, E. Wolf, A. B. Bhatia, P. C. Clemmow, D. Gabor, A. R. Stokes, A. M. Taylor, P. A. Wayman, and W. L. Wilcock, *Principles of Optics* (Cambridge University Press, 1999).
3. R. Fleckinger, *Electromagnétisme - Fondements et applications* (Dunod, 2001).
4. A. Yariv and P. Yeh, O*ptical Waves in Crystals: Propagation and Control of Laser Radiation* (New York : Wiley 2003).
5. B. Boulanger and J. Zyss, "Nonlinear optical properties," Int. Tables Crystallogr. **9**, 178–219 (2006).
6. B. Boulanger, ASSL international courses
7. J. F. Nye, *Physical Properties of Crystals* (Oxford University Press, 1985).
8. A. Méndez and T. F. Morse, *Specialty Optical Fibers Handbook* (Elsevier Inc., 2007).
9. K. Kato, "Parametric Oscillation at 3.2 in KTP Pumped at 1.064 μm," IEEE J. Quantum Electron. **27**(5), 1137–1140 (1991).
10. S. Emanueli and A. Arie, "Temperature-dependent dispersion equations for $KTiOPO_4$ and $KTiOAsO_4$," **42**(33), 6661–6665 (2003).
11. P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, "Generation of optical harmonics," Phys. Rev. Lett. **7**(4), 118–119 (1961).
12. J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, "Interactions between light waves in a nonlinear dielectric," Phys. Rev. **127**(6), 1918–1939 (1962).
13. D. A. Kleinman, "Nonlinear dielectric polarization in optical media," Phys. Rev. **126**(6), 1977–1979 (1962).
14. F. E. Neumann, *Vorlesungen Über Die Theorie Der Elasticität Der Festen Körper Und Des Lichtäthers,Gehalten an Der Universität Königsberg* (Leipzig, 1885).
15. R. C. Miller, "Optical second harmonic generation in piezoelectric crystals," Appl. Phys. Lett. **5**(1), 17–19 (1964).
16. B. Boulanger, J. P. Fève, G. Marnier, B. Ménaert, X. Cabirol, P. Villeval, and C. Bonnin, "Relative sign and absolute magnitude of $d^{(2)}$ nonlinear coefficients of KTP from second-harmonic-generation measurements," J. Opt. Soc. Am. B **11**(5), 750 (1994).
17. B. Boulanger, J. P. Fève, and G. Marnier, "Field-factor formalism for the study of the tensorial symmetry of four-wave nonlinear optical parametric interactions in uniaxial and biaxial crystals," Phys. Rev. E **48**(6), 4730–4751 (1993).

18. R. C. Eckardt and J. Reintjes, "Phase Matching Limitations of High Efficiency Second Harmonic Generation," IEEE J. Quantum Electron. **20**(10), 1178–1187 (1984).

19. D. Eimerl, "High Average Power Harmonic Generation," IEEE J. Quantum Electron. **23**(5), 575-592 (1987).

20. N. Bloembergen, *Nonlinear Optics* (New York : Benjamin, 1965).

21. E. J. Lim, M. M. Fejer, R. L. Byer, and W. J. Kozlovsky, "Blue light generation by frequency doubling in periodically poled lithium niobate channel waveguide," Electron. Lett. **25**(11), 731–732 (1989).

22. A. Arie and N. Voloch, "Periodic , quasi-periodic , and random quadratic nonlinear photonic crystals," **373**(3), 355–373 (2010).

23. M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, "Quasi-Phase-Matched 2nd Harmonic-Generation - Tuning and Tolerances," IEEE J. Quantum Electron. **28**(11), 2631–2654 (1992).

24. 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 $LiNbO_3$* (1995), **12**(11).

25. B. Boulanger, J. P. Fève, P. Delarue, I. Rousseau, and G. Marnier, "Cubic optical nonlinearity of $KTiOPO_4$," J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. **32**(2), 475–488 (1999).

26. J. P. Fève, B. Boulanger, and J. Douady, "Specific properties of cubic optical parametric interactions compared to quadratic interactions," Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys. **66**(6), 11 (2002).

27. P. N. Butcher and D. Cotter, *The Elements of Nonlinear Optics* (Cambridge University Press, 1990).

28. J. P. Fève, B. Boulanger, and J. Douady, "Specific properties of cubic optical parametric interactions compared to quadratic interactions," Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys. **66**(6), 11 (2002).

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

30. F. Gravier and B. Boulanger, "Triple-photon generation: comparison between theory and experiment," J. Opt. Soc. Am. B **25**(1), 98 (2008).

31. F. Gravier, *Conception et étude d'un générateur et d'un corrélateur de triplets de photons basés sur $KTiOPO_4$ et TiO_2*. Thèse de doctorat de l'Université Joseph Fourier (2007).

32. F. Gravier and B. Boulanger, "Cubic parametric frequency generation in rutile single crystal," Opt. Express **14**(24), 11715 (2006).

33. A. E. Siegman, *Lasers* (*University Science Books, 1986).*

34. D. Dangoisse, D. Hennequin, and V. Zehnlé-Dhaoui, *Les lasers - Cours et exercices corrigés* (Dunod 1998).

35. A. Dot, A. Borne, B. Boulanger, K. Bencheikh, and J. A. Levenson, "Quantum theory analysis of triple photons generated by a χ (3) process," Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys. **85**(2), 1–12 (2012).

36. A. Dot, *Etude théorique et expérimentale de la génération et des corrélations quantiques de photons triplets générés par interaction non linéaire d'ordre trois*. Thèse de doctorat de l'Université de Grenoble (2011).

37. K. Koch, G. T. Moore, S. H. Chakmakjian, E. C. Cheung, J. M. Liu, and G. T. Moore, "Hot Spots in Parametric Fluorescence with a Pump Beam of Finite Cross Section," IEEE J. Quantum Electron. **31**(5), 769–781 (1995).

38. K. Bencheikh, F. Gravier, J. Douady, A. Levenson, and B. Boulanger, "Triple photons: a challenge in nonlinear and quantum optics," Comptes Rendus Phys. **8**(2), 206–220 (2007).

39. K. Banaszek and P. L. Knight, "Quantum interference in three-photon down-conversion," Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys. **55**(3), 2368–2375 (1997).

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

41. J. S. Bell, "On the Einstein Podolsky Rosen paradox," Phys. Phys. Fiz. Phys. физика **1**(3), 195–200 (1964).

42. S. J. Freedman and J. F. Clauser, "Experimental test of local hidden-variable theories," Phys. Rev. Lett. **28**(14), 938–941 (1972).

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

44. A. Aspect, P. Grangier, and G. Roger, "Experimental realization of Einstein-Podolsky-Rosen-Bohm Gedankenexperiment: A new violation of Bell's inequalities," Phys. Rev. Lett. **49**(2), 91–94 (1982).

45. W. Tittel, J. Brendel, H. Zbinden, and N. Gisin, "Violation of Bell Inequalities by Photons More Than 10 km Apart," 3563–3566 (1998).

46. J. P. Dowling, G. J. Milburn, P. Trans, and R. S. Lond, "Quantum technology : the second quantum revolution Quantum technology : the second," 1655–1674 (2003).

47. P. W. Shor, "Polynomial-time algorithms for prime factorization and discrete logarithms on a quantum computer," SIAM Rev. **41**(2), 303–332 (1999).

48. P. R. Tapster, J. G. Rarity, and P. C. M. Owens, "Violation of bell's inequality over 4 km of optical fiber," Phys. Rev. Lett. **73**(14), 1923–1926 (1994).

49. D. Bouwmeester, A. Ekert and A. Zeilinger, *The Physics of Quantum Information* (Springer Berlin Heidelberg, 2000).

50. M. Amico, Z. H. Saleem, and M. Kumph, " Experimental study of Shor's factoring algorithm using the IBM Q Experience" Phys. Rev. A **100**(1), 12305 (2019).

51. R. L. Rivest, A. Shamir, and L. Adleman, "A Method for Obtaining Digital Signatures and Public- Key Cryptosystems," **21**(2), (1978).

52. C. E. Shannon, "Communication Theory of Secrecy Systems," Bell Syst. Tech. J. **28**(4), 656–715 (1949).

53. N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, and H. Zbinden, "Quantum cryptography," Rev. Mod. Phys. **74**(1), 145–195 (2002).

54. Ekert A.K., *Quantum Cryptography and Bell's Theorem. In: Tombesi P., Walls D.F. (eds) Quantum Measurements in Optics*. NATO ASI Series (Series B: Physics), vol 282. Springer, Boston, MA. (1992).

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

56. D. S. Naik, C. G. Peterson, A. G. White, A. J. Berglund, and P. G. Kwiat, "Entangled state quantum cryptography: Eavesdropping on the ekert protocol," Phys. Rev. Lett. **84**(20), 4733–4736 (2000).

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

58. A. K. Ekert, "Quantum cryptography based on Bellâs theorem," Phys. Rev. Lett. **67**(6), 661–663 (1991).

59. V. C. Vivoli, P. Sekatski, J. Bancal, C. C. W. Lim, B. G. Christensen, A. Martin, R. T. Thew, H. Zbinden, N. Gisin, and N. Sangouard, "Challenging preconceptions about Bell tests with photon pairs," **012107**, 1–5 (2015).

60. R. Brouri, A. Beveratos, J. Poizat, and P. Grangier, "Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond," **25**(17), 1294–1296 (2000).

61. A. Reiserer, N. Kalb, M. S. Blok, J. Ruitenberg, R. F. L. Vermeulen, B. Hensen, H. Bernien, A. E. Dre, W. Amaya, V. Pruneri, M. W. Mitchell, M. Markham, D. J. Twitchen, D. Elkouss, R. N. Schouten, C. Abella, S. Wehner, T. H. Taminiau, and R. Hanson, "Loophole-free Bell inequality violation using electron spins separated by 1.3 kilometres," *Nature* **526,** 682–686 (2015).

62. S. Barz, G. Cronenberg, A. Zeilinger, and P. Walther, "Heralded generation of entangled photon pairs," Nat. Photonics **4**(8), 553–556 (2010).

63. C. Wagenknecht, C. M. Li, A. Reingruber, X. H. Bao, A. Goebel, Y. A. Chen, Q. Zhang, K. Chen, and J. W. Pan, "Experimental demonstration of a heralded entanglement source," Nat. Photonics **4**(8), 549–552 (2010).

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

65. A. Borne, *Triple photons through third-order nonlinear optics*. Thèse de doctorat de l'Université de Grenoble, 2014.

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

67. J. Douady and B. Boulanger, "Calculation of quadratic cascading contributions associated with a phase-matched cubic frequency difference generation in a KTiOPO4 crystal," J. Opt. A Pure Appl. Opt. **7**(9), 467–471 (2005).

68. A. Dot, A. Borne, B. Boulanger, P. Segonds, C. Félix, K. Bencheikh, and J. A. Levenson, "Energetic and spectral properties of triple photon downconversion in a phase-matched KTiOPO_4 crystal," Opt. Lett. **37**(12), 2334 (2012).

69. B. Dayan, "Theory of two-photon interactions with broadband down-converted light and entangled photons," Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys. **76**(4), 043813 (2007).

70. D. M. Greenberger, M. A. Horne, and A. Zeilinger, "Going Beyond Bell's Theorem," Bell's Theorem, Quantum Theory and Conceptions of the Universe (3), 69–72 (1989).

71. W. Dur, G. Vidal, and J. I. Cirac, "Three qubits can be entangled in two inequivalent ways," Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys. **62**(6), 062314–062311 (2000).

72. A. Acín, D. Bruß, M. Lewenstein, and A. Sanpera, "Classification of mixed three-qubit states," Phys. Rev. Lett. **87**(4), 40401-1-40401–4 (2001).

73. E. A. R. González, A. Borne, B. Boulanger, J. A. Levenson, and K. Bencheikh, "Continuous-Variable Triple-Photon States Quantum Entanglement," Phys. Rev. Lett. **120**(4), 43601 (2018).

74. K. J. Resch, P. Walther, and A. Zeilinger, "Full characterization of a three-photon Greenberger-Horne-Zeilinger state using quantum state tomography," Phys. Rev. Lett. **94**(7), 070402 (2005).

75. E. Wigner, "On the quantum correction for thermodynamic equilibrium," Phys. Rev. **40**(5), 749–759 (1932).

76. L. Mandel and E. Wolf, *Optical Coherence and Quantum Optics* (Cambridge University Press, 1995).

77. U. Leonhardt, *Essential Quantum Optics: From Quantum Measurements to Black Holes* (Cambridge University Press, 2010).

78. H. Bachor and T. C. Ralph, eds., *A Guide to Experiments in Quantum Optics* (Wiley, 2004).

79. V. D'Auria, S. Fornaro, A. Porzio, S. Solimeno, S. Olivares, and M. G. A. Paris, "Full characterization of Gaussian bipartite entangled states by a single homodyne detector," Phys. Rev. Lett. **102**(2), 020502 (2009).

80. D. Bouwmeester, J. W. Pan, M. Bongaerts, and A. Zeilinger, "Observation of three-photon greenberger-horne-zeilinger entanglement," Phys. Rev. Lett. **82**(7), 1345–1349 (1999).

81. J. W. Pan, D. Bouwmeester, M. Daniell, H. Weinfurter, and A. Zellinger, "Experimental test of quantum nonlocality in three-photon Greenberger- Horne-Zeilinger entanglement," Nature **403**(6769), 515–519 (2000).

82. N. Kiesel, M. Bourennane, C. Kurtsiefer, H. Weinfurter, D. Kaszlikowski, W. Laskowski, and M. Zukowski, "Three-photon W-state," J. Mod. Opt. **50**–**6**(7), 1131–1138 (2003).

83. H. Hübel, D. R. Hamel, A. Fedrizzi, S. Ramelow, K. J. Resch, and T. Jennewein, "Direct generation of photon triplets using cascaded photon-pair sources," Nature **466**(7306), 601–603 (2010).

84. L. K. Shalm, D. R. Hamel, Z. Yan, C. Simon, K. J. Resch, and T. Jennewein, "Three-photon energy-time entanglement," Nat. Phys. **9**(1), 19–22 (2013).

85. S. Agne, T. Kauten, J. Jin, E. Meyer-Scott, J. Z. Salvail, D. R. Hamel, K. J. Resch, G. Weihs, and T. Jennewein, "Observation of Genuine Three-Photon Interference," Phys. Rev. Lett. **118**(15), 4–7 (2017).

86. H. Mikami, Y. Li, K. Fukuoka, and T. Kobayashi, "New high-efficiency source of a three-photon W state and its full characterization using quantum state tomography," Phys. Rev. Lett. **95**(15), 2–5 (2005).

87. C. W. S. Chang, C. Sabín, P. Forn-Díaz, F. Quijandría, A. M. Vadiraj, I. Nsanzineza, G. Johansson, and C. M. Wilson, "Observation of Three-Photon Spontaneous Parametric Down-Conversion in a Superconducting Parametric Cavity," Phys. Rev. X **10**(1), 11011 (2020).

88. D. A. Antonosyan, T. V. Gevorgyan, and G. Y. Kryuchkyan, "Three-photon states in nonlinear crystal superlattices," Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys. **83**(4), 1–13 (2011).

89. M. Corona, K. Garay-Palmett, and A. B. U'Ren, "Experimental proposal for the generation of entangled photon triplets by third-order spontaneous parametric downconversion in optical fibers," Opt. Lett. **36**(2), 190 (2011).

90. F. Gravier and B. Boulanger, "Third order frequency generation in TiO2 rutile and KTiOPO4," Opt. Mater. (Amst). **30**(1), 33–36 (2007).

91. A. Borne, T. Katsura, C. Félix, B. Doppagne, P. Segonds, K. Bencheikh, J. A. Levenson, and B. Boulanger, "Anisotropy analysis of third-harmonic generation in a germanium-doped silica optical fiber," Opt. Lett. **40**(6), 982–985 (2015).

92. I. P. Kaminow and J. R. Carruthers, "Optical waveguiding layers in LiNbO3 and LiTaO3," Appl. Phys. Lett. **22**(7), 326–328 (1973).

93. M. N. Armenise, "Fabrication Techniques of Lithium Niobate Waveguides.," IEE proceedings. Part J, Optoelectron. **135**(2), 85–91 (1988).

94. J. L. Jackel, C. E. Rice, and J. J. Veselka, "Proton exchange for high-index waveguides in LiNbO3," Appl. Phys. Lett. **41**(7), 607–608 (1982).

95. K. R. Parameswaran, R. K. Route, J. R. Kurz, R. V. Roussev, M. M. Fejer, and M. Fujimura, "Highly efficient second-harmonic generation in buried waveguides formed by annealed and reverse proton exchange in periodically poled lithium niobate," Opt. Lett. **27**(3), 179 (2002).

96. Y. N. Korkishko, V. A. Fedorov, M. P. De Micheli, P. Baldi, K. El Hadi, and A. Leycuras, "Relationships between structural and optical properties of proton-exchanged waveguides on Z-cut lithium niobate," Appl. Opt. **35**(36), 7056 (1996).

97. M. L. Bortz, L. A. Eyres, and M. M. Fejer, "Depth profiling of the d33 nonlinear coefficient in annealed proton exchanged LiNbO3 waveguides," Appl. Phys. Lett. **62**(17), 2012–2014 (1993).

98. T. Izawa and H. Nakagome, "Optical waveguide formed by electrically induced migration of ions in glass plates," Appl. Phys. Lett. **21**(12), 584–586 (1972).

99. M. L. Shah, "Optical waveguides in LiNbO3 by ion exchange technique," Appl. Phys. Lett. **26**(11), 652–653 (1975).

100. M. Volk, "Optical ridge waveguides in lithium niobate and potassium titanyl phosphate," (2018).

101. J. D. Bierlein, A. Ferretti, L. H. Brixner, and W. Y. Hsu, "Fabrication and characterization of optical waveguides in KTiOPO 4," Appl. Phys. Lett. **50**(18), 1216–1218 (1987).

102. J.-H. Zhao, X.-F. Qin, F.-X. Wang, G. Fu, J. Du, and X.-L. Wang, "Thermal annealing property of $KTiOPO_4$ planar and ridge waveguides formed by mev si ion implantation," Opt. Mater. Express **3**(4), 954–958 (2013).

103. D. Callejo, S. Manotas, M. D. Serrano, V. Bermúdez, F. Agulló-Rueda, and E. Diéguez, "Compositional Study of $LiNbO_3$ Thin Films Grown by Liquid Phase Epitaxy," J. Cryst. Growth **226**(4), 488–492 (2001).

104. Z. Ye, J. He, L. Ye, B. Zhao, W. Weng, and H. Lu, "Highly c-axis oriented $LiNbO_3$ thin film grown on SiO_2/Si substrates by pulsed laser deposition," Mater. Lett. **55**(4), 265–268 (2002).

105. A. A. Wernberg, H. J. Gysling, A. J. Filo, and T. N. Blanton, "Epitaxial growth of lithium niobate thin films from a single-source organometallic precursor using metalorganic chemical vapor deposition," Appl. Phys. Lett. **62**(9), 946–948 (1993).

106. L. Chang, Y. Li, N. Volet, L. Wang, J. Peters, and J. E. Bowers, "Thin film wavelength converters for photonic integrated circuits," Optica **3**(5), 531 (2016).

107. C. Wang, X. Xiong, N. Andrade, V. Venkataraman, X.-F. Ren, G.-C. Guo, and M. Lončar, "Second harmonic generation in nano-structured thin-film lithium niobate waveguides," Opt. Express **25**(6), 6963 (2017).

108. L. Li, W. Nie, Z. Li, Q. Lu, C. Romero, J. R. Vázquez De Aldana, and F. Chen, "All-laser-micromachining of ridge waveguides in LiNbO3crystal for mid-infrared band applications," Sci. Rep. **7**(1), 1–7 (2017).

109. C. Chen, C. E. Rüter, M. F. Volk, C. Chen, Z. Shang, Q. Lu, S. Akhmadaliev, S. Zhou, F. Chen, and D. Kip, "Second harmonic generation of diamond-blade diced KTiOPO4 ridge waveguides," Opt. Express **24**(15), 16434 (2016).

110. R. Takigawa, E. Higurashi, T. Kawanishi, and T. Asano, "Lithium niobate ridged waveguides with smooth vertical sidewalls fabricated by an ultra-precision cutting method," Opt. Express **22**(22), 27733 (2014).

111. R. Kou, S. Kurimura, K. Kikuchi, A. Terasaki, H. Nakajima, K. Kondou, and J. Ichikawa, "High-gain, wide-dynamic-range parametric interaction in Mg-doped LiNbO_3 quasi-phase-matched adhered ridge waveguide," Opt. Express **19**(12), 11867 (2011).

112. S. Kurimura, Y. Kato, M. Maruyama, Y. Usui, and H. Nakajima, "Quasi-phase-matched adhered ridge waveguide in LiNb O3," Appl. Phys. Lett. **89**(19), (2006).

113. M. Chauvet, F. Henrot, F. Bassignot, F. Devaux, L. Gauthier-Manuel, V. Pecheur, H. Maillotte, and B. Dahmani, "High efficiency frequency doubling in fully diced LiNbO3 ridge waveguides on silicon," J. Opt. (United Kingdom) **18**(8), 1–7 (2016).

114. M. F. Volk, C. E. Rüter, and D. Kip, "Rb/Ba side-diffused ridge waveguides in KTP," Opt. Express **25**(17), 19872 (2017).

115. J. D. Bierlein and H. Vanherzeele, "Potassium titanyl phosphate: properties and new applications," J. Opt. Soc. Am. B **6**(4), 622 (1989).

116. F. Bassignot, E. Courjon, G. Ulliac, S. Ballandras, J. M. Lesage, and R. Petit, "Acoustic resonator based on periodically poled transducers: Fabrication and characterization," J. Appl. Phys. **112**(7), (2012).

117. V. Boutou, A. Vernay, C. Felix, F. Bassignot, M. Chauvet, D. Lupinski, and B. Boulanger, "Phase-matched second-harmonic generation in a flux grown KTP crystal ridge optical waveguide," Opt. Lett. **43**(15), 3770–3773 (2018).

118. W. J. Getsinger, "Ridge Waveguide Field Description and Application to Directional Couplers," IRE Trans. Microw. Theory Tech. **10**(1), 41–50 (1962).

119. V. Ramaswamy, "Strip-loaded film waveguide," Bell Syst. Tech. J. **53**(4), 697–704 (1974).

120. B. E. A. Saleh and M. C. Teich, *Fundamentals of Photonics* (John Wiley & sons, 2019).

121. A. W. Snyder, *Optical Waveguide Theory* (Springer, New York, 1983).

122. R. Khakimov, COMSOL Multiphysics® in computational electromagnetic optics course, (2010).

123. B. Boulanger and J.-P. Fève, "Méthodes de caractérisation des propriétés optiques non linéaires de conversion de fréquence des cristaux," Élaboration Caractérisation Des Cris. Massifs En Couches Minces Pour L'Optique **8**, 99–132 (2003).

124. J. Douady and B. Boulanger, "Calculation of quadratic cascading contributions associated with a phase-matched cubic frequency difference generation in a KTiOPO4 crystal," J. Opt. A Pure Appl. Opt. **7**(9), 467–471 (2005).

125. F. Wang, "Precision measurements for propagation properties of high-definition polymer waveguides by imaging of scattered light," Opt. Eng. **47**(2), 024602 (2008).

126. N. Costa and A. Cartaxo, *Advances in Lasers and Electro Optics* (InTech, 2012).

127. R. Paschotta, *Encyclopedia of Laser Physics and Technology* (Wiley Online Library, 2008), **1**.

128. O. A. Louchev and S. Wada, "Numerical model and study of cascaded third harmonic generation in two-sectioned a periodically poled Mg-doped LiTaO 3 structure," J. Appl. Phys. **106**(9), 93106 (2009).

129. S. A. Akhmanov and R. V. Khokhlov, *Problems of nonlinear optics* (New York, Gordon and Breach Science Publishers, 1972).

130. A. P. Sukhorukov and I. V Tomov, "On simultaneous synchronous generation of the second and third harmonics in crystals with a quadratic nonlinearity(Second and third harmonic simultaneous generation in ammonium oxalate crystals achieved by three frequency interactions)," RADIOFIZIKA **13**(2), 266–270 (1970).

131. S. M. Saltiel, A. A. Sukhorukov, and Y. S. Kivshar, "Multistep Parametric Processes in Nonlinear Optics,"Progress in optics **47**, 1-73 (2003).

132. H. Qi, Z. Wang, F. Yu, X. Sun, X. Xu, and X. Zhao, "Cascaded third-harmonic generation with one KDP crystal," Opt. Lett. **41**(24), 5823 (2016).

133. L. Lee, S. Pei, D. Lin, P. Chiu, M. Tsai, T. Tai, D. Sun, A. H. Kung, and S. Huang, "Generation of tunable blue – green light using ZnO periodically poled lithium niobate crystal fiber by self-cascaded second-order nonlinearity," **24**(8), 1909–1915 (2007).

134. C. Zhang, H. Wei, Y.-Y. Zhu, H.-T. Wang, S.-N. Zhu, and N.-B. Ming, "Third-harmonic generation in a general two-component quasi-periodic optical superlattice," Opt. Lett. **26**(12), 899 (2001).

135. J. L. He, J. Liu, G. Z. Luo, Y. L. Jia, J. X. Du, C. S. Guo, and S. N. Zhu, "Blue generation in a periodically poled LiTaO3 by frequency tripling an 1342 nm Nd:YVO4 laser," Chinese Phys. Lett. **19**(7), 944–946 (2002).

136. P. S. Banks, M. D. Feit, and M. D. Perry, "High-intensity third-harmonic generation in beta barium borate through second-order and third-order susceptibilities," Opt. Lett. **24**(1), 4 (1999).

137. S. Longhi, "Third-harmonic generation in quasi-phase-matched chi(2) media with missing second harmonic.," Opt. Lett. **32**(13), 1791–3 (2007).

138. B. W. Shore, "Examples of counter-intuitive physics," Contemp. Phys. **36**(1), 15–28 (1995).

139. D. Shechtman, I. Blech, D. Gratias, and J. W. Cahn, "Metallic phase with long-range orientational order and no translational symmetry," Phys. Rev. Lett. **53**(20), 1951–1953 (1984).

140. S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, and N. Ben Ming, "Quasi-phase-matched third-harmonic generation in a quasi-periodic optical superlattice," Science (80-.). **278**(5339), 843–846 (1997).

141. J. Liao, J. L. He, H. Liu, J. Du, F. Xu, H. T. Wang, S. N. Zhu, Y. Y. Zhu, and N. B. Ming, "Red, yellow, green and blue - Four-color light from a single, aperiodically poled $LiTaO_3$ crystal," Appl. Phys. B Lasers Opt. **78**(3–4), 265–267 (2004).

142. N. G. De Bruijn, "Algebraic theory of Penrose's non-periodic tilings of the plane," Kon. Nederl. Akad. Wetensch. Proc. Ser. A **43**(84), 1–7 (1981).

143. D. A. Rabson, T.-L. Ho, and N. D. Mermin, "Aperiodic tilings with non-symmorphic space groups p 2 j gm," Acta Crystallogr. Sect. A Found. Crystallogr. **44**(5), 678–688 (1988).

144. R. Lifshitz, A. Arie, and A. Bahabad, "Photonic Quasicrystals for Nonlinear Optical Frequency Conversion," **133901**(September), 1–4 (2005).

145. A. Bahabad, N. Voloch, A. Arie, and R. Lifshitz, "Experimental confirmation of the general solution to the multiple-phase-matching problem," J. Opt. Soc. Am. B **24**(8), 1916 (2007).

146. A. H. Norton and C. Martijn de Sterke, "Optimal poling of nonlinear photonic crystals for frequency conversion," Opt. Lett. **28**(3), 188 (2003).

147. A. Vernay, L. Bonnet-Gamard, V. Boutou, S. Trajtenberg-Mills, A. Arie, and B. Boulanger, " High efficiency cascaded third-harmonic generation in a quasi-periodically poled KTiOPO 4 crystal ," OSA Contin. **3**(6), 1536 (2020).

148. K. N. Alekseev and A. V. Ponomarev, "Optical chaos in nonlinear photonic crystals," JETP Lett. **75**(4), 174–178 (2002).

149. G. Ribordy, J.-D. Gautier, H. Zbinden, and N. Gisin, "Performance of InGaAs/InP avalanche photodiodes as gated-mode photon counters," Appl. Opt. **37**(12), 2272–2277 (1998).

150. J. G. Rarity, T. E. Wall, K. D. Ridley, P. C. M. Owens, and P. R. Tapster, "Single-photon counting for the 1300–1600-nm range by use of Peltier-cooled and passively quenched InGaAs avalanche photodiodes," Appl. Opt. **39**(36), 6746–6753 (2000).

151. D. Stucki, G. Ribordy, A. Stefanov, H. Zbinden, J. G. Rarity, and T. Wall, "Photon counting for quantum key distribution with peltier cooled InGaAs/InP APDs," J. Mod. Opt. **48**(13), 1967–1981 (2001).

152. D. Gottesman, A. Kitaev, and J. Preskill, "Encoding a qubit in an oscillator," Phys. Rev. A. At. Mol. Opt. Phys. **64**(1), 123101–1231021 (2001).

153. F. Marsili, V. B. Verma, J. A. Stern, S. Harrington, A. E. Lita, T. Gerrits, I. Vayshenker, B. Baek, M. D. Shaw, R. P. Mirin, and S. W. Nam, "Detecting single infrared photons with 93% system efficiency," Nat. Photonics **7**(3), 210–214 (2013).

154. H. Shibata, K. Shimizu, H. Takesue, and Y. Tokura, "Ultimate low system dark-count rate for superconducting nanowire single-photon detector," Opt. Lett. **40**(14), 3428–3431 (2015).

155. A. Vetter, S. Ferrari, P. Rath, R. Alaee, O. Kahl, V. Kovalyuk, S. Diewald, G. N. Goltsman, A. Korneev, C. Rockstuhl, and W. H. P. Pernice, "Cavity-Enhanced and Ultrafast Superconducting Single-Photon Detectors," Nano Lett. **16**(11), 7085–7092 (2016).

156. M. Caloz, M. Perrenoud, C. Autebert, B. Korzh, M. Weiss, C. Schönenberger, R. J. Warburton, H. Zbinden, and F. Bussières, "High-detection efficiency and low-timing jitter with amorphous superconducting nanowire single-photon detectors," Appl. Phys. Lett. **112**(6), 61103 (2018).

157. M. Caloz, B. Korzh, E. Ramirez, C. Schönenberger, R. J. Warburton, H. Zbinden, M. D. Shaw, and F. Bussières, "Intrinsically-limited timing jitter in molybdenum silicide superconducting nanowire single-photon detectors," J. Appl. Phys. **126**(16), 164501 (2019).

158. C. Cahall, K. L. Nicolich, N. T. Islam, G. P. Lafyatis, A. J. Miller, D. J. Gauthier, and J. Kim, "Multi-photon detection using a conventional superconducting nanowire single-photon detector," Optica **4**(12), 1534–1535 (2017).

159. E. A. Dauler, M. E. Grein, A. J. Kerman, F. Marsili, S. Miki, S. W. Nam, M. D. Shaw, H. Terai, V. B. Verma, and T. Yamashita, "Review of superconducting nanowire single-photon detector system design options and demonstrated performance," Opt. Eng. **53**(8), 1–13 (2014).

160. L. R. Testardi, "Destruction of Superconductivity by Laser Light," Phys. Rev. B **4**(7), 2189–2196 (1971).

161. G. N. Gol’tsman, O. Okunev, G. Chulkova, A. Lipatov, A. Semenov, K. Smirnov, B. Voronov, A. Dzardanov, C. Williams, and R. Sobolewski, "Picosecond superconducting single-photon optical detector," Appl. Phys. Lett. **79**(6), 705–707 (2001).

162. C. M. Natarajan, M. G. Tanner, and R. H. Hadfield, "Superconducting nanowire single-photon detectors: physics and applications," Supercond. Sci. Technol. **25**(6), 63001 (2012).

163. C. Autebert, G. Gras, E. Amri, M. Perrenoud, M. Caloz, H. Zbinden, and F. Bussières, "Direct measurement of the recovery time of superconducting nanowire single-photon detectors," J. Appl. Phys. **128**(7), 74504 (2020).

164. D. Bosworth, S.-L. Sahonta, R. H. Hadfield, and Z. H. Barber, "Amorphous molybdenum silicon superconducting thin films," AIP Adv. **5**(8), 87106 (2015).

165. A. Banerjee, L. J. Baker, A. Doye, M. Nord, R. M. Heath, K. Erotokritou, D. Bosworth, Z. H. Barber, I. MacLaren, and R. H. Hadfield, "Characterisation of amorphous molybdenum silicide (MoSi) superconducting thin films and nanowires," Supercond. Sci. Technol. **30**(8), 84010 (2017).

166. M. Caloz, B. Korzh, N. Timoney, M. Weiss, S. Gariglio, R. J. Warburton, C. Schönenberger, J. Renema, H. Zbinden, and F. Bussières, "Optically probing the detection mechanism in a molybdenum silicide superconducting nanowire single-photon detector," Appl. Phys. Lett. **110**(8), 83106 (2017).

Résumé

Le travail réalisé au cours de cette thèse est centré sur la conception et la caractérisation de générateurs de triplets de photons par processus optiques non linéaires. Ces triplets forment un nouvel état de la lumière où les trois photons peuvent être intriqués et conduire à des protocoles d'information quantique efficaces. Les travaux pionniers de l'équipe ont porté sur un générateur de triplets en accord de phase par biréfringence basé sur un cristal massif en régime bi-stimulé. L'objectif aujourd'hui est de tendre vers le régime spontané. Deux nouvelles technologies ont alors été considérées : d'une part les guides d'onde monocristallins en accord de phase et taillés en arête, et d'autre part les cristaux à domaines ferroélectriques inversés quasi-périodiquement pour une cascade de processus en quasi-accord de phase. La caractérisation optique non linéaire complète de tels dispositifs a été réalisée.

Mots-clés

Triplets de Photons – Génération de Troisième Harmonique – Optique non linéaire – Etats Intriqués – Optique Quantique.

Summary

The work carried out during this thesis is focused on the design and characterization of photon triplet generators by nonlinear optical processes. These triplets form a new state of light where the three photons can be entangled and lead to efficient quantum information protocols. The pioneering work of the team were focused on a birefringent phase-matching triplet generator based on a bulk crystal in the bi-stimulated regime. The current objective is to move towards the spontaneous regime. Two new technologies were thus considered: on the one hand, single-crystal ridge waveguides for birefringent phase-matching, and on the other hand, quasi-periodically poled crystals for a cascade of 2 quasi-phase matched processes. The complete nonlinear optical characterization of such devices has been performed.

Key-Words

Photon Triplets – Third-Harmonic Generation – Nonlinear Optics – Entangled States – Quantum Optics