



HAL
open science

Introduction à l'Optique Non Linéaire

Frédéric Bernardot

► **To cite this version:**

| Frédéric Bernardot. Introduction à l'Optique Non Linéaire. Master / M1. 2004. sfo-00407290

HAL Id: sfo-00407290

<https://hal-sfo.ccsd.cnrs.fr/sfo-00407290>

Submitted on 24 Jul 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université Paris–7
U.F.R. de Physique

Maîtrise de physique
2003-2004

INTRODUCTION À
L'OPTIQUE NON LINÉAIRE

F. Bernardot

INTRODUCTION À L'OPTIQUE NON LINÉAIRE

La possibilité de non-linéarités dans l'interaction entre le champ électromagnétique et la matière atomique, a été envisagée théoriquement dès la fin des années 1920.⁽¹⁾ Si des effets non linéaires ont été observés dans le domaine des ondes centimétriques dans les années 1950, de tels effets apparaissant dans l'interaction lumière-matière n'ont formé un domaine d'étude nouveau qu'à partir de l'invention du laser⁽²⁾ en 1960. À partir de 1962, le corpus théorique de cette discipline est mis en place.⁽³⁾ Ensuite, en une vingtaine d'années tout au plus, l'essentiel des manipulations non linéaires de la lumière ont été réalisées de manière contrôlée. Depuis lors, outre des expériences très spécifiques de laboratoire, l'Optique Non Linéaire est utilisée de façon usuelle dans les manipulations instrumentales des faisceaux laser, pour créer des sommes ou des différences de fréquences optiques par exemple.

Ce cours est une initiation au domaine de l'Optique Non Linéaire. Son propos est de présenter précisément les mécanismes de ses phénomènes les plus courants, de la façon la plus simple possible. Les faisceaux lumineux sont continus (*i.e.* non pulsés) ; la matière est décrite classiquement par sa densité de polarisation, prenant naissance sous l'influence de la lumière.

Après de brefs rappels d'électromagnétisme dans la matière et d'Optique linéaire, le chapitre I aborde la nouveauté essentielle de la théorie de l'Optique Non Linéaire : lorsque le champ électrique optique est intense, la densité de polarisation du milieu doit être développée au-delà de l'ordre un en champ. Les susceptibilités non linéaires d'ordres deux et trois sont introduites. Finalement, est dérivée l'équation d'onde non linéaire suivie par le champ électrique optique. Pour la simplicité de l'exposé à venir, une version scalaire de cette équation d'onde non linéaire est également présentée, accompagnée d'une configuration expérimentale dans laquelle elle se justifie.

Le chapitre II est une première présentation de phénomènes optiques non linéaires, dans un régime où ils ne sont simplement qu'une perturbation à l'Optique linéaire. Sont exposés des effets non linéaires d'ordre deux – génération de second harmonique, conversion de fréquences optiques – et d'ordre trois – effet Kerr optique, mélange à quatre ondes. Sur l'exemple de la génération de second harmonique, est mise en évidence la nécessité que soit réalisée une condition d'accord de phase pour que l'effet non linéaire en question se révèle.

Afin de dépasser le cadre perturbatif précédent pour décrire les phénomènes optiques non linéaires, le chapitre III présente la théorie d'ondes couplées de l'Optique Non Linéaire, dans laquelle les faisceaux optiques, initiaux et générés, sont en interaction forte. Dans cette nouvelle description, sont revisités les phénomènes de génération de second harmonique, de conversion de fréquences optiques, et de mélange à quatre ondes. Est également exposé le fonctionnement d'un oscillateur paramétrique optique, système permettant d'obtenir un faisceau de fréquence optique accordable à partir d'un faisceau intense de fréquence fixe.

L'importance de la réalisation d'un accord de phase a été signalée au chapitre II ; sa réalisation effective dans un milieu anisotrope uniaxial est examinée au chapitre IV, où l'équation d'onde non linéaire complète, vectorielle, est utilisée. Après quelques rappels d'Optique linéaire dans un milieu anisotrope, les conditions de réalisation de l'accord de phase sont détaillées sur l'exemple de la génération de second harmonique. Le cas de la conversion de fréquences optiques est également présenté. On observe en outre, notablement, que les équations régissant l'évolution des ondes optiques en interaction sont celles qui ont déjà été obtenues dans le cadre de la théorie scalaire utilisée au chapitre précédent.

(1) Par Paul Dirac (1902-1984), prix Nobel 1933, et par Maria Goeppert-Mayer (1906-1972), prix Nobel 1963.

(2) La configuration d'un laser a été inventée par Gordon Gould (1920-2005) en 1957. Le premier laser, un laser à rubis (émettant à 694 nm), a été l'œuvre de Theodore Maiman (né en 1927) en 1960.

(3) En large partie grâce aux travaux de Nicolaas Bloembergen (né en 1920), prix Nobel 1981.

INTRODUCTION À L'OPTIQUE NON LINÉAIRE

I – Milieux non linéaires	I - 1
1) Rappels : champ électromagnétique dans la matière	I - 1
2) Rappels : milieux optiques linéaires	I - 2
3) Milieux optiques non linéaires	I - 4
4) Propriétés de symétrie des susceptibilités	I - 6
5) Équation d'onde non linéaire	I - 9
Annexe I :	AI - 1
1) Ordres de grandeur des susceptibilités non linéaires	AI - 1
2) Dispersion	AI - 1
II – Approximation de Born	II - 1
A) Milieux non linéaires d'ordre deux	II - 3
1) Génération de second harmonique	II - 3
2) Conversion de fréquence	II - 8
B) Milieux non linéaires d'ordre trois	II - 12
1) Effet Kerr optique	II - 12
2) Introduction au mélange à quatre ondes	II - 15
Annexe II : compléments sur l'accord de phase	AII - 1
1) Accord de phase pour la génération de second harmonique	AII - 1
2) Quasi-accord de phase	AII - 2
III – Théorie d'ondes couplées	III - 1
A) Génération de second harmonique	III - 2
1) Ondes couplées	III - 2
2) Relation de Manley-Rowe	III - 5
3) Solution à l'accord de phase	III - 7
4) Effet d'un désaccord de phase	III - 9
B) Mélange à trois ondes	III - 10
1) Conversion de fréquence	III - 12
2) Amplification paramétrique	III - 14
3) Oscillateur paramétrique	III - 17
C) Mélange à quatre ondes	III - 21
1) Ondes couplées	III - 21
2) Conjugaison de phase optique	III - 23
IV – Réalisation de l'accord de phase	IV - 1
A) Rappels d'Optique anisotrope	IV - 2
1) Milieux anisotropes	IV - 2
2) Milieux anisotropes uniaxiaux	IV - 4
B) Génération de second harmonique	IV - 5
1) Accord de phase de type I	IV - 5
2) Équations d'ondes couplées (accord de phase de type I)	IV - 7
3) Accord de phase de type II	IV - 11
4) Équations d'ondes couplées pour l'accord de phase de type II	IV - 14
5) Accord de phase vectoriel	IV - 15
C) Mélange à trois ondes	IV - 16
1) Accord de phase	IV - 16
2) Équations d'ondes couplées	IV - 18
Annexe IV : Optique non linéaire en milieu dispersif	AIV - 1
1) Densités de polarisation linéaire et non linéaire	AIV - 2
2) Équation d'onde non linéaire dispersive	AIV - 3
3) Génération de second harmonique en milieu dispersif	AIV - 4

BRÈVE BIBLIOGRAPHIE

- Saleh, Teich *Fundamentals of Photonics* (Wiley, 1991)
- Courtois *Optique Non Linéaire*
in : *Les Lasers et leurs Applications*
Scientifiques et Médicales (EDP Sciences, 2002)
(accessible librement sur <http://www.bibsciences.org>)
- Yariv, Yeh *Optical Waves in Crystals* (Wiley, 1984)
- Baldwin *An Introduction to Nonlinear Optics* (Plenum Press, 1969)
- Boyd *Nonlinear Optics* (Academic Press, 1992)
- Sanchez *Optique Non Linéaire* (Ellipses, 1999)
- Bergmann, Schaefer *Optics of Waves and Particles* (de Gruyter, 1999)
- Sauter *Nonlinear Optics* (Wiley, 1996)

Ouvrages plus avancés :

- Bloembergen *Nonlinear Optics* (Benjamin, 1965)
- Shen *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley, 1984)
- Zernike, Midwinter *Applied Nonlinear Optics* (Wiley, 1973)
- Schubert, Wilhelmi *Nonlinear Optics and Quantum Electronics* (Wiley, 1986)

INTRODUCTION À L'OPTIQUE NON LINÉAIRE

I - Milieux non linéaires

1) Rappels : champ électromagnétique dans la matière

Un champ électromagnétique dans un milieu matériel peut être décrit par une théorie où les champs pertinents (champs électrique \vec{E} et magnétique \vec{B} , densités de charge et de courant, ^{densité de} polarisation, ...) sont des moyennes spatiales des champs microscopiques correspondants, qui présentent des fluctuations à l'échelle atomique ou moléculaire. Ces moyennes, qui font disparaître ces fluctuations, sont prises sur un volume de matière grand à l'échelle atomique. Cette description macroscopique des propriétés électromagnétiques de la matière, traitée comme un milieu continu, suffit pour étudier la propagation d'ondes tant que leur longueur d'onde reste grande devant les dimensions atomiques ou moléculaires ; cette condition est largement vérifiée dans le domaine optique.

Dans le cadre de cette théorie, on s'intéresse au champ électromagnétique qui peut régner dans un milieu diélectrique (isolant), non chargé et non magnétique. L'évolution spatio-temporelle du champ électromagnétique $\{ \vec{E}(\vec{r}, t), \vec{B}(\vec{r}, t) \}$ dans un tel milieu, est régie par les équations de

Maxwell suivantes :

$$\text{rot } \vec{E} = - \frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$$

$$\text{div } \vec{E} = \frac{\rho_p}{\epsilon_0}$$

$$\text{div } \vec{B} = 0$$

$$\text{rot } \vec{B} = \mu_0 \vec{J}_p + \frac{1}{c^2} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t},$$

où les sources du champ électromagnétique sont les densités de charge de polarisation $\rho_p = -\text{div } \vec{P}$ et de courant ^{de polarisation} $\vec{J}_p = \frac{\partial \vec{P}}{\partial t}$; $\vec{P}(\vec{r}, t)$ est la densité de polarisation de la matière, c'est-à-dire la densité volumique de moments dipolaires électriques. Ces équations, néanmoins, ne suffisent pas pour déterminer le champ électromagnétique $\{\vec{E}(\vec{r}, t), \vec{B}(\vec{r}, t)\}$ car la ^{densité de} polarisation $\vec{P}(\vec{r}, t)$ n'est pas une fonction donnée a priori, mais elle dépend de $\vec{E}(\vec{r}, t)$ et représente la réponse de la matière au champ électromagnétique qu'elle subit. ^(*)

2) Rappels : milieux optiques linéaires

a) Dans un milieu linéaire et homogène, la ^{densité de} polarisation $\vec{P}(\vec{r}, t)$ est liée au champ électrique par

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \underline{\chi} \cdot \vec{E}(\vec{r}, t),$$

où $\underline{\chi}$ est la susceptibilité linéaire du milieu. C'est un tenseur de rang 2,

représenté par une matrice 3×3 symétrique, d'éléments χ_{ij} , dans un repère

cartésien (x, y, z) donné ($i, j = x$ ou y ou z). On peut écrire la relation

précédente en faisant intervenir les composantes cartésiennes dans ce repère:

(*) La relation de $\vec{P}(\vec{r}, t)$ à $\vec{E}(\vec{r}, t)$ caractérise le milieu, du point de vue électromagnétique.

$$P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \sum_{j=1}^3 \chi_{ij} E_j(\vec{r}, t), \quad i=1, 2 \text{ ou } 3,$$

avec les correspondances $1 \leftrightarrow x$, $2 \leftrightarrow y$, $3 \leftrightarrow z$.

Dans le cas d'un milieu non seulement linéaire et homogène mais aussi ^(du point de vue électromagnétique) isotrope, la susceptibilité est scalaire, $\chi_{ij} = \chi \delta_{ij}$, et l'expression de la densité de polarisation en fonction du champ électrique est une relation de proportionnalité entre vecteurs: $P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi E_i(\vec{r}, t)$, $i=1, 2 \text{ ou } 3$.

Dans un tel milieu peuvent se propager des ondes électromagnétiques planes monochromatiques, de pulsation ω , dont le champ électrique est $\vec{E}(\vec{r}, t) = \text{Re}(\vec{E}_0(\vec{r}, t))$

avec $\vec{E}_0(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 e^{i(\omega t - n \frac{\omega}{c} \hat{u} \cdot \vec{r})}$ (\hat{u} est le vecteur unitaire suivant

la propagation); l'indice de réfraction^(*) n est lié à la susceptibilité χ

par $n^2 = 1 + \chi$.^(>1) Le champ électrique est transverse: $\hat{u} \cdot \vec{E}_0 = 0$.

b) L'hypothèse de linéarité du milieu optique traversé par la lumière, a des conséquences importantes:

— Le champ électromagnétique suit le principe de superposition (si deux champs peuvent se propager dans le milieu, alors il en est de même de toute combinaison linéaire de ces champs).

— L'indice de réfraction du milieu est indépendant de l'intensité de la lumière.

(*) Dans un milieu anisotrope, il y a un indice de réfraction pour chacun des deux modes de propagation.

- La polarisation de la lumière est inchangée lorsqu'elle traverse le milieu.
- Deux faisceaux de lumière dans la même région d'un milieu linéaire, n'interagissent pas entre eux, et se propagent comme si l'autre était absent du milieu; c'est une conséquence du principe de superposition.

3) Milieux optiques non linéaires

a) L'approximation linéaire pour exprimer la polarisation en fonction du champ électrique, est excellente pour décrire l'interaction d'un milieu matériel avec un rayonnement d'amplitude faible, tel que celui émis par des sources optiques classiques. Cependant, elle cesse d'être valable lorsqu'on utilise un rayonnement intense tel que celui ^{qui peut être} produit par des lasers. Depuis leur invention en 1960, des phénomènes non linéaires ont été observés, révélant des propriétés ^{optiques} nouvelles dans un milieu matériel sous forte intensité lumineuse :

- Le principe de superposition est violé.
- L'indice de réfraction, et donc la vitesse de la lumière dans un milieu, varie avec l'intensité lumineuse.
- La lumière peut changer de polarisation, et passer du rouge au bleu par exemple, lorsqu'elle traverse un milieu non linéaire.
- Deux faisceaux de lumière peuvent interagir dans un milieu matériel.

Lorsque l'on parle d'« Optique non linéaire », la propriété de non-linéarité concerne le milieu traversé par la lumière, et non la lumière elle-même.

Aucun phénomène non linéaire ne peut apparaître quand la lumière se propage dans l'espace libre; lorsque deux faisceaux interagissent dans un milieu optique, c'est qu'un faisceau explore le milieu alors qu'il est modifié par l'autre: la lumière interagit avec la lumière par l'intermédiaire du milieu.

b) Pour décrire un milieu non linéaire, on se place sous l'hypothèse que les non-linéarités restent faibles, et la ^{densité de} polarisation $\vec{P}(\vec{r}, t)$ est développée aux ordres successifs en champ électrique $\vec{E}(\vec{r}, t)$ ($i = 1$ ou 2 ou 3):

$$P_i = \epsilon_0 \sum_j \chi_{ij} E_j + 2 \sum_{j,k} d_{ijk} E_j E_k + 4 \sum_{j,k,l} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots$$

Dans cette expression^(*), le premier terme, linéaire (avec $\epsilon_0 \chi_{ij} = \left. \frac{\partial P_i}{\partial E_j} \right|_{\vec{E}=0}$), domine pour les faibles champs électriques. Le deuxième terme fait intervenir les produits de deux composants du champ électrique (avec $4d_{ijk} = \left. \frac{\partial^2 P_i}{\partial E_j \partial E_k} \right|_{\vec{E}=0}$) et représente une non-linéarité d'ordre 2. Le troisième terme (où $24\chi_{ijkl}^{(3)} = \left. \frac{\partial^3 P_i}{\partial E_j \partial E_k \partial E_l} \right|_{\vec{E}=0}$) décrit une non-linéarité d'ordre 3. Il n'est pas utile, usuellement, de poursuivre le développement aux ordres supérieurs. Ainsi, un milieu non linéaire est caractérisé par sa susceptibilité linéaire $[\chi_{ij}]$, sa susceptibilité non linéaire d'ordre

(*) On écrit aussi $P_i = \epsilon_0 \left(\sum_j \chi_{ij} E_j + \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \sum_{j,k,l} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \right)$.

deux $[d_{ijk}]$ et sa susceptibilité non linéaire d'ordre trois $[\chi_{ijkl}^{(3)}]$.

c) Dans les milieux centrosymétriques^(*), il n'y a pas de non-linéarité d'ordre deux : $d_{ijk} = 0$. En effet, les milieux centrosymétriques ont une structure cristalline invariante par la transformation $x \rightarrow -x, y \rightarrow -y, z \rightarrow -z$ (on dit que ces milieux possèdent une symétrie d'inversion), et le principe de Curie-Neumann impose que leurs propriétés physiques aient cette symétrie ; en particulier, le renversement du champ électrique \vec{E} doit produire celui de la ^{densité de} polarisation \vec{P} , ce qui n'est possible que si le terme d'ordre deux dans le développement précédent de P_i est nul. L'ordre le plus bas de non-linéarité dans les milieux centrosymétriques est donc l'ordre 3.

Dans les milieux non centrosymétriques, il existe ^{en général} une non-linéarité d'ordre 2 (une seule classe cristalline non centrosymétrique fait exception, cf. p. I-8).

4) Propriétés de symétrie des susceptibilités

Les susceptibilités linéaire $[\chi_{ij}]$ et non linéaires $[d_{ijk}]$ et $[\chi_{ijkl}^{(3)}]$ sont des tenseurs, de rang 2, 3 et 4 respectivement. À première vue, on peut craindre une inflation ingérable du nombre de paramètres à connaître pour caractériser un milieu optique non linéaire ; en effet, $[\chi_{ij}]$ possède a priori $3^2 = 9$ éléments,

(*) C'est le cas de 11 classes cristallines (sur 32).

$[d_{ijk}]$ en a $3^3 = 27$ et $[\chi_{ijkl}^{(3)}]$, $3^4 = 81$ (!). Heureusement, les propriétés de symétrie des susceptibilités réduisent notablement le nombre d'éléments non nuls et indépendants de ces tenseurs.

a) (Rappels) La susceptibilité linéaire $[\chi_{ij}]$ est symétrique : $\chi_{ij} = \chi_{ji}$. Elle est diagonale dans le repère cartésien de ses axes principaux. Les trois éléments diagonaux sont alors différents deux à deux pour un cristal anisotrope biaxial; pour un cristal anisotrope uniaxial, deux éléments diagonaux sont identiques et différents du troisième. Pour un cristal appartenant au système cubique, $[\chi_{ij}]$ est isotrope : $\chi_{ij} = \chi \delta_{ij}$.

b) La susceptibilité non linéaire d'ordre deux $[d_{ijk}]$ possède une symétrie intrinsèque : $d_{ijk} = d_{ikj}$ (cf. l'expression de d_{ijk} au § 3.b). D'emblée, le nombre d'éléments indépendants est ainsi réduit à 18; ces éléments sont notés d_J , où $J = 1, 2, \dots, 6$ remplace les indices j, k avec les correspondances suivantes :
 $j, k = 1, 1 \leftrightarrow J = 1$; $2, 2 \leftrightarrow 2$; $3, 3 \leftrightarrow 3$; $2, 3$ ou $3, 2 \leftrightarrow 4$; $3, 1$ ou $1, 3 \leftrightarrow 5$;
 $1, 2$ ou $2, 1 \leftrightarrow 6$.

Lorsque les pulsations lumineuses en jeu sont très éloignées de toutes les pulsations de résonances du milieu, optiques, les d_{ijk} sont indépendants des pulsations lumineuses et la réponse non linéaire $\sum_{j,k} 2d_{ijk} E_j(\vec{r}, t) E_k(\vec{r}, t)$ est instantanée (on se place sous cette hypothèse dans ce cours). Dans ces conditions,

Les éléments d_{ijk} sont invariants par toute permutation des ^{trois} indices i, j, k (symétrie de Kleinman). Cette symétrie fait passer de 18 à 10 le nombre d'éléments d_{ij} indépendants.

Ce nombre diminue encore par la prise en compte des symétries cristallines du milieu optique ; plus le degré de symétrie du cristal est grand, plus le nombre d'éléments d_{ij} non nuls et indépendants est faible : ce nombre va ainsi de 10, pour la classe cristalline la moins symétrique (classe 1, triclinique), à ... zéro pour un cristal cubique de classe $432^{(*)}$.

c) Les remarques qui viennent d'être faites sur $[d_{ijk}]$ s'appliquent aussi à la susceptibilité non linéaire d'ordre trois $[\chi_{ijkl}^{(3)}]$. D'après son expression ve au § 3-b, $\chi_{ijkl}^{(3)}$ est invariant par une permutation quelconque des indices j, k, l ; cette propriété réduit le nombre d'éléments indépendants à 30. Lorsque la symétrie de Kleinman s'applique (cristaux optiques très éloignés de toutes les pulsations de résonances du matériau), les $\chi_{ijkl}^{(3)}$ sont invariants par toute permutation des quatre indices i, j, k, l , et le nombre d'éléments indépendants tombe à 15. Les symétries cristallines du milieu réduisent encore le nombre d'éléments non nuls et indépendants, jusqu'à 2 pour un cristal cubique et 1

(*) Bien que non centrosymétrique, un tel cristal ne montre donc pas de non-linéarité d'ordre 2.

seulement pour un milieu structurellement isotrope (un fluide, par exemple).

5) Équation d'onde non linéaire

1) Pour étudier les effets des non-linéarités optiques d'un milieu sur la propagation d'un champ électromagnétique $\{\vec{E}, \vec{B}\}$ en son sein, on cherche l'équation que suit le champ électrique $\vec{E}(\vec{r}, t)$. Celle-ci s'obtient en développant $\vec{\text{rot}}(\vec{\text{rot}} \vec{E})$ à l'aide des équations de Maxwell dans le milieu, voir au § 1 ;

il vient : $\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} - \Delta \vec{E} + \vec{\text{grad}}(\text{div} \vec{E}) = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2}$. (Le champ de

vecteur $\Delta \vec{V}$ est défini par $\Delta \vec{V} = \vec{\text{grad}}(\text{div} \vec{V}) - \vec{\text{rot}}(\vec{\text{rot}} \vec{V})$; ses composantes

cartésiennes sont $(\Delta \vec{V})_i = \Delta V_i = \frac{\partial^2 V_i}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 V_i}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 V_i}{\partial z^2}$, $i = 1, 2, 3$.)

Dans la suite, une onde électromagnétique se propageant dans un milieu non linéaire, sera cherchée sous la forme d'une somme d'ondes planes transverses :

$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_{\alpha} \vec{E}_{0\alpha} e^{i(\omega_{\alpha} t - \vec{k}_{\alpha} \cdot \vec{r})}$ avec $\vec{k}_{\alpha} \cdot \vec{E}_{0\alpha} = 0$. On a alors $\text{div} \vec{E} = 0$, et

le troisième terme du membre de gauche de l'équation précédente disparaît.

Cette démarche est une approximation : d'après l'une des équations de Maxwell (cf. § 1),

c'est $\text{div}(\epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}) = 0$ qui est exacte, ce qui n'implique $\text{div} \vec{E} = 0$ que dans le

cas d'un milieu linéaire, homogène et isotrope^(*). Cependant, il s'avère que

le terme $\vec{\text{grad}}(\text{div} \vec{E})$ est usuellement négligeable en optique non linéaire ;

(*) En particulier, une onde plane progressive dans un milieu linéaire anisotrope n'a pas son champ électrique transverse, en général.

on admet ^{ici} d'emblée la chose, ce qui permet de simplifier l'équation

d'onde non linéaire et les discussions qui s'ensuivront (cf. pp. II-8 et II-9).

En séparant la ^{densité de} polarisation en parties linéaire et non linéaire :

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \underline{\chi} \cdot \vec{E}(\vec{r}, t) + \vec{P}_{NL}(\vec{r}, t)$$

$$\text{où } P_{NLi} = 2 \sum_{j,k} d_{ijk} E_j E_k + 4 \sum_{j,k,l} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l,$$

l'équation d'onde suivie par le champ électrique d'une onde lumineuse

dans un milieu non linéaire, prend la forme :

$$\frac{1}{c^2} \underline{\epsilon}_r \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} - \Delta \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2},$$

où $\underline{\epsilon}_r = \mathbb{1} + \underline{\chi}$ est le tenseur de permittivité relative du milieu. Il s'agit d'une

équation d'onde, dans laquelle le terme $-\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2}$ est une source de rayonne-

ment dans un milieu linéaire caractérisé par le tenseur diélectrique $\underline{\epsilon}_r$. Puisque

la partie non linéaire \vec{P}_{NL} de la ^{densité de} polarisation du milieu est une fonction non linéaire

du champ électrique \vec{E} , on a affaire à une équation aux dérivées partielles non

linéaire en $\vec{E}(\vec{r}, t)$. Cette équation fondamentale sous-tend la théorie de

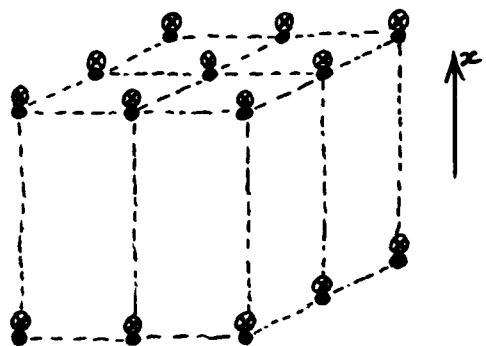
l'optique non linéaire.

↳ Afin de porter l'attention sur les effets principaux provenant des non-linéarités

optiques d'un milieu matériel, on manipulera dans un premier temps une version

scalaire de l'équation d'onde non linéaire. Pour cela, on se placera dans

le cas particulier d'un cristal suffisamment symétrique pour admettre un axe z suivant lequel la densité de polarisation et le champ électrique sont alignés :



$$\text{si } \vec{E} = E_0 \hat{z}, \text{ alors } \vec{P} = P_0 \hat{z},$$

$$\text{avec } P = \epsilon_0 \chi E + P_{NL}$$

$$\text{et } P_{NL} = 2d E^2 + 4\chi^{(3)} E^3.$$

Alors, si l'on suppose un champ électrique

purement aligné avec l'axe z du cristal, et en utilisant la notation $n = \sqrt{1 + \chi}$,

il vient l'équation d'onde non linéaire suivante :

$$\frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} - \Delta E = -\mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}.$$

La situation physique particulière qui vient d'être décrite, a donc l'intérêt de faire disparaître toute question liée à la biréfringence du milieu et à la polarisation de la lumière, tout en conservant le caractère non linéaire du matériau. On s'appuiera dans la suite sur l'équation d'onde non linéaire ci-dessus suivie par le champ scalaire $E(\vec{r}, t)$, pour découvrir quelques phénomènes d'optique non linéaire, dans une théorie d'abord élémentaire (§II) puis plus élaborée (§III). La partie IV effectuera un retour sur l'équation d'onde non linéaire la plus générale, voir au paragraphe a.

Annexe au chapitre I

1) Ordres de grandeur des susceptibilités non linéaires

a) Dans les matériaux utilisés en Optique non linéaire, la susceptibilité non linéaire d'ordre deux vaut $d \sim 10^{-24}$ à 10^{-21} S.I. La densité de polarisation d'ordre deux $2dE^2$ atteint 1% de la densité de polarisation linéaire $\epsilon_0 \chi E$ lorsque $E = 0,01 \times \frac{\epsilon_0}{2d} \approx 40 \text{ MV/cm}$

($d \sim 10^{-23}$ S.I. et $\chi \sim 1$); l'intensité lumineuse correspondante est $I = \frac{n}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} E^2 \approx 3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$. (*)

b) Pour les milieux non linéaires d'ordre trois, $\chi^{(3)} \sim 10^{-34}$ à 10^{-29} S.I. en pratique. La densité de polarisation non linéaire d'ordre trois $4\chi^{(3)} E^3$ vaut 1% de la densité de polarisation linéaire $\epsilon_0 \chi E$ pour $E = \left(0,01 \times \frac{\epsilon_0}{4\chi^{(3)}}\right)^{1/2} \approx 50 \text{ MV/cm}$ ($\chi^{(3)} \sim 10^{-33}$ S.I.).

2) Dispersion

a) Dans un milieu linéaire et homogène, la relation entre la densité de polarisation $\vec{P}(\vec{r}, t)$ et le champ électrique $\vec{E}(\vec{r}, t)$ est, en général: $P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \sum_j \int dt' R_{ij}(t-t') E_j(\vec{r}, t')$, où $[R_{ij}(t)]$ est la fonction de réponse (réelle) du milieu; par causalité, $R_{ij}(t < 0) = 0$.

Si le champ électrique est celui d'une onde plane progressive monochromatique:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \Re\{ \vec{E}(\vec{r}, t) \} \text{ avec } \vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})}, \text{ alors } \vec{P}(\vec{r}, t) = \Re\{ \vec{P}(\vec{r}, t) \}$$

avec $P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \sum_j \chi_{ij}(\omega) E_j(\vec{r}, t)$, où la susceptibilité complexe $[\chi_{ij}(\omega)]$ est la

transformée de Fourier de $[R_{ij}(t)]$: $\chi_{ij}(\omega) = \int dt R_{ij}(t) e^{-i\omega t}$. La partie

(*) Une telle intensité lumineuse s'obtient, par exemple, en focalisant un faisceau laser de 100 kW sur une tache de $3 \mu\text{m}^2$.

imaginaire de $\chi_{ij}(\omega)$ est liée à l'absorption du matériau; en pratique, la pulsation optique ω est choisie loin de toute résonance du milieu, afin que l'absorption de la lumière soit négligeable sur l'épaisseur traversée. La dépendance en ω de la partie réelle de $\chi_{ij}(\omega)$, qui est faible en dehors des résonances, fait que les constantes diélectriques principales du milieu⁽⁺⁾, ainsi que les indices de réfraction propres⁽⁺⁾ d'une onde plane progressive monochromatique, dépendent de la pulsation optique ω : c'est le phénomène de dispersion.

↳ Si l'on néglige tout à fait la dispersion, on pose $\chi_{ij}(\omega) = \chi_{ij} =$ constante réelle indépendante de ω . Alors la fonction de réponse vaut $R_{ij}(t) = \int \frac{d\omega}{2\pi} \chi_{ij} e^{i\omega t} = \chi_{ij} \delta(t)$, et il vient donc^(*) $P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi_{ij} E_j(\vec{r}, t)$: la réponse est instantanée. C'est cette dernière relation qui a été écrite au § 2-a, ainsi que sa version dans un milieu isotrope. Cependant, la dispersion sur l'indice de réfraction a des effets physiques notables en optique non linéaire (cf. § II-A-1-b), et on ne peut pas la négliger pour décrire des phénomènes réels (cf. annexe du chapitre II, et chap. IV).

Au contraire, on considérera dans ce cours que les réponses non linéaires d'ordres deux et trois sont instantanées: $P_{NLi}(\vec{r}, t) = 2 d_{ijk} E_j(\vec{r}, t) E_k(\vec{r}, t) + 4 \chi_{ijl}^{(3)} E_j(\vec{r}, t) E_k(\vec{r}, t) E_l(\vec{r}, t)$, la dispersion sur la ^{densité de} polarisation non linéaire n'amenant ^{pas} d'effet physique notable.

(*) Notation simplifiée: $\alpha_{ij} \beta_j = \sum_j \alpha_{ij} \beta_j$.

(+) Cf. § IV-A-1.

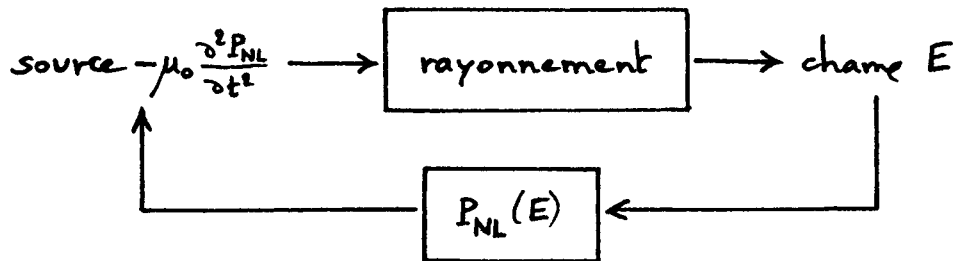
II - Approximation de Born

Un champ électromagnétique se propage dans un milieu non linéaire. En adoptant la description scalaire qui vient d'être présentée (§ I-5-b), son champ électrique $E(\vec{r}, t)$ suit l'équation d'onde non linéaire

$$\frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} - \Delta E = -\mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2},$$

où $P_{NL} = 2dE^2 + 4\chi^{(3)}E^3$ est la partie non linéaire de la ^{densité de} polarisation du milieu ; n est son indice de réfraction, d et $\chi^{(3)}$ ses susceptibilités ^{d'ordre deux} ^{non linéaires} et trois, respectivement.

La source $-\mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}$ qui apparaît dans cette équation d'onde est une fonction du champ E qu'elle crée elle-même. Le système d'équations qui régit le champ comporte ainsi une boucle de rétroaction, pour employer le vocabulaire de l'Électronique ; on peut concrétiser cette situation à l'aide du schéma simple suivant :



Si un champ $E^{(0)}$ est imposé dans le milieu par une source extérieure, il est possible de trouver le champ E solution de l'équation d'onde non linéaire

par une méthode itérative approchée. $E^{(0)}$ crée la ^{densité de,} polarisation non linéaire

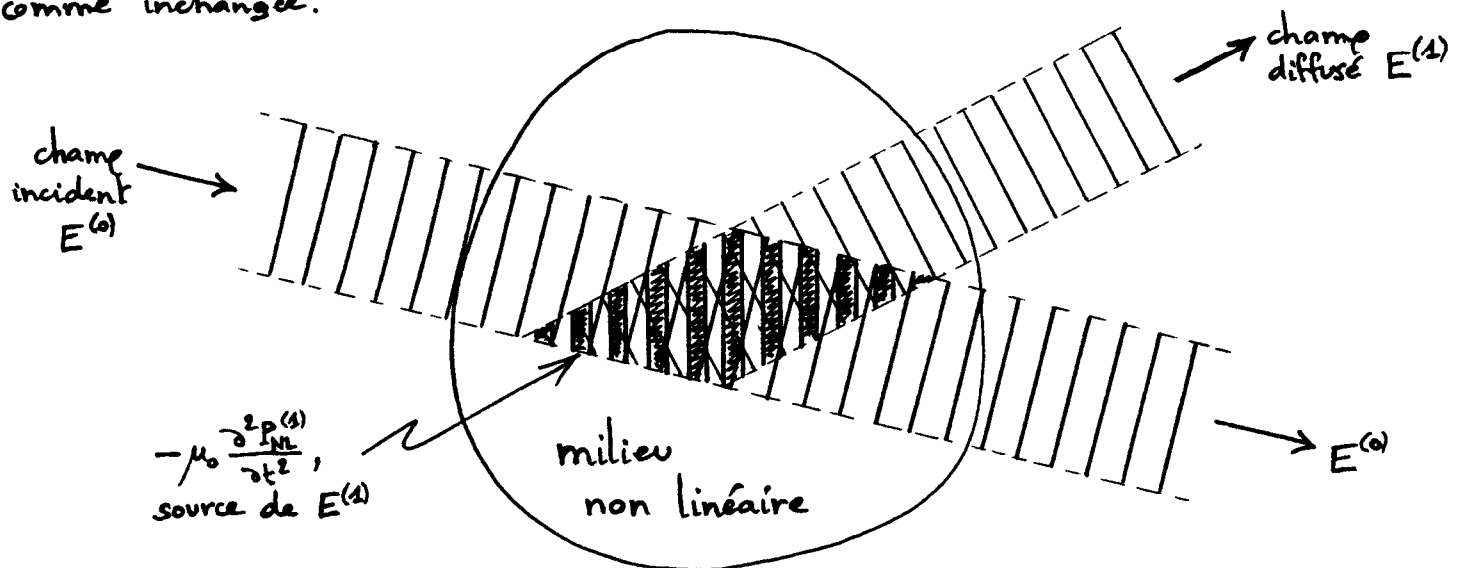
$$P_{NL}^{(1)} = P_{NL}(E^{(0)}) = 2dE^{(0)2} + 4\chi^{(3)}E^{(0)3}, \text{ et la source } -\mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}^{(1)}}{\partial t^2} \text{ rayonne le}$$

champ $E^{(1)}$; ce stade du processus itératif constitue la première approximation de

Born. La deuxième approximation de Born consiste en une itération supplémentaire,

mettant en jeu la ^{densité de,} polarisation $P_{NL}^{(2)} = P_{NL}(E^{(0)} + E^{(1)})$ et la source de rayonnement correspondante $-\mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}^{(2)}}{\partial t^2}$. Et ainsi de suite.

On se limitera dans ce chapitre à la première approximation de Born, utile lorsque les intensités lumineuses sont suffisamment faibles pour que les non-linéarités du milieu le soient aussi. Dans ce cadre, la propagation de la lumière incidente $E^{(0)}$ au travers d'un milieu non linéaire produit une lumière diffusée $E^{(1)}$; l'intensité lumineuse diffusée est faible, et celle de la lumière incidente peut être considérée comme inchangée.



Le champ initial $E^{(0)}$ sera supposé contenir une ou plusieurs ondes monochromatiques de

différentes pulsations. Puisque la source $-\mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}^{(2)}}{\partial t^2}$ est une fonction non linéaire de $E^{(0)}$, de nouvelles pulsations sont créées; cette source rayonne donc un champ optique $E^{(2)}$ qui contient des pulsations qui n'étaient pas présentes dans le champ initial $E^{(0)}$. Cela conduit à plusieurs phénomènes intéressants, qui sont utilement mis en œuvre dans des dispositifs d'optique non linéaire.

A) Milieux non linéaires d'ordre deux

Ce paragraphe est consacré aux propriétés optiques des milieux non linéaires d'ordre deux. Dans ces milieux, la ^{densité de} polarisation non linéaire s'écrit

$$P_{NL} = 2d E^2,$$

toute contribution d'ordre strictement supérieur à deux étant négligée.

1) Génération de second harmonique

a) Une onde optique monochromatique est envoyée dans un tel milieu; son champ électrique ^(*) est $E^{(0)}(\vec{r}, t) = \Re \{ \mathcal{E}^\omega(\vec{r}) e^{i\omega t} \} = \frac{1}{2} \mathcal{E}^\omega(\vec{r}) e^{i\omega t} + \frac{1}{2} \mathcal{E}^\omega(\vec{r})^* e^{-i\omega t}$,

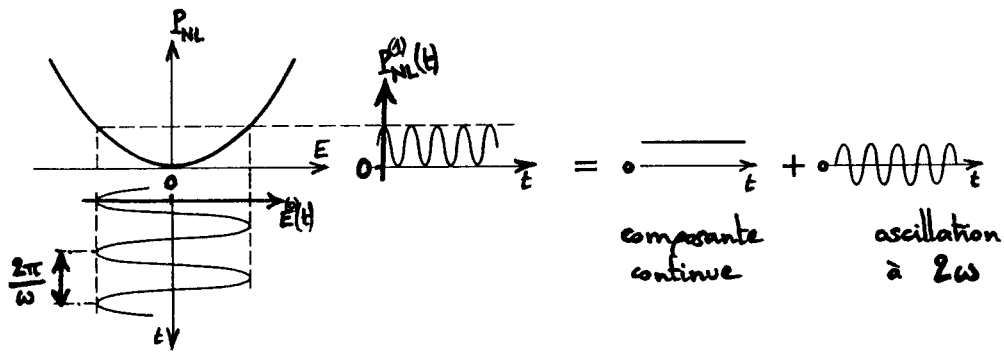
où la pulsation ω correspond à la longueur d'onde $\lambda_0 = \frac{2\pi c}{\omega}$ dans l'espace libre. La ^{densité de} polarisation non linéaire correspondante, $P_{NL}^{(2)}(\vec{r}, t) = 2d E^{(0)}(\vec{r}, t)^2$, vaut

$$P_{NL}^{(2)}(\vec{r}, t) = P_{NL}^0(\vec{r}) + \Re \{ \mathcal{P}_{NL}^{2\omega}(\vec{r}) e^{i2\omega t} \}$$

$$\text{où } P_{NL}^0(\vec{r}) = d |\mathcal{E}^\omega(\vec{r})|^2, \quad \mathcal{P}_{NL}^{2\omega}(\vec{r}) = d (\mathcal{E}^\omega(\vec{r}))^2.$$

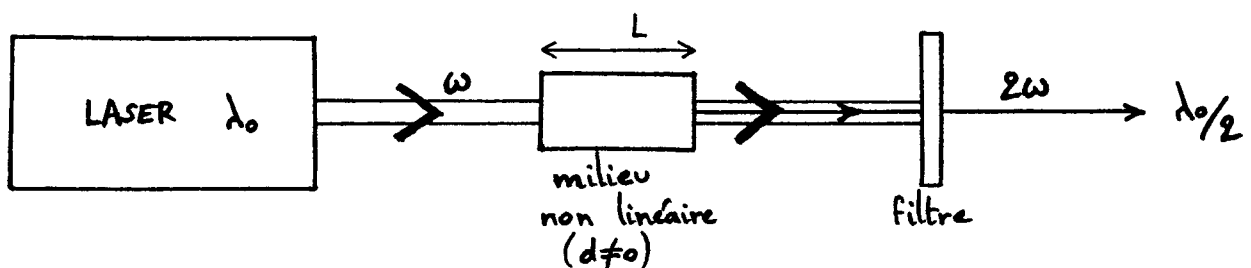
(*) La présence de non-linéarités impose de manipuler des ondes réelles.

Le processus de création de la ^{densité de} polarisation non linéaire $P_{NL}^{(2)}(\vec{r}, t)$ est illustré ci-dessous :



On ne s'attardera pas sur la composante statique $P_{NL}^{(2)}(\vec{r})$ de la ^{densité de} polarisation non linéaire, qui décrit un phénomène de rectification optique. Un champ électrique statique est ainsi créé dans le milieu non linéaire sous éclaircissement intense.

La composante à 2ω de $P_{NL}^{(2)}(\vec{r}, t)$ produit une source de rayonnement à cette même pulsation : $-\mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}^{(2)}}{\partial t^2} = \text{Dve} \left\{ \mu_0 (2\omega)^2 \mathcal{P}_{NL}^{(2)}(\vec{r}) e^{i2\omega t} \right\}$, et la lumière rayonnée est donc à la pulsation 2ω , c'est-à-dire de longueur d'onde $\lambda_0/2$ (dans l'espace libre). Par exemple, il est ainsi possible de produire de la lumière à 347 nm (UV) avec le faisceau rouge à 694 nm d'un laser à Rubis, ou encore de la lumière à 532 nm ^(vert) avec le faisceau à 1064 nm (IR) d'un laser Nd:YAG, ^{et ce} dans une configuration expérimentale simple :



b) Cependant, l'onde lumineuse à 2ω n'est pas nécessairement générée, même si la source de rayonnement à cette pulsation est bien produite par l'onde lumineuse initiale. En effet, pour que la lumière de second harmonique soit créée, il faut qu'une condition supplémentaire soit remplie, comme le montre le calcul suivant.

L'onde initiale est supposée être une onde plane progressive; en appelant z la direction de propagation de cette onde, on a: $\mathcal{E}^\omega(\mathbf{z}) = \mathcal{E}_0^\omega e^{-ik_2 z}$, $k_2 = n \frac{\omega}{c}$.

Sachant que la solution de $\frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial t^2} - \Delta \Psi = \rho(\vec{r}, t)$ qui est générée par la source ρ est $\Psi(\vec{r}, t) = \frac{1}{4\pi} \int d^3 r' \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \rho(\vec{r}', t - \frac{n}{c} |\vec{r} - \vec{r}'|)$, on peut écrire l'onde lumineuse de second harmonique sous la forme $\mathcal{E}^{2\omega}(\vec{r}, t)$, avec

$$\mathcal{E}^{2\omega}(\vec{r}, t) = \frac{1}{4\pi} \int d^3 r' \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \mu_0 (2\omega)^2 d(\mathcal{E}_0^\omega e^{-ik_2 z})^2 e^{i(2\omega t - k_2 |\vec{r} - \vec{r}'|)};$$

$k_2 = n \frac{(2\omega)}{c}$ est le nombre d'onde à la pulsation 2ω , dans le milieu. (x', y', z') sont

les coordonnées cartésiennes de \vec{r}' , et (x, y, z) celles de \vec{r} . L'intégration sur x' et y'

s'effectue en faisant intervenir les coordonnées polaires e', θ' : $x' = x + e' \cos \theta'$,

$y' = y + e' \sin \theta'$ ($0 < e' < \infty$, $0 < \theta' < 2\pi$), avec lesquelles $d^3 r' = e' de' d\theta' dz'$ et

$|\vec{r} - \vec{r}'| = \sqrt{e'^2 + (z - z')^2}$. Le résultat obtenu ne dépend spatialement que de z :

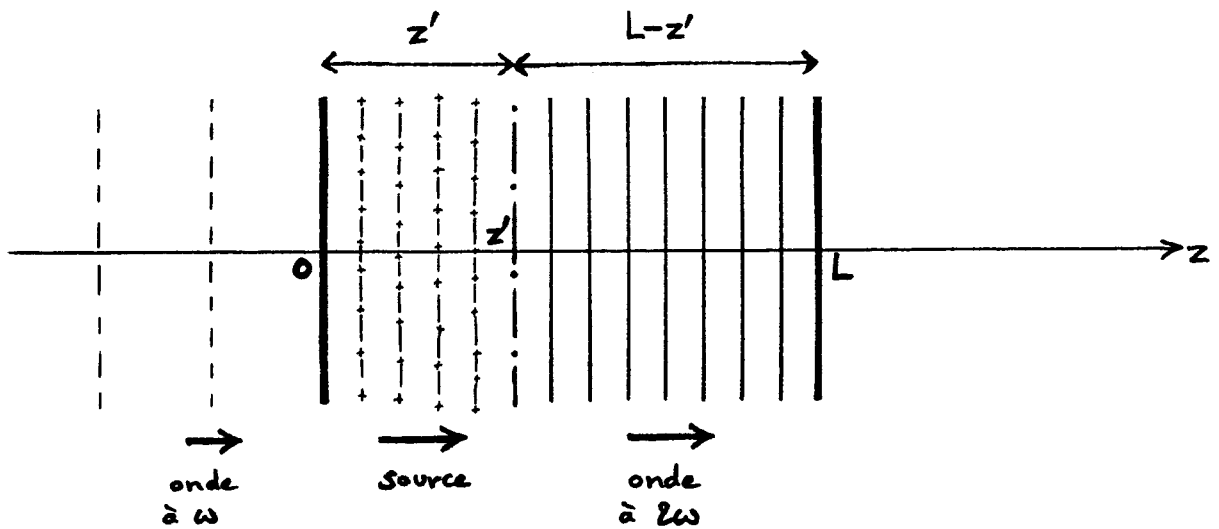
$\mathcal{E}^{2\omega}(z, t) = \mathcal{E}^{2\omega}(z) e^{i2\omega t}$, et l'on a en sortie d'un milieu non linéaire d'épaisseur

L , compris entre $z=0$ et $z=L$:

(*) La source à 2ω , $\mathcal{E}^{2\omega}(\mathbf{z}) = \frac{1}{4\pi} \int d^3 r' \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \mu_0 (2\omega)^2 d(\mathcal{E}_0^\omega)^2 e^{i(2\omega t - 2k_2 z)}$, possède alors le nombre d'onde $2k_2$.

$$E^{2\omega}(z=L) = \frac{2\mu_0\omega^2 d}{ik_2} \left(\frac{1}{\epsilon_0}\omega\right)^2 \int_0^L dz' e^{-i2k_1 z'} e^{-ik_2(L-z')}.$$

L'intégrale ci-dessus possède une interprétation physique claire: il s'agit d'une somme sur tous les processus qui génèrent une onde optique à 2ω à la sortie du milieu. Dans un processus donné, la source de rayonnement crée une onde de second harmonique en z' avec une phase $2k_1 z'$ (par rapport à $z=0$), et l'onde créée se propage sur une distance $L-z'$ en se déphasant de $k_2(L-z')$; le facteur de



phase associé à ce processus est donc $e^{-i2k_1 z'} e^{-ik_2(L-z')} = e^{-ik_2 L} e^{i(k_2 - 2k_1)z'}$.

Pour donner en $z=L$ une onde d'amplitude non négligeable, les contributions de tous les processus doivent s'additionner en phase, ce qui est réalisé si

$$k_2 = 2k_1.$$

Cette condition est la relation d'accord de phase pour la génération de second harmonique. Si l'on se réfère aux expressions de k_1 et k_2 de la page précédente, cette relation semble automatiquement vérifiée; en fait, un milieu

matériel réel est dispersif : son indice de réfraction n^ω dépend de la pulsation optique ($n^{2\omega} > n^\omega$, en général), et la relation d'accord de phase précédente, qui s'écrit $n^{2\omega} = n^\omega$, est impossible à satisfaire. En pratique, cet accord de phase est le plus souvent réalisé en tirant profit de la biréfringence d'un milieu anisotrope (cf. § IV).

c) La relation d'accord de phase étant supposée satisfaite, l'onde lumineuse à 2ω vaut $\mathcal{E}^{2\omega}(z > L) = \frac{2\mu_0 \omega^2 d}{ik_2} (\mathcal{E}_0^\omega)^2 L e^{-ik_2 L} \times e^{-i\frac{2\omega}{c}(z-L)}$ et

a une intensité
$$I^{2\omega} = 2 \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{3/2} \frac{d^2}{n^3} L^2 \omega^2 (I^\omega)^2.$$

(On a utilisé l'expression $I = \frac{n}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\mathcal{E}_0|^2$ de l'intensité lumineuse (W/m^2)

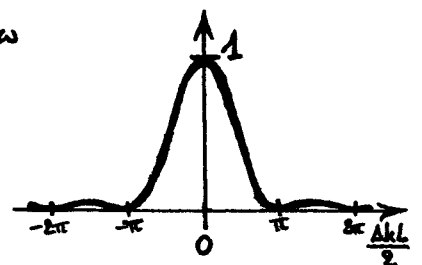
d'une onde électromagnétique de champ électrique $\mathcal{E}_0 e^{i(\omega t - \frac{n\omega}{c}z)} \hat{e}$ ($\hat{e} \cdot \hat{u}_z = 0$).

L'intensité de la lumière de second harmonique varie donc comme le carré de l'intensité de l'onde incidente, ce qui est la trace d'un processus non linéaire d'ordre deux. En outre, on voit que c'est le facteur $\frac{d^2}{n^3}$ qui caractérise l'efficacité du milieu pour la génération de second harmonique. (*)

Lorsque la condition d'accord de phase n'est pas exactement vérifiée, il est facile de montrer que l'expression précédente de $I^{2\omega}$

est multipliée par $\left(\frac{\sin \frac{\Delta k L}{2}}{\frac{\Delta k L}{2}} \right)^2$, où $\Delta k = k_2 - 2k_1$. Ce

facteur correctif est représenté ci-contre ; on voit donc



(*) Avec $d = 10^{-23}$ s.i., $n = 2$, $L = 1$ cm, $\lambda_0 = 1 \mu\text{m}$, il vient $\frac{I^{2\omega}}{I^\omega} \approx 10\%$ si $I^\omega = 20 \text{ MW/cm}^2$.

que l'accord de phase est réalisé lorsque $|\Delta k| \lesssim \frac{1}{L}$. Ainsi, plus l'épaisseur L du milieu est grande, plus $\Gamma^{2\omega}$ est grande ($\Gamma^{2\omega} \propto L^2$), mais plus la plage d'accord de phase est étroite.

2) Conversion de fréquence

a) On considère maintenant le cas où le champ optique envoyé dans le milieu est formé de deux ondes monochromatiques de pulsations ω_1 et ω_2 :

$$\begin{aligned} E^{(e)}(\vec{r}, t) &= \Re e \left\{ \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) e^{i\omega_1 t} + \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) e^{i\omega_2 t} \right\} \\ &= \sum_{q=1,2} \left(\frac{\mathcal{E}^{\omega_q}(\vec{r})}{2} e^{i\omega_q t} + \frac{\mathcal{E}^{\omega_q}(\vec{r})^*}{2} e^{-i\omega_q t} \right). \end{aligned}$$

La ^{densité de} polarisation non linéaire $P_{NL}^{(e)}(\vec{r}, t) = 2d E^{(e)}(\vec{r}, t)^2$ produite par ce champ contient ^{les} cinq pulsations $0, 2\omega_1, 2\omega_2, \omega_+ = \omega_1 + \omega_2$ et $\omega_- = \omega_1 - \omega_2$:

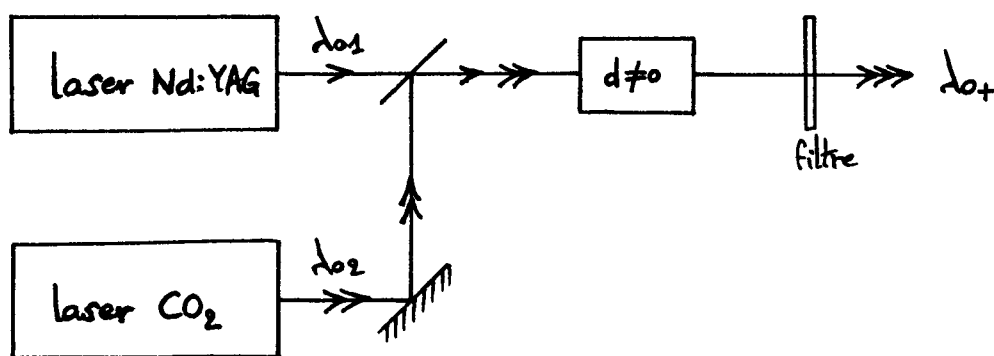
$$\begin{aligned} P_{NL}^{(e)}(\vec{r}, t) &= P_{NL}^0(\vec{r}) + \Re e \left\{ \mathcal{P}_{NL}^{2\omega_1}(\vec{r}) e^{i2\omega_1 t} \right\} + \Re e \left\{ \mathcal{P}_{NL}^{2\omega_2}(\vec{r}) e^{i2\omega_2 t} \right\} \\ &+ \Re e \left\{ \mathcal{P}_{NL}^{\omega_+}(\vec{r}) e^{i\omega_+ t} \right\} + \Re e \left\{ \mathcal{P}_{NL}^{\omega_-}(\vec{r}) e^{i\omega_- t} \right\}, \end{aligned}$$

$$\text{où } \left\{ \begin{aligned} P_{NL}^0(\vec{r}) &= d \left(|\mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r})|^2 + |\mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r})|^2 \right) \\ \mathcal{P}_{NL}^{2\omega_1}(\vec{r}) &= d \left(\mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) \right)^2 \\ \mathcal{P}_{NL}^{2\omega_2}(\vec{r}) &= d \left(\mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) \right)^2 \\ \mathcal{P}_{NL}^{\omega_+}(\vec{r}) &= 2d \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) \\ \mathcal{P}_{NL}^{\omega_-}(\vec{r}) &= 2d \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r})^* \end{aligned} \right.$$

(On suppose $\omega_1 > \omega_2$.)

Les composantes de $P_{NL}^{(A)}(\vec{r}, t)$ aux pulsations 0 , $2\omega_1$ et $2\omega_2$ correspondent à la superposition des réponses du milieu aux deux ondes monochromatiques agissant séparément sur le milieu non linéaire (cf. § 1-a); les composantes à $\omega_+ = \omega_1 + \omega_2$ et à $\omega_- = \omega_1 - \omega_2$ font apparaître l'effet combiné des deux ondes monochromatiques sur le milieu.

Les pulsations ω_{\pm} sont également présentes dans la source de rayonnement $-\mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}^{(A)}}{\partial t^2}$, et le milieu peut donc générer, dans ces conditions, une onde optique à la pulsation somme $\omega_+ = \omega_1 + \omega_2$ ("up-conversion") ou une onde à la pulsation différence $\omega_- = \omega_1 - \omega_2$ ("down-conversion"). Par exemple, la génération de pulsation somme avec les faisceaux à $\lambda_{01} = 1,064 \mu\text{m}$ (IR) d'un laser Nd:YAG et à $\lambda_{02} = 10,6 \mu\text{m}$ (IR lointain) d'un laser CO_2 , produit un faisceau à $\lambda_{0+} = 0,97 \mu\text{m}$ ($\frac{1}{\lambda_{0+}} = \frac{1}{\lambda_{01}} + \frac{1}{\lambda_{02}}$):



b) La génération par le milieu d'une onde optique à la pulsation somme $\omega_+ = \omega_1 + \omega_2$ a lieu lorsque la relation d'accord de phase correspondante

est vérifiée. Cette relation se déduit de la manière suivante. Les ondes optiques initiales étant supposées être des ondes planes progressives :

$$\mathcal{E}^{\omega_q}(\vec{r}) = \mathcal{E}_0^{\omega_q} e^{-i\vec{k}_q \cdot \vec{r}} \quad \text{avec} \quad |\vec{k}_q| = n \frac{\omega_q}{c}$$

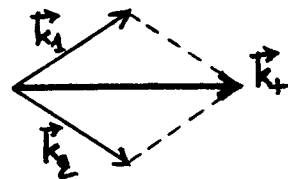
($q=1,2$), la composante à ω_+ de la source de rayonnement $-\mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}^{(\omega)}}{\partial t^2}$ est :

$$\mu_0 \omega_+^2 \mathcal{P}_{NL}^{(\omega_+)}(\vec{r}) e^{i\omega_+ t} = 2 \mu_0 \omega_+^2 \mathcal{E}_0^{\omega_1} \mathcal{E}_0^{\omega_2} e^{i(\omega_+ t - [\vec{k}_1 + \vec{k}_2] \cdot \vec{r})}. \quad \text{Une onde plane progressive}$$

$\mathcal{E}_0^{\omega_+} e^{i(\omega_+ t - \vec{k}_+ \cdot \vec{r})}$ à cette même pulsation n'est alors rayonnée ^{dans le milieu,} que si son

vecteur d'onde est égal à celui de la source, soit :

$$\vec{k}_+ = \vec{k}_1 + \vec{k}_2.$$



Cette égalité est la relation d'accord de phase pour la génération de pulsation somme ; elle assure que l'onde produite et la source de rayonnement ont une différence de phase constante, indépendante du temps et de l'espace.*

Si les trois ondes se propagent dans la même direction, la relation d'accord de phase précédente prend la forme scalaire : $n \frac{\omega_+}{c} = n \frac{\omega_1}{c} + n \frac{\omega_2}{c}$, équation automatiquement satisfaite puisque $\omega_+ = \omega_1 + \omega_2$. Cependant, tout milieu matériel est en réalité dispersif, et la relation d'accord de phase en question s'écrit plus exactement :

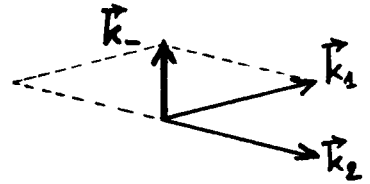
$$n^{\omega_+} \omega_+ = n^{\omega_1} \omega_1 + n^{\omega_2} \omega_2.$$

Le contrôle précis des indices de réfraction est réalisé le plus souvent par la

(*) Le même type de conclusion a été trouvé au § 1.b pour la génération de second harmonique. (Il est possible d'adapter la démarche alors employée au cas de la génération de pulsation somme.)

sélection des polarisations des ondes et de leurs directions ^{de propagation} dans un cristal anisotrope (cf. § II).

c) Si l'on s'intéresse à la génération de pulsation différence $\omega_- = \omega_1 - \omega_2$, le même raisonnement que précédemment conduit à la relation d'accord de phase associée : $\vec{k}_- = \vec{k}_1 - \vec{k}_2$.



On remarque alors qu'une onde de pulsation

somme $\omega_+ = \omega_1 + \omega_2$ générée par deux ondes aux pulsations ω_1 et ω_2 ,

$\vec{k}_+ = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$ étant supposée vérifiée, interagit avec l'onde à ω_1

pour créer une onde à la pulsation $\omega_+ - \omega_1 = \omega_2$, puisque la

condition d'accord de phase correspondante, $\vec{k}_2 = \vec{k}_+ - \vec{k}_1$, est remplie. De

même, l'onde à ω_+ se combine avec celle à ω_2 pour rayonner à la

pulsation $\omega_+ - \omega_2 = \omega_1$. Les trois ondes ont ainsi des couplages mutuels par

lesquels deux ondes ^{quelconques} interagissent pour contribuer à la troisième. Ce processus est

appelé mélange à trois ondes ; on dit aussi que les trois ondes sont en

interaction paramétrique. La description de ce phénomène sort du cadre de la

première approximation de Born fixée pour ce chapitre ; elle sera abordée au § III.

d) Lorsque la conversion de fréquence optique reste faible, la procédure du § 1-b permet de calculer les intensités des ondes à ω_+ ou à ω_- . On trouve, à l'accord de phase :

$$I^{\omega_{\pm}} = 2 \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{3/2} \frac{d^2}{n^3} L^2 \omega_{\pm}^2 I^{\omega_1} I^{\omega_2}.$$

B) Milieux non linéaires d'ordre trois

Dans un milieu dont la susceptibilité non linéaire d'ordre deux est nulle ($d=0$), la non-linéarité dominante est d'ordre trois, et la ^{densité de} polarisation non linéaire prend la forme :

$$P_{NL} = 4\chi^{(3)} E^3.$$

Ce paragraphe décrit quelques propriétés d'un tel milieu optique non linéaire.

1) Effet Kerr optique

a) Une onde optique monochromatique $E^{(0)}(\vec{r}, t) = \mathcal{P}e\{E^{(0)}(\vec{r}) e^{i\omega t}\}$ étant créée dans le milieu par une source extérieure, la ^{densité de} polarisation non linéaire associée

vaut

$$P_{NL}^{(0)}(\vec{r}, t) = \mathcal{P}e\{P_{NL}^{(0)\omega}(\vec{r}) e^{i\omega t}\} + \mathcal{P}e\{P_{NL}^{(0)3\omega}(\vec{r}) e^{i3\omega t}\}$$

$$\text{où } \begin{cases} P_{NL}^{(0)\omega}(\vec{r}) = 3\chi^{(3)} |E^{(0)}(\vec{r})|^2 E^{(0)}(\vec{r}) \\ P_{NL}^{(0)3\omega}(\vec{r}) = \chi^{(3)} (E^{(0)}(\vec{r}))^3 \end{cases}$$

La présence d'une composante de la ^{densité de} polarisation à la pulsation 3ω indique la possibilité de génération d'une onde optique de troisième harmonique (à condition que la relation d'accord de phase correspondante soit vérifiée). Cependant, la conversion $\omega \rightarrow 3\omega$ possède un taux $\frac{I_{3\omega}}{I_{\omega}}$ généralement très faible, et la génération de troisième harmonique est rarement utilisée en pratique.

La composante de la ^{densité de} polarisation non linéaire à ω correspond à un accroissement $\Delta\chi$ de la susceptibilité linéaire à cette pulsation, donné par

$$\epsilon_0 \Delta\chi = \frac{\mathcal{P}_{NL}^{\omega}(\vec{r})}{\mathcal{E}^{\omega}(\vec{r})} = 3\chi^{(3)} |\mathcal{E}^{\omega}(\vec{r})|^2.$$

L'indice de réfraction n du milieu étant relié à la susceptibilité linéaire χ par $n^2 = 1 + \chi$, cet accroissement de χ est équivalent à une variation de n d'une quantité $\Delta n = \frac{\Delta\chi}{2n}$, soit

$$\Delta n = \frac{3\chi^{(3)}}{2\epsilon_0 n} |\mathcal{E}^{\omega}(\vec{r})|^2.$$

Cet effet est connu sous le nom d'effet Kerr optique^(*), du fait de sa similitude avec l'effet Kerr électro-optique (dans lequel la variation d'indice Δn est proportionnelle au carré d'un champ électrique statique appliqué). Un milieu non linéaire d'ordre trois est aussi appelé un milieu Kerr.

b) L'effet Kerr optique a deux implications importantes, dans la situation où une onde propagante est présente dans le milieu. Lorsque l'onde optique imposée dans le milieu est une onde plane progressive, $\mathcal{E}^{\omega}(\vec{r}) = \mathcal{E}_0^{\omega} e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}}$ et

l'indice de réfraction s'écrit

$$n(\mathcal{I}) = n + n_2 \mathcal{I} \quad , \quad n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{\epsilon_0 n^2} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} ,$$

où $\mathcal{I} = \frac{n}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\mathcal{E}_0^{\omega}|^2$ est l'intensité (W/m^2) de l'onde progressive. La

vitesse de phase de cette onde, $\frac{c}{n(\mathcal{I})} = \frac{c}{n + n_2 \mathcal{I}}$, dépend donc de son intensité.

Le déphasage φ de l'onde optique entre deux plans d'onde distants de L , vaut alors $\varphi = \frac{\omega}{c} n(\mathcal{I}) L$, soit :

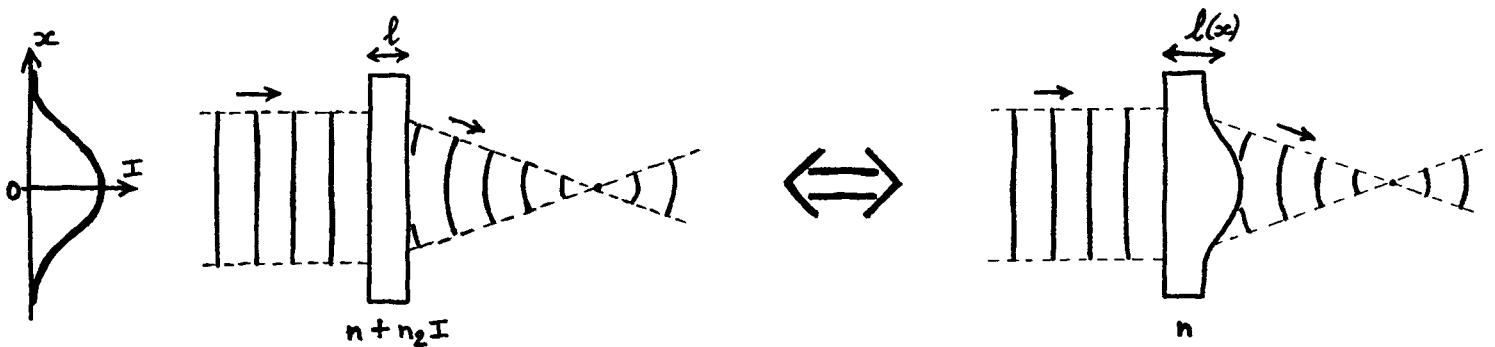
(*) L'effet Kerr optique n'est pas restreint au cadre de la première approximation de Born.

$$\varphi = \frac{2\pi}{\lambda_0} nL + \frac{2\pi n_2 L}{\lambda_0} I ;$$

φ est ainsi modifié d'une quantité proportionnelle à l'intensité de l'onde.

Ce phénomène est appelé auto-modulation de phase.

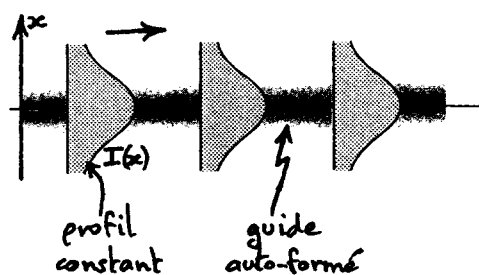
Un autre phénomène intéressant associé à l'effet Kerr optique est l'auto-focalisation d'un faisceau se propageant dans un milieu non linéaire d'ordre trois. Si une onde optique intense est transmise au travers d'une mince tranche d'un milieu Kerr, elle en sort focalisée. On comprend la chose en



constatant que le facteur de transmission de la lame non linéaire d'épaisseur uniforme l , $e^{-in(I)l} = e^{-i(n+n_2I)l}$, est équivalent à celui d'une lame linéaire dont l'épaisseur $l(x) = \frac{n+n_2I(x)}{n} l$ suit le profil d'intensité du faisceau incident : une telle lame plan-convexe est une lentille convergente.

Lorsqu'un faisceau lumineux intense se propage sur une grande épaisseur d'un milieu Kerr, le profil d'indice de réfraction créé vaut $n(x) = n + n_2 I(x)$. Ainsi, le milieu agit sur l'onde progressive comme un guide d'onde à gradient d'indice, guide formé par l'onde elle-même. Si l'intensité lumineuse du faisceau

$I(x)$ possède la même distribution spatiale suivant x que l'un des modes de propagation du guide auto-formé, alors l'onde lumineuse se propage dans le milieu sans changement de son profil spatial d'intensité. Une telle onde auto-guidée est appelée un soliton spatial.



2) Introduction au mélange à quatre ondes

a) Une superposition de trois ondes optiques aux pulsations ω_1, ω_2 et ω_3 est présente dans le milieu; le champ électrique associé est

$$E^{(e)}(\vec{r}, t) = \mathcal{P}e \left\{ \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) e^{i\omega_1 t} + \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) e^{i\omega_2 t} + \mathcal{E}^{\omega_3}(\vec{r}) e^{i\omega_3 t} \right\}$$

$$= \sum_{q=\pm 1, \pm 2, \pm 3} \frac{1}{2} \mathcal{E}^{\omega_q}(\vec{r}) e^{i\omega_q t},$$

avec les conventions $\omega_{-q} = -\omega_q$ et $\mathcal{E}^{-\omega_q}(\vec{r}) = \mathcal{E}^{\omega_q}(\vec{r})^*$. La ^{densité de} polarisation non

linéaire $P_{NL}^{(e)}(\vec{r}, t) = 4\chi^{(3)} E^{(e)}(\vec{r}, t)^3$ est alors

$$P_{NL}^{(e)}(\vec{r}, t) = \sum_{\substack{q, r, l = \\ \pm 1, \pm 2, \pm 3}} \frac{1}{2} \chi^{(3)} \mathcal{E}^{\omega_q}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_r}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_l}(\vec{r}) e^{i(\omega_q + \omega_r + \omega_l)t};$$

elle contient des composantes aux pulsations $3\omega_1, 3\omega_2, 3\omega_3, \omega_1, \omega_2, \omega_3,$

$2\omega_1 \pm \omega_2, 2\omega_1 \pm \omega_3, \dots, \pm\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3$. Par exemple, la composante de

$P_{NL}^{(e)}(\vec{r}, t)$ à la pulsation $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$ est $\mathcal{P}e \left\{ \mathcal{P}_{NL}^{\omega_4}(\vec{r}) e^{i\omega_4 t} \right\}$

avec l'amplitude $\mathcal{P}_{NL}^{\omega_4}(\vec{r}) = 6\chi^{(3)} \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_3}(\vec{r})^*$; cette composante

implique les trois ondes initiales à ω_1, ω_2 et ω_3 pour sa création. La source

de rayonnement $-\mu_0 \frac{\partial^2 \mathcal{P}_{NL}^{(4)}}{\partial t^2}$ a une composante à ω_4 , d'amplitude $\mu_0 \omega_4^2 \mathcal{P}_{NL}^{(4)}(\vec{r})$. Lorsque les ondes initiales sont planes et progressives:

$\mathcal{E}^{\omega_q}(\vec{r}) = \mathcal{E}_0^{\omega_q} e^{-i\vec{k}_q \cdot \vec{r}}$ ($q=1,2,3$), la source à ω_4 vaut

$$6\mu_0 \omega_4^2 \chi^{(3)}(\mathcal{E}_0^{\omega_1})(\mathcal{E}_0^{\omega_2})(\mathcal{E}_0^{\omega_3})^* e^{i(\omega_4 t - [\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3] \cdot \vec{r})};$$

une onde plane progressive $\mathcal{E}_0^{\omega_4} e^{i(\omega_4 t - \vec{k}_4 \cdot \vec{r})}$ à cette pulsation est donc rayonnée

si son vecteur d'onde \vec{k}_4 coïncide avec celui de la source, soit

$$\vec{k}_4 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3.$$

Cette égalité est la relation d'accord de phase pour la génération d'une onde optique à la pulsation $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$.

↳ Une fois générée dans le milieu (la relation d'accord de phase précédente étant vérifiée), l'onde lumineuse à ω_4 interagit avec les ondes à ω_1 et ω_2 pour créer une onde à $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_4$, puisque la relation d'accord de phase correspondante, $\vec{k}_3 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_4$, est vérifiée. De la même manière, l'onde à ω_4 se combine avec celles à ω_2 et ω_3 pour rayonner à ω_1 , et avec celles à ω_1 et ω_3 pour générer une onde à ω_2 . Les quatre ondes ont ainsi des couplages mutuels dans lesquels trois ondes quelconques interagissent pour contribuer à la quatrième. Ce processus de mélange à quatre ondes sort du cadre de ce chapitre; il sera abordé au § III, dans un formalisme adéquat.

c) Un effet intéressant relié au mélange à quatre ondes est la conjugaison de phase optique, présentée ici brièvement.

Dans le cas où les ondes optiques initiales ^{1, 2 et 3} ont la même pulsation :

$\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega$, on a également $\omega_4 = \omega$ pour l'onde créée ; de plus,

les ondes 1 et 2 sont supposées être des ondes planes contra-propageantes :

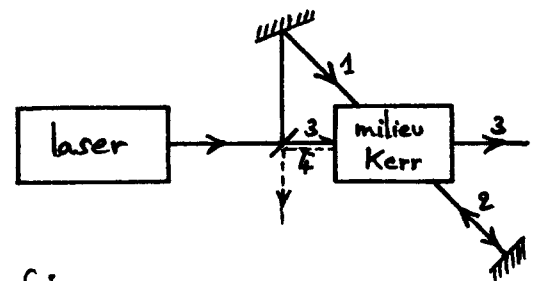
$\vec{k}_2 = -\vec{k}_1$. Dans ces conditions (et l'onde 3 étant une onde plane progressive également), la relation d'accord de phase donne

$$\vec{k}_4 = -\vec{k}_3 :$$

L'onde 4 produite est identique à la troisième, sauf qu'elle se propage en sens contraire. Un dispositif expérimental permettant d'observer cet effet, est représenté schématiquement ci-contre. Il

est à noter que la condition d'accord de

phase est automatiquement réalisée dans cette expérience.



Pour être précis, la source de rayonnement formée par les trois ondes initiales est $\propto (\vec{E}_0^1)(\vec{E}_0^2)(\vec{E}_0^3)^* e^{i(\omega t + \vec{k}_3 \cdot \vec{r})}$ (car $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = 0$), et le même

type de raisonnement que celui du § A-1-b montre que l'onde rayonnée

prend la même forme, soit $\vec{E}^4(\vec{r}, t) \propto e^{i\varphi_0} (\vec{E}_0^3 e^{-i\vec{k}_3 \cdot \vec{r}})^* e^{i\omega t}$,

où φ_0 est l'argument de $i(\vec{E}_0^1)(\vec{E}_0^2)$. Ainsi l'onde 4 est-elle proportionnelle à une

version conjuguée de l'onde 3. Cette conjugaison de phase est analogue au renversement du temps : en effet, le champ physique rayonné est

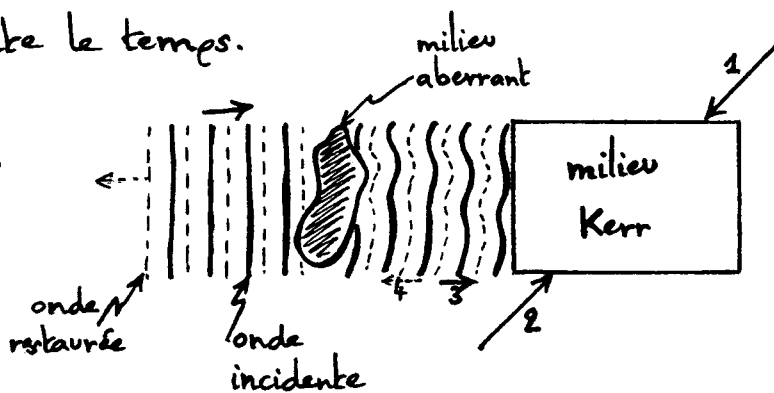
$$E^4(\vec{r}, t) = \text{Re} \{ \mathcal{E}^4(\vec{r}, t) \} \propto \text{Re} \{ (\mathcal{E}_0^3)^* e^{i(\omega t + \vec{k}_3 \cdot \vec{r} + \varphi_0)} \}, \text{ soit :}$$

$$E^4(\vec{r}, t) \propto \text{Re} \left\{ \frac{\mathcal{E}_0^3}{\epsilon_0} e^{i(-\omega t - \vec{k}_3 \cdot \vec{r} - \varphi_0)} \right\},$$

expression obtenue à partir du champ 3 : $E^3(\vec{r}, t) = \text{Re} \left\{ \frac{\mathcal{E}_0^3}{\epsilon_0} e^{i(\omega t - \vec{k}_3 \cdot \vec{r})} \right\}$, par

la transformation $t \rightarrow -t$. Autrement dit, l'onde 4 dans le milieu est proportionnelle à l'onde 3 qui remonte le temps.

La conjugaison de phase permet, entre autres, de restaurer un champ optique dont les fronts



d'onde sont modifiés par la traversée d'un milieu aberrant. En effet, tous les

résultats précédents se généralisent au cas où l'onde monochromatique 3 n'est

pas une onde plane progressive, puisqu'une onde $\mathcal{E}^3(\vec{r}, t) = \mathcal{E}^3(\vec{r}) e^{i\omega t}$ se

décompose comme une superposition d'ondes planes progressives, chacune étant

réfléchi sur elle-même pour former l'onde 4 (cf. schéma ci-dessus).

Les figures non manuscrites des pages II-4 et II-15 proviennent de :

Saleh, Teich - Fundamentals of Photonics - Wiley & Sons, 91.

Annexe au chapitre II: compléments sur l'accord de phase

1) Accord de phase pour la génération de second harmonique

a) On a vu au § II-A-1-b qu'une onde optique plane $\vec{E}_0^\omega e^{i(\omega t - k_1 z)}$,

$k_1 = n^\omega \frac{\omega}{c}$, se propageant dans un milieu de susceptibilité non linéaire d'ordre deux valant d , génère à la sortie du milieu compris entre $z=0$ et $z=L$ une

onde lumineuse de second harmonique $\vec{E}^{2\omega}(z=L) e^{2i\omega t}$ dont l'amplitude complexe est $\vec{E}^{2\omega}(z=L) = \{2\mu_0 \omega^2 (\vec{E}_0^\omega)^2 / ik_2\} d \int_0^L dz' e^{-i2k_1 z'} e^{-ik_2(L-z')}$, $k_2 = n^{2\omega} \frac{2\omega}{c}$.

L'intégrale ci-dessus est la somme des contributions dues aux sources de rayonnement

à 2ω qui se répartissent dans toute l'épaisseur du milieu. Lorsque ces sources ne

contribuent pas en phase au champ optique de second harmonique en $z=L$,

$\Delta k = k_2 - 2k_1 \neq 0$ (ie: $n^{2\omega} \neq n^\omega$) et $\vec{E}^{2\omega}(z=L)$ vaut

$$\vec{E}^{2\omega}(z=L) = \{ \dots \} d e^{-ik_2 L} e^{i\frac{\Delta k L}{2}} \frac{\sin(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k}{2})}$$

b) Cette amplitude est plus petite, d'un facteur $\left[\frac{\sin(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k}{2})} \right]$, que celle qui est obtenue à l'accord de phase $\Delta k = 0$, et l'intensité lumineuse de second harmonique est diminuée du même facteur au carré:

$$I^{2\omega}(\Delta k) = I^{2\omega}(\Delta k=0) \left[\frac{\sin(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k}{2})} \right]^2$$

Pour des valeurs typiques des paramètres: $n^{2\omega} - n^\omega = 0,01$, $\lambda_0 = 1 \mu\text{m}$ et $L = 1 \text{cm}$,

il vient $\frac{\Delta k L}{2} = 2\pi(n^{2\omega} - n^\omega) \frac{L}{\lambda_0} \sim 10^3$ et $\frac{I^{2\omega}(\Delta k)}{I^{2\omega}(\Delta k=0)} \sim \left(\frac{\Delta k L}{2} \right)^{-2} \sim 10^{-6}$.

Ainsi un facteur considérable peut-il être gagné sur l'intensité de l'onde optique de second harmonique, si l'on parvient à réaliser l'accord de phase $\Delta k = 0$, ie $n^{2\omega} = n^\omega$. La réalisation de cet accord de phase dans les milieux biréfringents est présentée au chapitre IV.

2) Quasi-accord de phase

La technique du quasi-accord de phase est une façon intermédiaire de procéder: l'accord de phase n'est pas réalisé, $\Delta k \neq 0$, mais on s'arrange pour que l'intensité lumineuse à 2ω soit bien plus grande que celle donnée au §1.b. En pratique, cette procédure est utilisée dans les cas où le cristal non linéaire employé ne permet pas d'accord de phase par biréfringence.

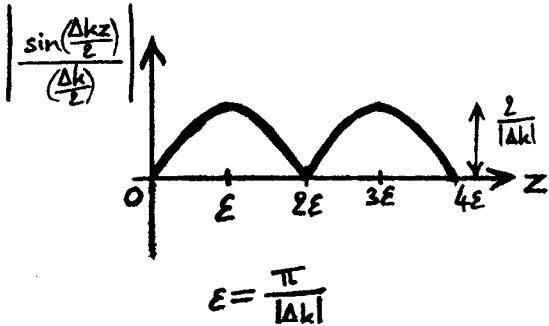
a) Le raisonnement du §II-A-1-b, qui a abouti à l'expression de l'amplitude optique de second harmonique $E^{2\omega}(z=L)$ à la sortie du milieu non linéaire, conduit au passage à l'expression de l'amplitude complexe $E^{2\omega}(z)$ à l'intérieur de ce milieu: $E^{2\omega}(z) = \{ \dots \} d \int_0^L dz' e^{-i2k_z z'} e^{-ik_z |z-z'|}$. Dans l'intégrale, la partie au-delà de z , $\int_z^L dz' e^{-i2k_z z'} e^{-ik_z(z-L)}$, peut être négligée ^(*) puisqu'elle est la somme de contributions qui s'additionnent sans accord de phase (cette partie de l'intégrale correspond à de l'émission vers l'arrière des sources à 2ω).

(*) La validité de cette approximation sera confirmée au chapitre III.

L'expression de l'amplitude de second harmonique obtenue :

$$E^{2\omega}(z) = \{ \dots \} d e^{-ik_2 z} \int_0^z dz' e^{i\Delta k z'} = \{ \dots \} d e^{-ik_2 z} e^{i \frac{\Delta k z}{2}} \frac{\sin(\frac{\Delta k z}{2})}{(\frac{\Delta k}{2})}$$

possède un module de période $\frac{2\pi}{|\Delta k|}$, gouverné par le facteur $\left| \frac{\sin(\frac{\Delta k z}{2})}{(\frac{\Delta k}{2})} \right|$.



Le module $|E^{2\omega}(z)|$ croît de $z=0$ à $z = \frac{\pi}{|\Delta k|}$

où il atteint un maximum, puis il décroît

ensuite pour s'annuler en $z = \frac{2\pi}{|\Delta k|}$. Et ainsi

de suite. En effet, les contributions $e^{i\Delta k z'}$ pour les z' croissant de 0 à $E = \frac{\pi}{|\Delta k|}$

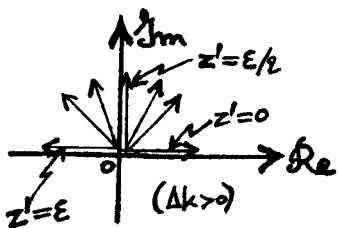
emboîtent peu à peu la moitié supérieure du cercle unité (si $\Delta k > 0$; lorsque

$\Delta k < 0$, c'est la moitié inférieure qui est couverte), et leur somme de $z'=0$ à $z'=z$

a un module croissant avec z , $z < E$. Ce module décroît par l'addition des

contributions $e^{i\Delta k z'}$ avec des z' immédiatement supérieurs à E , qui interviennent

quand z dépasse E . Pour $z = 2E$, les contributions $e^{i\Delta k z'}$, $0 < z' < 2E$,



couvrent l'intégralité du cercle unité et leur somme est

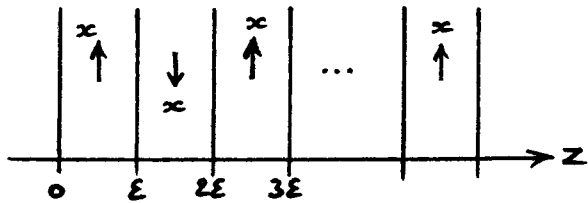
nulle : du point de vue de la génération de second

harmonique, tout se passe comme si le milieu compris entre $z=0$ et $z=2E$

n'existait pas.

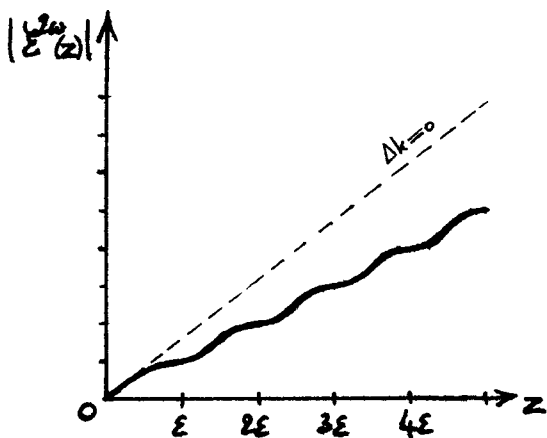
b) Cependant, il y a moyen que les contributions pour $E < z' < 2E$ s'additionnent constructivement avec celles à $0 < z' < E$. Il faut pour cela fabriquer une structure

artificielle formée de couches d'épaisseur ε , l'axe z de non-linéarité d'ordre deux (cf. § I.5-b) étant inversé d'une couche à la suivante, ce qui fait changer de signe la susceptibilité non linéaire d d'une couche à l'autre.



Dans une telle structure, l'amplitude de second harmonique $E^{2\omega}(z)$ possède

un module $|E^{2\omega}(z)|$ croissant avec z , les couches d'épaisseur ε placées avant z contribuant de façon constructive au rayonnement à 2ω en z . Le module $|E^{2\omega}(z)|$ en fonction de z est tracé sur la figure ci-dessous; il croît, en



moyenne, suivant la droite $|E^{2\omega}(z)| \propto \frac{2}{\pi} z$ qui est de pente plus faible, dans le rapport $(\frac{2}{\pi})$, que la droite obtenue lorsque l'accord de phase $\Delta k = 0$ est réalisé dans

le milieu massif (sans structure en couches).

À la sortie du milieu, à l'issue d'un nombre entier de couches d'épaisseur ε , le quasi-accord de phase permet donc d'obtenir $(\frac{2}{\pi})^2 \approx 40\%$ de l'intensité de second harmonique qui serait générée si l'accord de phase exact était possible. Toute la difficulté est alors reportée sur la fabrication contrôlée de la structure multicouche (pour $n^{2\omega} - n^{\omega} = 0,01$ et $\lambda_0 = 1 \mu\text{m}$, $\varepsilon = 25 \mu\text{m}$).

III - Théorie d'ondes couplées

Les phénomènes non linéaires d'ordre deux ou d'ordre trois ont été abordés au chapitre précédent avec une approche perturbative, la première approximation de Born. Dans cette description, le milieu crée, à partir d'un champ optique initial, une nouvelle onde qui a pour origine la non-linéarité du matériau ; cette onde est supposée suffisamment faible pour que sa création n'affecte pas le champ initial. Cette démarche élémentaire, effectuée dans une description scalaire des champs optiques, a eu l'intérêt non seulement d'introduire les phénomènes non linéaires le plus simplement possible, mais aussi de déceler les conditions physiques de leur réalisation, c'est-à-dire la nécessité que soit remplie une condition d'accord de phase. (L'examen de la réalisation pratique de l'accord de phase est repoussé au chapitre suivant.)

Cependant, la limite de la première approximation de Born a été touchée lorsqu'il a été constaté que l'onde créée par un processus de génération de pulsation somme dans un milieu non linéaire d'ordre deux, ou celle produite par un champ optique comprenant trois pulsations dans un milieu Kerr, pouvaient re-interagir avec le champ initial,

dans un processus qui engage l'approximation de Born aux ordres plus élevés que le premier. De la même manière, la première approximation de Born est inadaptée pour examiner l'évolution du champ initial lorsqu'il génère une onde de second harmonique dans un milieu non linéaire d'ordre deux.

Le présent chapitre revisite les phénomènes non linéaires présentés au §II, dans le cadre d'une théorie d'ondes couplées. Cette théorie est non perturbative; elle utilise l'équation d'onde non linéaire (cf. §I-5) pour dériver un système d'équations différentielles couplées, qui régit l'évolution dans le milieu des ondes optiques en interaction. On continue à employer, dans ce chapitre, la description scalaire de l'optique non linéaire.

Ⓐ Génération de second harmonique

1) Ondes couplées

a) Au cours de sa propagation dans un milieu non linéaire d'ordre deux, une onde monochromatique à la pulsation ω peut en générer une autre à la pulsation double 2ω , si la relation d'accord de phase associée est vérifiée (cf. §II-A-1). Le champ optique dans le milieu s'écrit alors:

$$E(\vec{r}, t) = \text{Re} \left\{ \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) e^{i\omega t} + \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) e^{i2\omega t} \right\},$$

en notant $\omega_1 = \omega$ et $\omega_2 = 2\omega$. Ce champ obéit à l'équation

d'onde non linéaire $\frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} - \Delta E = -\mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}$, dans

laquelle la ^{densité de} polarisation non linéaire s'exprime par $P_{NL}(\vec{r}, t) = 2d E(\vec{r}, t)^2$.

La source $-\mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}$ possède une composante à 2ω :

$\Re\{ \mu_0 \omega_2^2 d (\mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}))^2 e^{i\omega_2 t} \}$, et une autre à ω :

$\Re\{ 2\mu_0 \omega_1^2 d \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r})^* \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) e^{i\omega_1 t} \}$. L'équation d'onde non linéaire

donne alors, pour chaque composante en pulsation:

$$\begin{cases} \Delta \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) + k_1^2 \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) = -2\mu_0 \omega_1^2 d \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r})^* \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) \\ \Delta \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) + k_2^2 \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) = -\mu_0 \omega_2^2 d (\mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}))^2, \end{cases}$$

où $k_1 = n^{\omega} \frac{\omega}{c}$ et $k_2 = n^{2\omega} \frac{2\omega}{c}$.

Dans cette démarche, la relation d'accord de phase $k_2 = 2k_1$

(ie: $n^{2\omega} = n^{\omega}$) pour la génération de second harmonique, est supposée vérifiée,

ou du moins très proche de l'être. En revanche, si la source $-\mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2}$

comporte des composantes à 3ω et à 4ω , aucune onde optique n'est

rayonnée dans le milieu à ces pulsations car les conditions d'accord de phase

correspondantes sont supposées ne pas être remplies ($n^{\omega} + 2n^{2\omega} \neq 3n^{3\omega}$ et $n^{4\omega} \neq n^{2\omega}$);

ainsi est-il possible de ne considérer que les deux composantes à ω et à 2ω

pour le champ optique dans le milieu.

Les équations sur $\mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r})$ et $\mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r})$ montrent que chaque amplitude des deux ondes satisfait à une équation de Helmholtz avec un terme source au second membre; la source de l'onde à $\omega_2 = 2\omega$ est $\propto \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r})^2$ (car $\omega_2 = 2\omega_1$), celle de l'onde à $\omega_1 = \omega$ est $\propto \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r})^* \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r})$ (car $\omega_1 = -\omega_1 + \omega_2$). En l'absence de non-linéarité, $d=0$ et les termes sources disparaissent: chacune des ondes satisfait à une équation de Helmholtz indépendamment de l'autre, comme il se doit dans un matériau optique linéaire; deux ondes planes $\mathcal{E}^{\omega_1}(z) = \mathcal{E}_0^{\omega_1} e^{-ik_1 z}$ et $\mathcal{E}^{\omega_2}(z) = \mathcal{E}_0^{\omega_2} e^{-ik_2 z}$ s'y propagent alors suivant z sans interagir.

b) Lorsque $d \neq 0$, les ondes progressives couplées sont cherchées sous la forme:

$$\mathcal{E}^{\omega_q}(z) = \mathcal{E}_0^{\omega_q}(z) e^{-ik_q z}, \quad q=1,2,$$

avec une enveloppe $\mathcal{E}_0^{\omega_q}(z)$ variant lentement avec z , à l'échelle de la

longueur d'onde dans le milieu. $\frac{d^2 \mathcal{E}_0^{\omega_q}}{dz^2}(z)$ est alors négligeable devant

$$k_q \frac{d \mathcal{E}_0^{\omega_q}}{dz}(z) = \frac{2\pi}{\lambda_q} \frac{d \mathcal{E}_0^{\omega_q}}{dz}(z), \quad \text{et on a:}$$

$$(\Delta + k_q^2) \{ \mathcal{E}_0^{\omega_q}(z) e^{-ik_q z} \} \approx -2ik_q \frac{d \mathcal{E}_0^{\omega_q}}{dz}(z) e^{-ik_q z}.$$

Ainsi, les équations suivies par les deux ondes couplées s'écrivent:

$$\begin{cases} \frac{d \mathcal{E}_0^{\omega_1}}{dz}(z) = -i\mu_0 \frac{\omega_1^2}{k_1} d \mathcal{E}_0^{\omega_1}(z)^* \mathcal{E}_0^{\omega_2}(z) e^{-i\Delta k z} \\ \frac{d \mathcal{E}_0^{\omega_2}}{dz}(z) = -i\frac{\mu_0}{2} \frac{\omega_2^2}{k_2} d \mathcal{E}_0^{\omega_1}(z)^2 e^{+i\Delta k z}, \end{cases}$$

où $\Delta k = k_2 - 2k_1$ représente l'écart à la réalisation de l'accord de phase.

2) Relation de Manley-Rowe

Il est utile de normaliser les enveloppes $\tilde{E}_0^{\omega_q}(z)$ en définissant les variables

$$a_q(z) = \left(\frac{n}{2\hbar\omega_q} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \right)^{1/2} \tilde{E}_0^{\omega_q}(z), \quad q=1,2.$$

Les intensités $I_q(z) = \frac{n}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |\tilde{E}_0^{\omega_q}(z)|^2$ des deux ondes, qui s'expriment en

$$W/m^2, \text{ s'écrivent alors: } I_q(z) = \hbar\omega_q |a_q(z)|^2.$$

$\hbar\omega_q$ étant l'énergie d'un photon de l'onde q , les densités de flux de photons^(*) des deux ondes (en $s^{-1} \cdot m^{-2}$) sont :

$$\phi_q(z) = \frac{I_q(z)}{\hbar\omega_q} = |a_q(z)|^2.$$

La variable $a_q(z)$ représente donc l'enveloppe $\tilde{E}_0^{\omega_q}(z)$ de l'onde q , normalisée de sorte que $|a_q(z)|^2$ soit la densité de flux de photons de cette onde.

Exprimées avec les $a_q(z)$, $q=1,2$, les deux équations couplées en $\tilde{E}_0^{\omega_q}(z)$ précédentes sont équivalentes au système :

$$\begin{cases} \frac{da_1}{dz}(z) = -i g a_1(z)^* a_2(z) e^{-i\Delta k z} \\ \frac{da_2}{dz}(z) = -i \frac{g}{2} a_1(z)^2 e^{+i\Delta k z}, \end{cases}$$

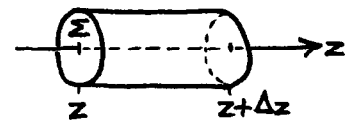
où la constante de couplage g vaut $g = \left\{ 4 \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{3/2} \hbar \omega^3 \right\}^{1/2} \frac{d}{n^{3/2}}$.

(*) Le nombre de photons de l'onde q qui traversent par seconde une surface Σ normale à la direction de propagation z , vaut $\phi(z) \cdot \Sigma$.

b) En utilisant $\frac{d\phi_q}{dz} = \frac{d}{dz}(a_q^* a_q) = a_q^* \frac{da_q}{dz} + a_q \frac{da_q^*}{dz}$, les deux équations couplées précédentes donnent

$$\frac{d\phi_1}{dz}(z) = -2 \frac{d\phi_2}{dz}(z),$$

égalité appelée relation de Manley-Rowe. Cette relation est une équation de conservation du nombre de photons. En effet, si l'on forme la différence entre le nombre de photons (par seconde) qui



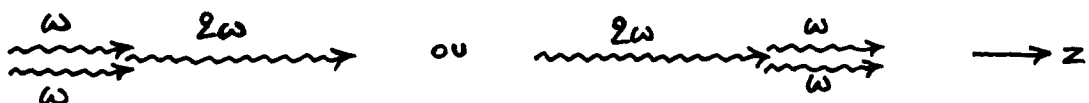
sortent par la face $z+\Delta z$ d'un cylindre d'axe z ,

et ceux qui entrent (par seconde) par sa face z , on a

$$\Delta\phi_q \Sigma = [\phi_q(z+\Delta z) - \phi_q(z)] \Sigma = \Sigma \int_z^{z+\Delta z} \frac{d\phi_q}{dz}(z') dz', \text{ et la relation de Manley-Rowe}$$

fournit $\Delta\phi_1 \Sigma = -2 \Delta\phi_2 \Sigma$. Ainsi, lorsqu'un photon à $\omega_2 = 2\omega$ est créé dans le cylindre ($\Delta\phi_2 \Sigma = 1$), deux photons à $\omega_1 = \omega$ y disparaissent ($\Delta\phi_1 \Sigma = -2$); inversement, quand un photon à 2ω disparaît, deux photons à ω apparaissent.

c) On peut donc schématiser le couplage entre les deux ondes optiques en interaction dans le milieu non linéaire, en termes de collisions entre photons, dans lesquelles soit deux photons $\overset{\omega}{\searrow}$ se combinent pour donner un photon à 2ω , soit un photon à 2ω se sépare en deux à ω :



Dans cette description, la relation d'accord de phase $k_2 = 2k_1$ s'interprète comme la relation de conservation de la quantité de mouvement $\hbar k_2 = 2\hbar k_1$, vérifiée dans l'une ou l'autre des collisions élémentaires schématisées ci-dessus. (De son côté, la relation de conservation de l'énergie $\hbar\omega_2 = 2\hbar\omega_1$ est bien vérifiée.)

3) Solution à l'accord de phase

a) À l'accord de phase $\Delta k = k_2 - 2k_1 = 0$, les deux équations couplées en $a_j(z)$ se réduisent à :

$$\begin{cases} \frac{da_1}{dz}(z) = -ig a_1(z)^* a_2(z) \\ \frac{da_2}{dz}(z) = -i\frac{g}{2} a_1(z)^2 \end{cases}$$

En pratique, l'onde à ω est envoyée sur le milieu non linéaire compris entre $z=0$ et $z=L$, et les conditions aux limites sont $a_1(0) \neq 0$, $a_2(0) = 0$.

On peut vérifier que la solution dans le milieu ($0 < z < L$) est alors :^(*)

$$a_1(z) = \frac{a_1(0)}{\operatorname{ch}(\gamma z)}, \quad a_2(z) = -\frac{i}{\sqrt{2}} \frac{a_1(0)^2}{|a_1(0)|} \operatorname{th}(\gamma z),$$

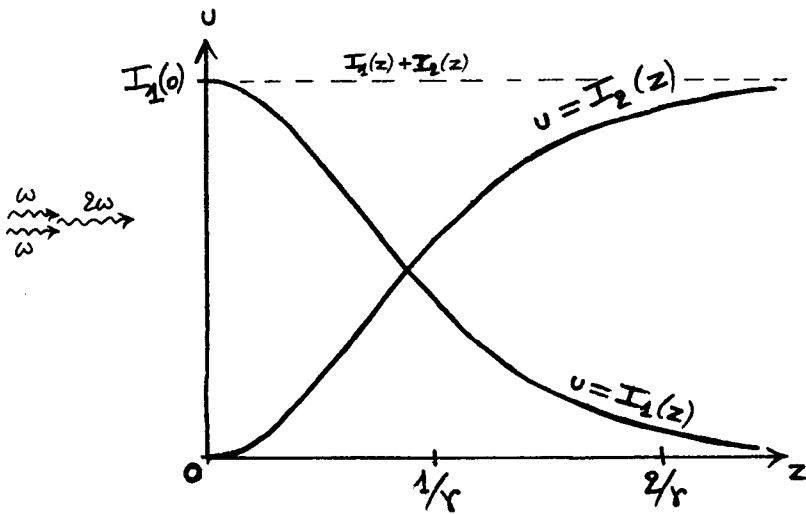
avec $\gamma = g|a_1(0)|/\sqrt{2}$.

Les intensités $I_1(z) = \hbar\omega |a_1(z)|^2$ et $I_2(z) = 2\hbar\omega |a_2(z)|^2$ des deux ondes évoluent donc suivant :

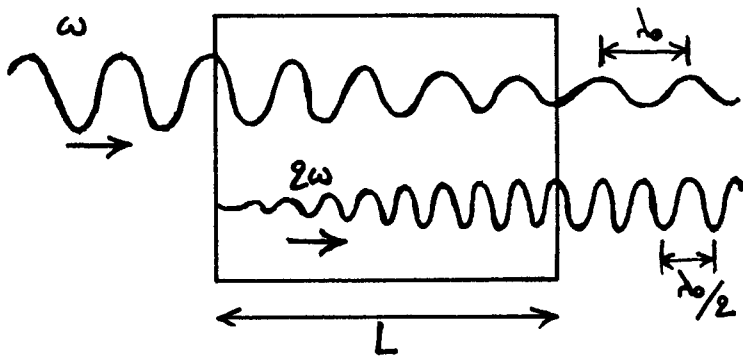
$$I_1(z) = \frac{I_1(0)}{\operatorname{ch}^2 \gamma z}, \quad I_2(z) = I_1(0) \operatorname{th}^2 \gamma z.$$

(*) Ce résultat se démontre en décomposant $a_1(z)$ et $a_2(z)$ en module et argument; les relations $|a_1(z)|^2 + 2|a_2(z)|^2 = C^2$ et $\operatorname{Re}[a_1(z)^2 a_2(z)^*] = C^2$ sont utiles.

La décroissance de $I_1(z)$ et l'augmentation de $I_2(z)$ avec z sont représentées ci-dessous. Comme $\frac{1}{ch^2} + th^2 = 1$, $I_1(z) + I_2(z) = I_1(0)$ est



une constante; cette égalité, qui traduit la conservation de l'énergie lumineuse, est contenue dans la relation de Manley-Rowe (cf. § 2).



b) L'efficacité de la génération de second harmonique est

$$\frac{I_2(L)}{I_1(0)} = th^2 \gamma L.$$

Pour $\gamma L \gg 1$ (ie: $I_1(0)$, d et

L suffisamment grands), l'efficacité approche de 100% : $I_2(L) \approx I_1(0)$. Dans

ce cas, toute la lumière incidente (à ω) est transformée en un faisceau à 2ω , ie: tous les photons à ω sont convertis en photons à 2ω .

Lorsque $\gamma L \ll 1$, l'efficacité vaut $\frac{I_2(L)}{I_1(0)} \approx (\gamma L)^2$, soit

$$\frac{I_2(L)}{I_1(0)} = 2 \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0}\right)^{3/2} \frac{d^2}{n^3} L^2 \omega^2 I_1(0). \text{ Comme il se doit, on retrouve ainsi l'expression}$$

de $I_2(L)$ obtenue au § II-A-1-c dans le cadre de la 1^{re} approximation de Born.

4) Effet d'un désaccord de phase

a) Pour étudier l'effet d'un désaccord de phase non nul ($\Delta k \neq 0$), les équations en $a_2(z)$ générales doivent être considérées (cf. § 2). Si l'onde à ω est faiblement convertie en celle à 2ω ($\gamma L \ll 1$), on peut écrire $a_1(z) \approx a_1(0)$

et $a_2(z)$ s'obtient par intégration: $a_2(z) = -i \frac{g}{2} a_1(0)^2 \int_0^z e^{i\Delta k z'} dz'$,

$$\text{soit } a_2(z) = -i \frac{g}{2} a_1(0)^2 \frac{1}{i\Delta k} (e^{i\Delta k z} - 1) = -i \frac{g}{2} a_1(0)^2 \frac{\sin\left(\frac{\Delta k z}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k}{2}\right)} e^{i\frac{\Delta k z}{2}}.$$

L'intensité de l'onde à 2ω vaut alors $I_2(z) = \frac{g^2}{4} |a_1(0)|^4 \left[\frac{\sin\left(\frac{\Delta k z}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k}{2}\right)} \right]^2$, soit:

$$I_2(z) = I_1(0) \gamma^2 \left[\frac{\sin\left(\frac{\Delta k z}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k}{2}\right)} \right]^2.$$

Pour $\Delta k = 0$, $I_2(z) = I_1(0) (\gamma z)^2$.

Pour $\Delta k \neq 0$, $I_2(z)$ est périodique

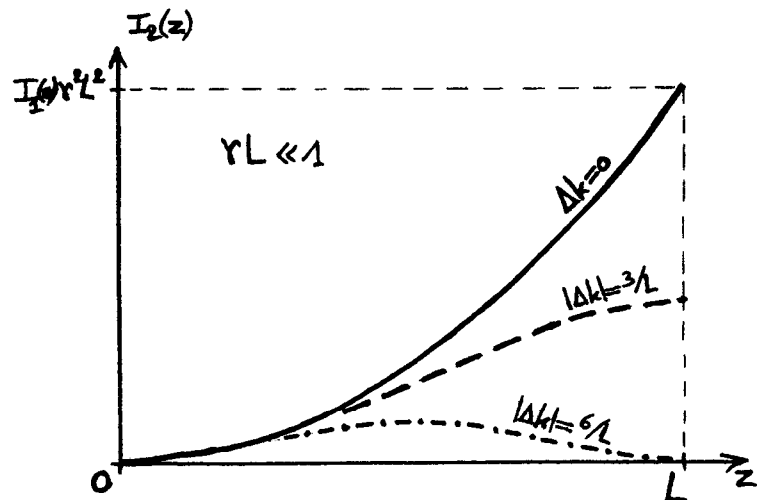
$$\text{de période } L_c = \frac{2\pi}{|\Delta k|} = \frac{\lambda_0}{2|n_{2\omega} - n_{\omega}|},$$

appelée longueur de cohérence;

L_c est une mesure de la longueur

maximale sur laquelle la génération de second harmonique est efficace.

L'amplitude des oscillations de $I_2(z)$ est d'autant plus faible que $|\Delta k|$ est plus grand.



b) Lorsque l'onde à ω n'est pas négligeablement perturbée ($\gamma L \ll 1$), une

intégration numérique sur ordinateur des équations du § 2-a donne un comportement

oscillant pour $I_2(z)$ et $I_1(z)$. La période ^{spatiale} et l'amplitude des oscillations décroissent avec $|\Delta k|$.

Ⓑ Mélange à trois ondes

a) Trois ondes $\sum_{\text{plans}} \epsilon_0^{\omega_q} e^{-ik_q \cdot \vec{r}}$ de pulsations ω_q différentes deux à deux

($q=1, 2, 3$) sont couplées entre elles dans un milieu non linéaire d'ordre deux,

lorsque $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ et qu'est vérifiée la relation d'accord de phase

$\vec{k}_3 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$ (cf. § II-A-2-c). Le champ optique contenant ces trois ondes

s'écrit $E(\vec{r}, t) = \sum_{q=1,2,3} \mathcal{P}e \left\{ \epsilon^{\omega_q}(\vec{r}) e^{i\omega_q t} \right\}$ où $\epsilon^{\omega_q}(\vec{r}) = \epsilon_0^{\omega_q}(\vec{r}) e^{-ik_q \cdot \vec{r}}$,

$\epsilon_0^{\omega_q}(\vec{r})$ étant une enveloppe lentement variable à l'échelle de $\lambda_q = \frac{2\pi}{|\vec{k}_q|}$;

$E(\vec{r}, t)$ vérifiant l'équation d'onde non linéaire (cf. p. III-3), il vient les équations

de Helmholtz couplées suivantes pour les trois composants en pulsation :

$$\begin{cases} \Delta \epsilon^{\omega_1}(\vec{r}) + k_1^2 \epsilon^{\omega_1}(\vec{r}) = -2\mu_0 \omega_1^2 d \epsilon^{\omega_2}(\vec{r})^* \epsilon^{\omega_3}(\vec{r}) \\ \Delta \epsilon^{\omega_2}(\vec{r}) + k_2^2 \epsilon^{\omega_2}(\vec{r}) = -2\mu_0 \omega_2^2 d \epsilon^{\omega_3}(\vec{r}) \epsilon^{\omega_1}(\vec{r})^* \\ \Delta \epsilon^{\omega_3}(\vec{r}) + k_3^2 \epsilon^{\omega_3}(\vec{r}) = -2\mu_0 \omega_3^2 d \epsilon^{\omega_1}(\vec{r}) \epsilon^{\omega_2}(\vec{r}) \end{cases}$$

où $k_q = |\vec{k}_q| = n \frac{\omega_q}{c}$. (La démarche est identique à celle du § A-1-a.)

Les enveloppes des trois ondes en interaction sont écrites sous la forme

$$\epsilon_0^{\omega_q}(\vec{r}) = \left\{ 2\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \frac{k \omega_q}{n} \right\}^{1/2} a_q(\vec{r}) \quad (\text{cf. § A-2-a}),$$

qui permet de relier simplement les variables $a_q(\vec{r})$ aux densités de flux

de photons $\phi_q(\vec{r})$ des trois ondes : $\phi_q(\vec{r}) = |a_q(\vec{r})|^2$. En négligeant

$\Delta a_q(\vec{r})$ devant $\vec{k}_q \cdot \vec{\text{grad}}(a_q(\vec{r}))$, on obtient les équations suivantes :

$$\begin{cases} \hat{u}_1 \cdot \vec{\text{grad}}[a_1(\vec{r})] = -ig a_2(\vec{r})^* a_3(\vec{r}) e^{-i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}} \\ \hat{u}_2 \cdot \vec{\text{grad}}[a_2(\vec{r})] = -ig a_3(\vec{r}) a_1(\vec{r})^* e^{-i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}} \\ \hat{u}_3 \cdot \vec{\text{grad}}[a_3(\vec{r})] = -ig a_1(\vec{r}) a_2(\vec{r}) e^{+i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}}, \end{cases}$$

où $\hat{u}_q = \frac{\vec{k}_q}{|\vec{k}_q|}$ est le vecteur unitaire suivant la propagation de l'onde q ,

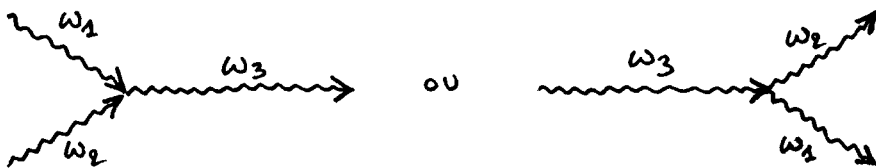
$\Delta\vec{k} = \vec{k}_3 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2$ est l'écart à l'accord de phase, et $g = \left\{ 2 \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{3/2} \hbar \omega_1 \omega_2 \omega_3 \right\}^{1/2} \frac{d}{n^3 \hbar}$

est la constante de couplage. ($\hat{u}_q \cdot \vec{\text{grad}}$ est la dérivée spatiale suivant la direction de propagation de l'onde q .)

b) Les équations couplées ci-dessus contiennent la relation de Manley-Rowe

$$\hat{u}_1 \cdot \vec{\text{grad}} \Phi_1 = \hat{u}_2 \cdot \vec{\text{grad}} \Phi_2 = -\hat{u}_3 \cdot \vec{\text{grad}} \Phi_3.$$

Le processus de mélange à trois ondes peut ainsi être vu en termes de collisions entre photons, dans lesquelles soit deux photons à ω_1 et ω_2 se combinent pour en former un à ω_3 , soit un photon à ω_3 se désintègre pour en donner un à ω_1 et un autre à ω_2 :



Dans ces collisions, l'énergie est conservée : $\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 = \hbar\omega_3$ (puisque $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$);

la relation d'accord de phase $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3$ correspond à la conservation de la quantité de mouvement : $\hbar\vec{k}_1 + \hbar\vec{k}_2 = \hbar\vec{k}_3$.

La relation de Manley-Rowe implique la relation de conservation de l'énergie lumineuse : $\hat{U}_1 \cdot \overrightarrow{\text{grad}} I_1 + \hat{U}_2 \cdot \overrightarrow{\text{grad}} I_2 + \hat{U}_3 \cdot \overrightarrow{\text{grad}} I_3 = 0$,

où $I_q(\vec{r}) = \hbar \omega_q \Phi_q(\vec{r})$ est l'intensité (en W/m^2) de l'onde q .

1) Conversion de fréquence

¶ Dans le phénomène de conversion de fréquence optique, une onde de pulsation ω_1 se combine à une autre de pulsation ω_2 pour en bâtir une troisième à la pulsation somme $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ("up-conversion", cf. § II-A-2). On se place dans la situation où les trois ondes se propagent suivant la même direction z ; on discute ici le cas où l'onde à ω_2 est suffisamment intense pour être négligeablement perturbée dans le processus :

$a_2(z) \simeq a_2(0)$, et où l'onde à ω_1 est envoyée sur le milieu non linéaire compris entre $z=0$ et $z=L$: $a_1(0) \neq 0$, $a_3(0) = 0$.

Les équations générales de la e. III-11 se réduisent alors à :

$$\begin{cases} \frac{da_1}{dz}(z) = -ig a_2(0)^* a_3(z) \\ \frac{da_3}{dz}(z) = -ig a_2(0) a_1(z), \end{cases}$$

en supposant réalisé l'accord de phase $\Delta k = k_3 - k_1 - k_2 = 0$. Il s'agit

de deux équations différentielles linéaires couplées, du premier ordre. On

en déduit une équation différentielle sur $a_1(z)$ seul : $a_1''(z) + g^2 |a_2(0)|^2 a_1(z) = 0$,

d'où : $a_1(z) = \mathcal{A} \cos \gamma z + \mathcal{B} \sin \gamma z$ avec $\gamma = g |a_2(0)|$,

puis : $a_3(z) = \frac{1}{-ig a_2(0)^*} \frac{da_1}{dz}(z) = i \frac{a_2(0)}{|a_2(0)|} (-\mathcal{A} \sin \gamma z + \mathcal{B} \cos \gamma z)$.

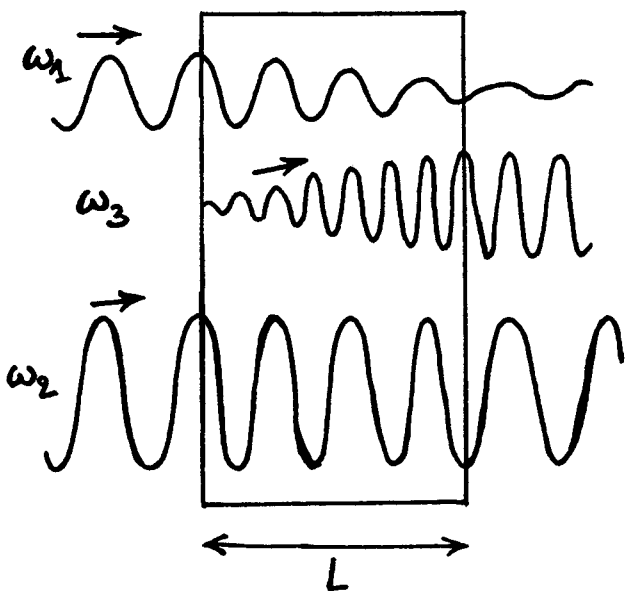
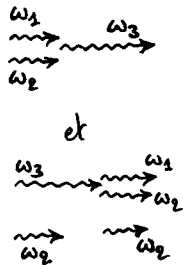
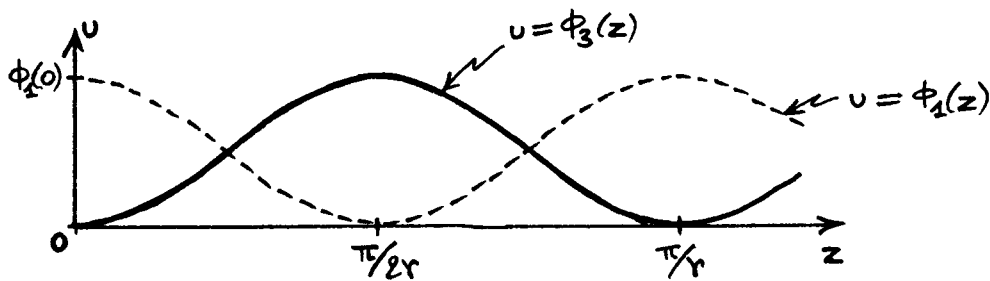
Les conditions aux limites donnent finalement : $a_1(z) = a_1(0) \cos \gamma z$,

$a_3(z) = -i \frac{a_2(0)}{|a_2(0)|} a_1(0) \sin \gamma z$, et les densités de flux de photons

correspondantes sont :

$$\begin{cases} \Phi_1(z) = |a_1(z)|^2 = \Phi_1(0) \cos^2 \gamma z \\ \Phi_3(z) = |a_3(z)|^2 = \Phi_1(0) \sin^2 \gamma z. \end{cases}$$

Les dépendances de $\Phi_1(z)$ et $\Phi_3(z)$ avec z sont représentées ci-dessous :



Les photons sont échangés périodiquement entre les ondes à ω_1 et à ω_3 , avec la période spatiale π/γ .

b) L'efficacité de la conversion est

$$\frac{I_3(L)}{I_1(0)} = \frac{\omega_3}{\omega_1} \sin^2 \gamma L.$$

Elle est maximale, à ω_3/ω_1 , quand

l'épaisseur du milieu vaut $L = \pi/2\gamma$ (ou $3\pi/2\gamma$, ou $5\pi/2\gamma$, ...). Tous

les photons initiaux à ω_1 sont alors convertis en photons à ω_3 .

Lorsque $L \ll 1/\gamma$, l'efficacité vaut $\frac{I_3(L)}{I_1(0)} \approx \frac{\omega_3}{\omega_1} (\gamma L)^2$, soit

$$\frac{I_3(L)}{I_1(0)} = 2 \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{3/2} \frac{d^2}{n^3} \underbrace{L^2}_{\omega_3^2} I_2(0). \text{ Cette expression de l'efficacité est valable}$$

dans le cadre de la première approximation de Born, (cf. §II-A-2-d), où $I_1(z) \approx I_1(0)$

et $I_2(z) \approx I_2(0)$. Dans cette limite, il est d'ailleurs aisé de tenir compte

d'un éventuel désaccord de phase ($\Delta k = k_3 - k_1 - k_2 \neq 0$): la seule équation

à considérer alors est $a_3'(z) \approx -ig a_1(0) a_2(0) e^{i\Delta k z}$, équation qui

s'intègre facilement et conduit à une efficacité $\frac{I_3(L)}{I_1(0)}$ multipliée par

$$\left[\frac{\sin\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)} \right]^2 \text{ par rapport à l'expression ci-dessus valable à } \Delta k = 0.$$

2) Amplification paramétrique

a) En faisant interagir deux ondes à ω_1 et ω_3 , il est possible de générer une onde à la pulsation différence $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ ("down-conversion", cf. §II-A-2).

La situation où les trois ondes sont colinéaires et où celle à ω_3 est assez intense pour être négligablement perturbée ($a_3(z) \approx a_3(0)$), est décrite par (cf. p. III-11):

$$\begin{cases} \frac{da_1}{dz}(z) = -ig a_3(0) a_2(z)^* \\ \frac{da_2}{dz}(z) = -ig a_3(0) a_1(z)^* \end{cases},$$

lorsque l'accord de phase $\Delta k = k_3 - k_1 - k_2 = 0$ est réalisé. On tire de ce

système une équation différentielle sur $a_1(z)$ seul: $a_1''(z) - g^2 |a_3(0)|^2 a_1(z) = 0$,

dont la solution générale est $a_1(z) = \mathcal{A} \operatorname{ch} \gamma z + \mathcal{B} \operatorname{sh} \gamma z$, $\gamma = g |a_3(0)|$;

on obtient alors $a_2(z)$ à partir de $a_2(z)^* = \frac{1}{-ig a_3(0)} a_1'(z)$:

$$a_2(z) = -i \frac{a_3(0)}{|a_3(0)|} (\mathcal{A}^* \text{sh} \gamma z + \mathcal{B}^* \text{ch} \gamma z). \text{ Avec les conditions aux limites}$$

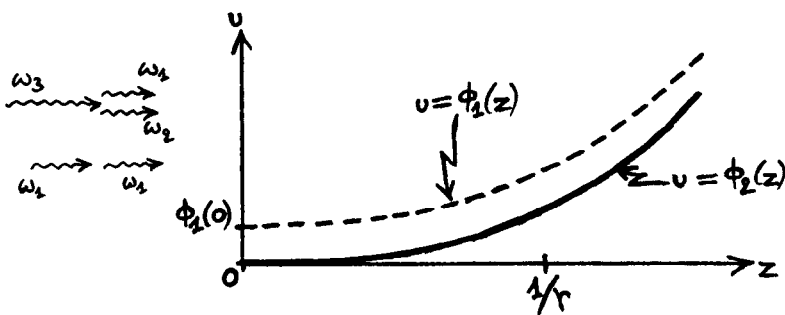
$a_1(0) \neq 0$ et $a_2(0) = 0$, il vient finalement $a_1(z) = a_1(0) \text{ch} \gamma z$,

$$a_2(z) = -i \frac{a_3(0)}{|a_3(0)|} a_1(0)^* \text{sh} \gamma z. \text{ Les densités de flux de photons } \phi_1(z) = |a_1(z)|^2$$

et $\phi_2(z) = |a_2(z)|^2$ des ondes à ω_1 et ω_2 dans le milieu ($z > 0$) sont donc :

$$\begin{cases} \phi_1(z) = \phi_1(0) \text{ch}^2 \gamma z \\ \phi_2(z) = \phi_1(0) \text{sh}^2 \gamma z. \end{cases}$$

Les croissances monotones de $\phi_1(z)$ et $\phi_2(z)$ sont représentées ci-dessous. (Cette augmentation de $\phi_1(z)$ et $\phi_2(z)$ sature quand assez de photons de l'onde à ω_3 ont disparu pour que la condition $\phi_3(z) \simeq \text{cte}$ ne soit plus vérifiée.)



Les densités de flux de photons des deux ondes à ω_1 et ω_2 croissent exponentiellement pour $z \gg 1/\gamma$.

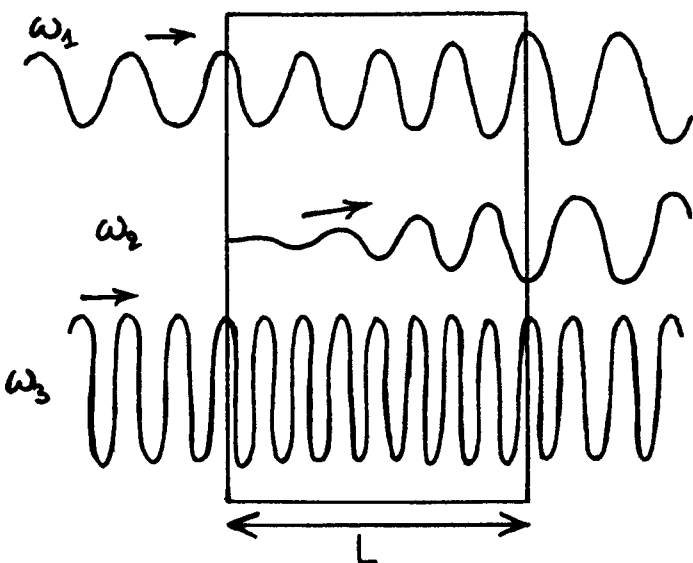
L'onde à ω_2 est générée avec

$$\text{l'efficacité } \frac{I_2(L)}{I_1(0)} = \frac{\omega_2}{\omega_1} \text{sh}^2 \gamma L.$$

Pour $\gamma L \ll 1$, $I_2(L)/I_1(0) \simeq \frac{\omega_2}{\omega_1} (\gamma L)^2$,

$$\text{ie: } \frac{I_2(L)}{I_1(0)} \simeq 2 \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \right)^{3/2} \frac{d^2}{n^3} L^2 \omega_2^2 I_3(0)$$

(cf. §II-A-2-d).



b) Outre cette possibilité de génération de la pulsation différence $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$, la situation décrite présente l'intérêt d'amplifier l'onde optique incidente à ω_1 , via son interaction avec l'onde intense à ω_3 . Un milieu non linéaire d'épaisseur L amplifie l'onde à ω_1 avec un gain $G = \frac{I_1(L)}{I_1(0)} = \text{ch}^2 \gamma L$. Cet effet de gain est appelé amplification paramétrique de l'onde à ω_1 , par référence à l'origine du gain, qui est le mélange à trois ondes — ou interaction paramétrique — des pulsations ω_1 , ω_2 et ω_3 .

Si l'on prend en compte un possible désaccord de phase ($\Delta k \neq 0$), ainsi que les pertes de photons dans le milieu (par absorption ou diffusion), les équations décrivant le système deviennent :

$$\begin{cases} a_1'(z) = -ig a_3(0) a_2(z)^* e^{-i\Delta k z} - \frac{\alpha}{2} a_1(z) \\ a_2'(z) = -ig a_3(0) a_1(z)^* e^{-i\Delta k z} - \frac{\alpha}{2} a_2(z), \end{cases}$$

où α est le coefficient d'atténuation en intensité des ondes à ω_1 et ω_2

(si $d=0$, alors $g=0$ et $a_{1,2}(z) = a_{1,2}(0) e^{-\frac{\alpha}{2}z}$, d'où $I_{1,2}(z) = I_{1,2}(0) e^{-\alpha z}$).

Pour simplifier la discussion, les deux ondes à ω_1 et ω_2 sont supposées s'atténuer de la même façon, ie qu'elles ont le même coefficient d'atténuation α .

Les deux équations couplées ci-dessus se résolvent en posant

$a_{1,2}(z) = A_{1,2}(z) e^{-i\frac{\Delta k z}{2}}$, ce qui permet de les écrire sous la forme :

$$\begin{pmatrix} A_1'(z) \\ A_2'(z)^* \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} (\frac{\alpha}{2} - i\frac{\Delta k}{2}) & ig a_3(z) \\ -ig a_3(z)^* & (\frac{\alpha}{2} + i\frac{\Delta k}{2}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_1(z) \\ A_2(z)^* \end{pmatrix} = 0.$$

La recherche d'une solution $A_1(z) = A_{10} e^{\lambda z}$, $A_2(z)^* = A_{20}^* e^{\lambda z}$ fournit

l'équation caractéristique $\lambda^2 + \alpha\lambda + (\frac{\alpha}{2})^2 + (\frac{\Delta k}{2})^2 - g^2 |a_3(z)|^2 = 0$, dont

les solutions sont $\lambda_{\pm} = -\frac{\alpha}{2} \pm \sqrt{\gamma^2 - (\frac{\Delta k}{2})^2}$ (avec la notation $\gamma = g |a_3(z)|$

habituelle). L'amplification paramétrique se produit lorsque λ_+ est réel positif,

soit $\gamma^2 > (\frac{\Delta k}{2})^2$ et $\lambda_+ > 0$, inégalités qui se ramènent à un seul critère :

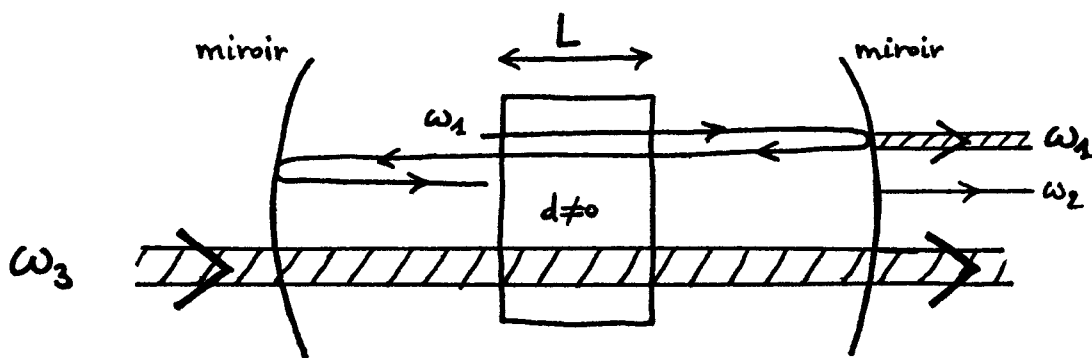
$$\gamma^2 > (\frac{\Delta k}{2})^2 + (\frac{\alpha}{2})^2,$$

équivalent à une condition de seuil sur l'intensité de l'onde à ω_3 :

$$I_3(z) > I_3^{\text{seuil}} \quad \text{avec} \quad I_3^{\text{seuil}} = \frac{1}{8} \left(\frac{\epsilon_0}{\mu_0} \right)^{3/2} \frac{n^3}{\omega_1 \omega_2 d^2} [(\Delta k)^2 + \alpha^2].$$

3) Oscillateur paramétrique

a) Un oscillateur paramétrique optique est formé d'un amplificateur paramétrique (cf. § 2-b précédent) placé dans une cavité optique résonnante à la pulsation ω_1 . Les miroirs de la cavité sont supposés transparents à ω_3 et à ω_2 , et ont un coefficient de réflexion en intensité R à ω_1 .



Si le gain paramétrique est suffisamment fort, ce système produit une onde de pulsation ω_1 . En effet, la création de cette onde à ω_1 démarre alors sur une onde d'intensité i_1 infinitésimale initialement présente dans la cavité, qui a pour origine le bruit de l'onde à ω_3 , ^{le bruit ambiant} ou le bruit quantique du vide de la cavité. En traversant l'amplificateur (de gauche à droite sur le schéma), cette onde initiale est amplifiée et en sort avec l'intensité ^(*) $i_1 \times \text{ch}^2 \gamma L e^{-\alpha L}$; elle est ensuite réfléchiée par le miroir de droite, puis traverse la cavité de droite à gauche (sans amplification car il n'y a pas alors d'accord de phase dans le milieu), et se réfléchit enfin sur le miroir de gauche avant de se présenter une nouvelle fois à l'entrée de l'amplificateur paramétrique, avec une intensité $i_1 \times \text{ch}^2 \gamma L e^{-\alpha L} \times R \times R$.

L'onde infinitésimale initiale est donc amplifiée dans le système si

$$\text{ch}^2 \gamma L (e^{-\alpha L})^2 R^2 > 1.$$

Lorsque le gain de l'amplificateur reste proche de 1, et que son atténuation est un faible effet, on peut utiliser $\text{ch}^2 \gamma L \approx 1 + (\gamma L)^2$ et $e^{-\alpha L} \approx 1 - \alpha L$, et la condition de fonctionnement de l'oscillateur paramétrique devient

$$(\gamma L)^2 > 2\alpha L + 2(1-R),$$

(*) On se limite au cas $\Delta k = 0$ (accord de phase). La factorisation de l'effet de gain ($\text{ch}^2 \gamma L$) et de l'effet d'atténuation dans le milieu ($e^{-\alpha L}$) se déduit des équations du § 2-b.

en supposant de plus $1-R \ll 1$; cette inégalité stipule, comme attendu, que la proportion $(\gamma L)^2$ de l'intensité gagnée dans l'amplificateur doit dépasser la proportion $2\alpha L + 2(1-R)$ de celle qui est perdue ^{le milieu} _{dans} et lors de la réflexion sur les deux miroirs. Cette condition est équivalente à l'existence d'un seuil pour l'intensité de l'onde à ω_3 :

$$I_3(o) > I_3^{osc.}, \quad I_3^{osc.} = \left(\frac{\epsilon_0}{\mu_0}\right)^{3/2} \frac{n^3}{\omega_1 \omega_2 d^2} \left(\frac{\alpha}{L} + \frac{(1-R)}{L^2}\right).$$

b) Cependant, l'intensité de l'onde optique à ω_1 ne croît pas indéfiniment dans la cavité au cours des allers-retours entre les deux miroirs, du fait que le gain de l'amplificateur paramétrique sature (ie: décroît) lorsque l'intensité ^{de l'onde} I_1 à ω_1 approche l'intensité $I_3(o)$ de l'onde à ω_3 envoyée sur le système pour créer le gain optique. On peut écrire le gain de l'amplificateur sous la forme $ch^2 \Gamma(I_1) L$, où $\Gamma(I_1)$ est une fonction de I_1 qui décroît de $\Gamma(I_1) = \gamma$ pour $I_1 \ll I_3(o)$, à $\Gamma(I_1) \rightarrow 0$ pour $I_1 \rightarrow I_3(o)$. En régime permanent, l'intensité I_1 de l'onde à ω_1 dans la cavité est fixée par la condition "le gain égale les pertes", soit :

$$(\Gamma(I_1) L)^2 = 2\alpha L + 2(1-R).$$

C'est grâce à l'accord de la cavité sur la pulsation ω_1 que les réflexions multiples de l'onde à ω_1 sur les miroirs ne s'effacent pas mutuellement par

interférence. Le faisceau utile à ω_1 émerge d'un des miroirs, vers l'extérieur de la cavité; il possède l'intensité $(1-R) \mathcal{I}_1$, qui est une faible proportion (*) de celle qui règne à l'intérieur de la cavité. Une onde à ω_2 est également produite par le système.

Un oscillateur paramétrique optique permet ainsi d'obtenir, à partir d'une onde à ω_3 suffisamment intense, un faisceau de lumière cohérente à la pulsation ω_1 et un autre à ω_2 . Les pulsations ω_1 et ω_2 sont déterminées

par les deux relations :

$$\begin{cases} \omega_1 + \omega_2 = \omega_3 \\ n^{\omega_1} \omega_1 + n^{\omega_2} \omega_2 = n^{\omega_3} \omega_3, \end{cases}$$

qui correspondent au mélange à trois ondes et à l'accord de phase associé.

Les indices ^{de réfraction} n^{ω_1} , n^{ω_2} et n^{ω_3} dépendent de l'orientation cristalline du milieu amplificateur (cf. chapitre IV), de sa température, d'un champ électrostatique ou d'une contrainte mécanique appliqués; le contrôle de ces paramètres est utilisé pour obtenir la pulsation ω_1 (ou ω_2) voulue en sortie de l'oscillateur paramétrique. La cavité doit être re-réglée pour chaque pulsation ω_1 à obtenir en sortie.

(*) Puisque $1-R \ll 1$.

⊙ Mélange à quatre ondes

1) Ondes couplées

Il a été vu au § II-B-2 que quatre ondes planes $\mathcal{E}_0^{\omega_q} e^{-i\vec{k}_q \cdot \vec{r}}$ de pulsations ω_q ($q=1,2,3,4$) sont couplées entre elles dans un milieu non linéaire d'ordre trois lorsque $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4$, la relation d'accord de phase associée étant $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3 + \vec{k}_4$. En suivant la même démarche que celles des §§ A et B, l'injection du champ total $E(\vec{r}, t) = \sum_{q=1 \rightarrow 4} \text{Re}\{ \mathcal{E}^{\omega_q}(\vec{r}) e^{i\omega_q t} \}$, $\mathcal{E}^{\omega_q}(\vec{r}) = \mathcal{E}_0^{\omega_q}(\vec{r}) e^{-i\vec{k}_q \cdot \vec{r}}$ dans l'équation d'onde non linéaire du § I-5-b donne les équations de Helmholtz couplées :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) + \vec{k}_1^2 \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) = -6\mu_0 \omega_1^2 \chi^{(3)} \mathcal{E}^{\omega_3}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_4}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r})^* \\ \Delta \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) + \vec{k}_2^2 \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) = -6\mu_0 \omega_2^2 \chi^{(3)} \mathcal{E}^{\omega_3}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_4}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r})^* \\ \Delta \mathcal{E}^{\omega_3}(\vec{r}) + \vec{k}_3^2 \mathcal{E}^{\omega_3}(\vec{r}) = -6\mu_0 \omega_3^2 \chi^{(3)} \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_4}(\vec{r})^* \\ \Delta \mathcal{E}^{\omega_4}(\vec{r}) + \vec{k}_4^2 \mathcal{E}^{\omega_4}(\vec{r}) = -6\mu_0 \omega_4^2 \chi^{(3)} \mathcal{E}^{\omega_1}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_2}(\vec{r}) \mathcal{E}^{\omega_3}(\vec{r})^* \end{array} \right. ,$$

où $\vec{k}_q(\vec{r}) = \vec{n}_q(\vec{r}) \frac{\omega_q}{c}$, avec $\vec{n}_q(\vec{r})^2 = n^2 + \frac{3\chi^{(3)}}{\epsilon_0} \left(|\mathcal{E}^{\omega_q}(\vec{r})|^2 + 2 \sum_{q' \neq q} |\mathcal{E}^{\omega_{q'}}(\vec{r})|^2 \right)$.

Dans ces équations, les termes sources représentent le couplage entre les quatre ondes, tandis que l'expression de l'indice de réfraction $\vec{n}_q(\vec{r})$ pour l'onde à ω_q correspond à l'effet Kerr optique (cf. § II-B-1).

Les enveloppes $\vec{E}_0^{\omega_q}(\vec{r})$, supposées lentement variables dans l'espace, sont écrites sous la forme habituelle : $\vec{E}_0^{\omega_q}(\vec{r}) = \left\{ 2\sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \frac{\hbar\omega_q}{n} \right\}^{1/2} a_q(\vec{r})$; les équations couplées précédentes sont alors équivalentes à :

$$\begin{cases} \hat{U}_1 \cdot \vec{\text{grad}} a_1(\vec{r}) + i \frac{k_1}{2} \frac{\bar{n}_1(\vec{r})^2 - n^2}{n^2} a_1(\vec{r}) = -ig a_3(\vec{r}) a_4(\vec{r}) a_2(\vec{r})^* e^{-i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}} \\ \hat{U}_2 \cdot \vec{\text{grad}} a_2(\vec{r}) + i \frac{k_2}{2} \frac{\bar{n}_2(\vec{r})^2 - n^2}{n^2} a_2(\vec{r}) = -ig a_3(\vec{r}) a_4(\vec{r}) a_1(\vec{r})^* e^{-i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}} \\ \hat{U}_3 \cdot \vec{\text{grad}} a_3(\vec{r}) + i \frac{k_3}{2} \frac{\bar{n}_3(\vec{r})^2 - n^2}{n^2} a_3(\vec{r}) = -ig a_1(\vec{r}) a_2(\vec{r}) a_4(\vec{r})^* e^{+i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}} \\ \hat{U}_4 \cdot \vec{\text{grad}} a_4(\vec{r}) + i \frac{k_4}{2} \frac{\bar{n}_4(\vec{r})^2 - n^2}{n^2} a_4(\vec{r}) = -ig a_1(\vec{r}) a_2(\vec{r}) a_3(\vec{r})^* e^{+i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}} \end{cases}$$

avec $\hat{U}_q = \frac{\vec{k}_q}{k_q}$ ($k_q = n \frac{\omega_q}{c}$), $\Delta\vec{k} = \vec{k}_3 + \vec{k}_4 - \vec{k}_1 - \vec{k}_2$ et la constante de couplage $g = 6 \frac{\mu_0}{\epsilon_0} \hbar (\omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4)^{1/2} \frac{\chi^{(3)}}{n^2}$.

b) Ces équations contiennent la relation de Manley-Rowe :

$$\hat{U}_1 \cdot \vec{\text{grad}} \phi_1 = \hat{U}_2 \cdot \vec{\text{grad}} \phi_2 = -\hat{U}_3 \cdot \vec{\text{grad}} \phi_3 = -\hat{U}_4 \cdot \vec{\text{grad}} \phi_4,$$

où $\phi_q(\vec{r}) = |a_q(\vec{r})|^2$ est la densité de flux de photons de l'onde q . Le processus étudié de mélange à quatre ondes peut donc être vu comme la collision de deux photons à ω_1 et ω_2 produisant deux autres photons à ω_3 et ω_4 , ou comme la collision inverse :



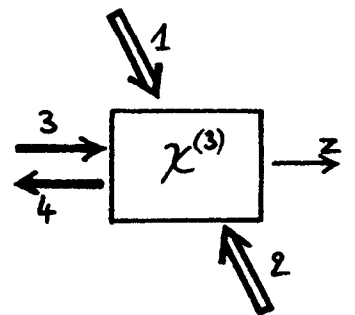
L'énergie est conservée dans ces collisions, $\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 = \hbar\omega_3 + \hbar\omega_4$ étant assuré par $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4$; la conservation de la quantité de mouvement, $\hbar\vec{k}_1 + \hbar\vec{k}_2 = \hbar\vec{k}_3 + \hbar\vec{k}_4$, correspond à l'accord de phase.

La relation de Manley-Rowe permet de déduire la conservation de l'énergie lumineuse : $\sum_{q=1,2,3,4} \hat{u}_q \cdot \text{grad } I_q = 0$, où $I_q(\vec{r}) = \hbar\omega_q \phi_q(\vec{r})$ est l'intensité (W/m^2) de l'onde lumineuse q .

2) Conjugaison de phase optique

On se place dans le cas où les quatre ondes précédentes ont la même pulsation : $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega_4 = \omega$, et où les ondes planes 1 et 2 sont contra-propageantes : $\vec{k}_2 = -\vec{k}_1$. Il a été vu au § II-B-2-c que cette situation permettait que l'onde 4, $\mathcal{E}_0^4 e^{-i\vec{k}_4 \cdot \vec{r}_{int}} e^{i\omega t}$, ait une amplitude conjuguée de celle de l'onde 3, $\mathcal{E}_0^3 e^{-i\vec{k}_3 \cdot \vec{r}_{int}} e^{i\omega t}$: $\vec{k}_4 = -\vec{k}_3$ et $\mathcal{E}_0^4 \propto (\mathcal{E}_0^3)^*$.

Cet effet est réexaminé ici dans le cadre développé au paragraphe précédent, en supposant que les ondes 1 et 2 sont assez intenses pour être



négligeablement perturbées par le mélange à 4 ondes : $a_1(\vec{r}) \approx a_1 = C e^{i\omega t}$ et $a_2(\vec{r}) \approx a_2 = C e^{i\omega t}$. Les équations du § 1-a se simplifient alors en deux équations couplées pour les variables $a_3(z)$ et $a_4(z)$:

$$\begin{cases} \frac{da_3}{dz}(z) + i \frac{k_3}{2} \frac{\bar{n}^2 - n^2}{n^2} a_3(z) = -ig a_1 a_2 a_4(z)^* \\ -\frac{da_4}{dz}(z) + i \frac{k_4}{2} \frac{\bar{n}^2 - n^2}{n^2} a_4(z) = -ig a_1 a_2 a_3(z)^* \end{cases}$$

avec $k_3 = k_4 = n \frac{\omega}{c}$ et $\bar{n}^2 = n^2 + \frac{6\chi^{(3)}}{\epsilon_0} (|\epsilon_0^1|^2 + |\epsilon_0^2|^2)$.

En utilisant les nouvelles variables $b_3(z)$ et $b_4(z)$ définies par

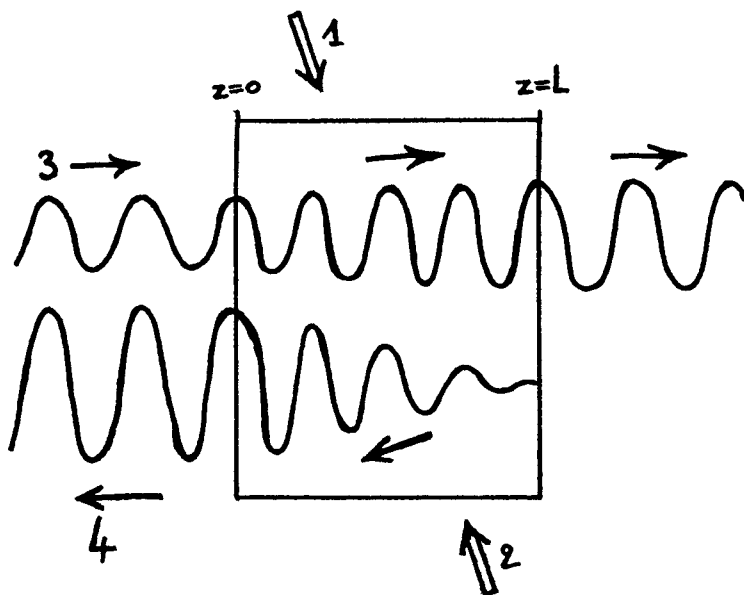
$$a_3(z) = b_3(z) \exp\left[-i \frac{k_3}{2} \frac{\bar{n}^2 - n^2}{n^2} z\right] \text{ et } a_4(z) = b_4(z) \exp\left[+i \frac{k_4}{2} \frac{\bar{n}^2 - n^2}{n^2} z\right],$$

l'effet Kerr optique dû aux ondes 1 et 2 se retrouve contenu dans les facteurs de phase ci-dessus, et le couplage entre les ondes 3 et 4

s'exprime par les équations

$$\begin{cases} b_3'(z) = -ig a_1 a_2 b_4(z)^* \\ b_4'(z) = +ig a_1 a_2 b_3(z)^* \end{cases}$$

Ce système s'intègre par la démarche déjà utilisée au § B (obtention d'une équation pour $b_3(z)$ seul, d'où l'expression générale de $b_3(z)$ puis celle de $b_4(z) = b_3'(z)^* / ig a_1^* a_2^*$). Avec les conditions aux limites $b_3(0) \neq 0$ et $b_4(L) = 0$, il vient finalement:



$$\begin{cases} b_3(z) = \frac{b_3(0)}{\cos \gamma L} \cos \gamma(L-z) \\ b_4(z) = -i \frac{a_1 a_2}{|a_1 a_2|} \frac{b_3(0)^*}{\cos \gamma L} \sin \gamma(L-z) \end{cases}$$

où $\gamma = g |a_1| |a_2|$.

Ces résultats attirent les remarques suivantes:

(i) on a $a_4(z) \propto a_3(z)^*$ et l'onde 4 est une version conjuguée de l'onde 3 incidente : $\epsilon_0^4 e^{-ik_4 \cdot \vec{r}} \propto (\epsilon_0^3 e^{-ik_3 \cdot \vec{r}})^*$ (cf. §II-B-2-c);

(ii) puisque $|a_4(0)|^2 = |a_3(0)|^2 \tan^2 \chi L$, l'onde 4 émergente peut être moins intense ou plus intense que l'onde 3 incidente, suivant la valeur prise par $\chi L = g |a_1| |a_2| L$;

(iii) comme $|a_3(L)|^2 = |a_3(0)|^2 / \cos^2 \chi L$, l'onde 3 est amplifiée par sa traversée du milieu non linéaire;

(iv) lorsque $\chi L = \frac{\pi}{2}$, ou un multiple impair de $\frac{\pi}{2}$, les amplitudes des ondes 3 et 4 divergent, ce qui correspond à une instabilité du système qui est alors un oscillateur : une onde 3 vers les $z > 0$ et une onde 4 vers les $z < 0$ sont générées en l'absence d'onde 3 incidente sur le milieu (ce cas se traite en tenant compte des couplages entre les quatre ondes 1, 2, 3 et 4, car les ondes 3 et 4 peuvent atteindre des intensités comparables à celles des ondes 1 et 2).

IV - Réalisation de l'accord de phase

Aux chapitres II et III précédents, les phénomènes de génération de second harmonique et de mélange à trois ou quatre ondes ont été présentés en admettant qu'il était possible de résoudre la question de l'accord de phase. Dans le cas de la génération de second harmonique, par exemple, on a vu qu'une onde (scalaire) $\epsilon_0 \omega e^{-ik_1 z}$ dans un milieu non linéaire d'ordre deux génère une onde de pulsation double $\epsilon_0 2\omega e^{-ik_2 z}$, à condition que la relation d'accord de phase correspondante $k_2 = 2k_1$ soit vérifiée, c'est-à-dire $n^{2\omega} = n^\omega$: l'indice de réfraction à la pulsation optique 2ω doit valoir celui à ω . Cette égalité ne peut pas être réalisée dans un milieu linéaire, homogène et isotrope, caractérisé par un seul indice de réfraction : à cause de la dispersion existant dans tout milieu, cet indice de réfraction est fonction de la pulsation optique, et on a $n^{2\omega} \neq n^\omega$ en général.

Le présent chapitre expose la possibilité de réaliser l'égalité $n^{2\omega} = n^\omega$ dans un milieu optique anisotrope, lorsque les ondes à ω et à 2ω sont portées par des modes de propagation différents. De manière générale, ce chapitre discute des phénomènes non linéaires ^{d'ordre 2} déjà présentés, en justifiant

(enfin) qu'ils puissent effectivement être créés dans un milieu optique anisotrope. Les ondes lumineuses sont traitées dans le cadre de l'Optique électromagnétique, et l'équation d'onde non linéaire générale, vectorielle, est employée; le caractère tensoriel de la susceptibilité non linéaire intervient. La démarche qui est suivie est celle d'une théorie d'ondes couplées semblable à celle du chapitre III; la nouveauté est que le champ électromagnétique dans le milieu se décompose maintenant non plus seulement en composantes spectrales mais aussi en composantes vectorielles de polarisation: par rapport à la théorie scalaire du chapitre III, c'est la polarisation ^{de la lumière} qui apporte le degré de liberté supplémentaire permettant la réalisation de l'accord de phase dans un milieu anisotrope.

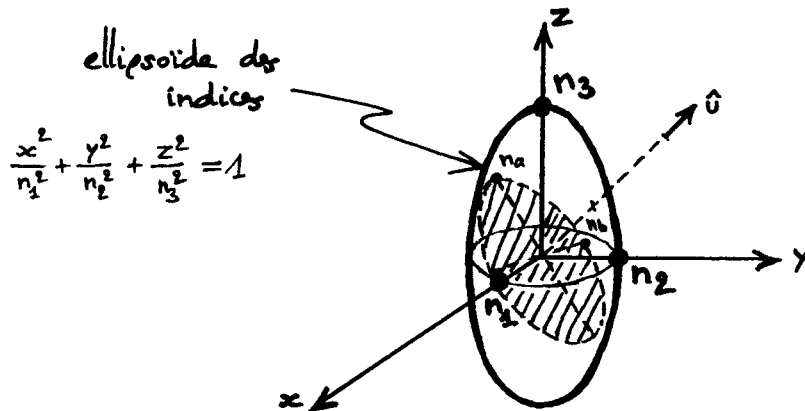
A) Rappels d'Optique anisotrope

1) Milieux anisotropes

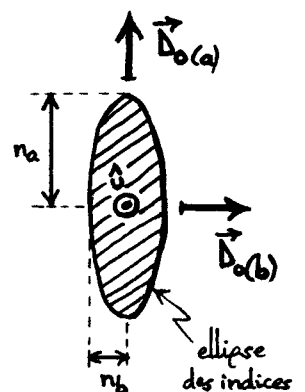
a) Les propriétés optiques d'un milieu ^{linéaire} anisotrope sont caractérisées par l'ellipsoïde des indices, d'équation $\sum_{i,j} \eta_{ij} x_i x_j = 1$ ($i, j = 1, 2, 3$) avec $\eta_{ij} = \eta_{ji}$ les éléments du tenseur d'imperméabilité $\underline{\eta} = \underline{\epsilon}_r^{-1}$; (x_1, x_2, x_3) est un repère cartésien lié au cristal. Les axes principaux (x, y, z) de l'ellipsoïde des indices sont les axes principaux du milieu

optique, dans lesquels la constante diélectrique est diagonale :

$[\epsilon_r] = \begin{bmatrix} n_1^2 & 0 & 0 \\ 0 & n_2^2 & 0 \\ 0 & 0 & n_3^2 \end{bmatrix}$; les dimensions principales de l'ellipsoïde des indices, le long des axes principaux, sont les indices de réfraction principaux n_1, n_2 et n_3 .



b) Dans le milieu, une onde plane de pulsation ω se propageant suivant la direction de vecteur unitaire \hat{u} possède un vecteur $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$ linéaire et orthogonal à \hat{u} , de la forme $\vec{D}_0 e^{i(\omega t - n \frac{\omega}{c} \hat{u} \cdot \vec{r})}$, $\vec{D}_0 \cdot \hat{u} = 0$; les deux polarisations linéaires possibles $\vec{D}_{0(a)}$ et $\vec{D}_{0(b)}$, ainsi que les deux indices de réfraction ^{propres} associés n_a et n_b , sont donnés par la construction géométrique suivante. Le plan normal à \hat{u} et passant par le centre de l'ellipsoïde des indices intercepte cet ellipsoïde suivant une ellipse, dont les directions principales sont suivant $\vec{D}_{0(a)}$ et $\vec{D}_{0(b)}$, et dont les dimensions principales sont les indices de réfraction ^{propres} n_a et n_b . $n_a \neq n_b$ en général : le milieu est dit biréfringent.



Le champ électrique dans le mode de propagation a

ou \mathbf{b} n'est pas ^{en général} orthogonal à $\hat{\mathbf{u}}$; il peut être déterminé par: $\vec{\mathbf{D}} = \epsilon_0 \underline{\epsilon}_r \cdot \vec{\mathbf{E}}$,
 soit, dans les axes principaux du cristal: $D_x = \epsilon_0 n_x^2 E_x$, $D_y = \epsilon_0 n_y^2 E_y$ et
 $D_z = \epsilon_0 n_z^2 E_z$ — relations sur lesquelles il est clair que $\vec{\mathbf{D}} \neq \vec{\mathbf{E}}$.

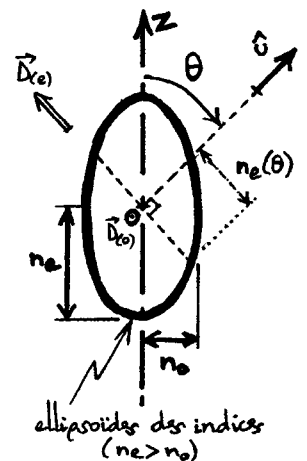
2) Milieux anisotropes uniaxiaux

a) On se limite dans ce cours au cas des milieux anisotropes uniaxiaux:
 $n_x = n_y \neq n_z$. Suivant les notations et le vocabulaire usuels, $n_x = n_y = n_o$ est
 l'indice ^{principal} ordinaire du cristal, $n_z = n_e$ est son indice ^{principal} extraordinaire, et la
 direction z est son axe optique^(*). L'ellipsoïde des indices est de révolution
 autour de l'axe optique; il est allongé suivant cet axe z si $n_e > n_o$
 (milieu uniaxial positif), aplati suivant z si $n_e < n_o$ (milieu uniaxial négatif).

b) Une onde optique plane se propageant dans la direction de $\hat{\mathbf{u}}$, faisant
 l'angle θ avec l'axe optique z , peut être polarisée
 (direction de $\vec{\mathbf{D}}$) de deux façons (cf. § 1.b):

— soit $\vec{\mathbf{D}}_{(e)}$ est orthogonal au plan $(z, \hat{\mathbf{u}})$, et l'indice
 de réfraction ^{propre} associé est $n_a = n_o$ (mode de propagation
 ordinaire, dans lequel $\vec{\mathbf{E}}_{(o)} \propto \vec{\mathbf{D}}_{(o)}$);

— soit $\vec{\mathbf{D}}_{(e)}$ est dans le plan $(z, \hat{\mathbf{u}})$, avec $\vec{\mathbf{D}}_{(e)} \cdot \hat{\mathbf{u}} = 0$, l'indice de réfraction



(*) Seuls les modes de propagation suivant $+z$ ou $-z$ ont deux indices propres égaux, $n_a = n_b = n_o$.

propre
associé étant $n_b = n_e(\theta)$ tel que $\frac{n_e(\theta)^2 \cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{n_e(\theta)^2 \sin^2 \theta}{n_e^2} = 1$

(mode de propagation extraordinaire, dans lequel $\vec{E}_{(e)} \neq \vec{D}_{(e)}$ en général).

c) La surface des indices est une construction géométrique utile pour la suite.

Elle est obtenue en portant, suivant la direction de propagation repérée par

\hat{u} , les valeurs des indices propres n_o et $n_e(\theta)$ correspondant aux deux modes de

propagation. La surface des indices possède ainsi deux

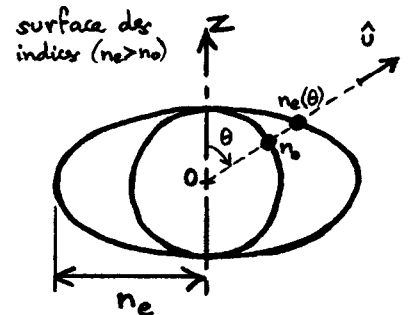
nappes : la nappe ordinaire, associée au mode

de propagation ordinaire, est une sphère de rayon

n_o ; la nappe extraordinaire, associée au mode de propagation extraordinaire,

est un ellipsoïde de révolution autour de l'axe optique z , de demi-axe n_o

suivant z et de rayon principal n_e .



ⓑ Génération de second harmonique

1) Accord de phase de type I

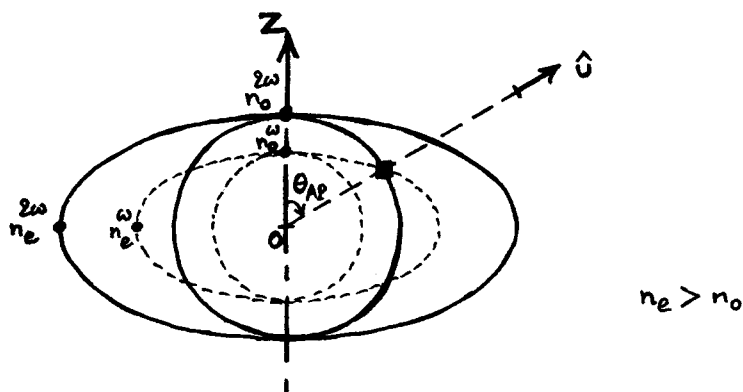
Une onde optique de pulsation ω , de nombre d'onde $k_1 = n^\omega \frac{\omega}{c}$, en génère une autre à la pulsation double 2ω , se propageant dans la même

direction avec le nombre d'onde $k_2 = n^{2\omega} \frac{2\omega}{c}$, si la relation d'accord

de phase $n^{2\omega} = n^\omega$ est vérifiée (cf. § II-A-1-b). On va voir que cette

condition peut être remplie dans un milieu biréfringent uniaxial.

La dispersion d'un milieu uniaxial fait que ses indices de réfraction ordinaire et extraordinaire dépendent de la pulsation optique. On a donc $n_o^{2\omega} \neq n_o^\omega$ et $n_e^{2\omega} \neq n_e^\omega$, et les surfaces des indices à ω et à 2ω sont différentes ; la figure ci-dessous représente la situation pour un milieu uniaxial positif (et dans le cas de la dispersion normale, où les indices de réfraction croissent avec ω).



La surface des indices à ω est en pointillés, celle à 2ω en trait plein.

Lorsque $n_o^\omega < n_o^{2\omega} < n_e^\omega$ (ie si la dispersion $n_o^{2\omega} - n_o^\omega$ est plus faible que

la biréfringence $n_e^\omega - n_o^\omega$), la nappe extraordinaire à ω coupe la nappe

ordinaire à 2ω pour toute direction de propagation faisant l'angle θ_{AP}

avec l'axe optique z :

$$n_e^\omega(\theta_{AP}) = n_o^{2\omega}.$$

L'accord de phase pour la génération de second harmonique est ainsi

réalisé pour une onde à ω de polarisation extraordinaire et une onde

à 2ω de polarisation ordinaire, se propageant toutes les deux suivant

une direction faisant l'angle θ_{AP} (ou $\pi - \theta_{AP}$) avec l'axe optique.

L'angle d'accord de phase θ_{AP} est trouvé en utilisant l'équation de la nappe extraordinaire à ω : $\frac{1}{n_e(\omega)^2} = \frac{\cos^2 \theta}{(n_o)^2} + \frac{\sin^2 \theta}{(n_e)^2}$ (cf. §A-2-b), dans la relation d'accord de phase $n_e(\omega_{AP}) = n_o(2\omega)$. Il vient :

$$\sin^2 \theta_{AP} = \frac{(n_o)^2 - (n_o(2\omega))^2}{(n_o)^2 - (n_e(\omega))^2}.$$

b) Dans le cas d'un milieu uniaxial négatif, un raisonnement identique au précédent montre que l'accord de phase est possible si $n_e < n_e(2\omega) < n_o$.

La relation d'accord de phase prend la forme $n_o(\omega) = n_e(2\omega)$, l'onde à ω ayant une polarisation ordinaire et celle à 2ω une polarisation extraordinaire.

L'angle θ_{AP} est donné par : $\sin^2 \theta_{AP} = [(n_o)^2 - (n_o(2\omega))^2] / [(n_e)^2 - (n_o(2\omega))^2]$.

2) Équations d'ondes couplées (accord de phase de type I)

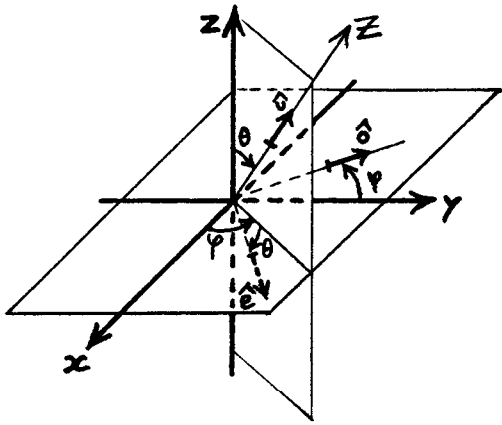
a) Pour établir les équations couplées suivies par les amplitudes des ondes à ω et à 2ω , on suit la procédure employée au § III-A-1-a, en y incluant la polarisation de la lumière. Lorsque l'accord de phase précédent est réalisé ou très proche de l'être (dans un milieu uniaxial positif), le champ optique total dans le milieu est :

$$\vec{E}(\vec{z}, t) = \text{Re} \left\{ \vec{E}^{\omega}(\vec{z}) e^{i\omega t} + \vec{E}^{2\omega}(\vec{z}) e^{i(2\omega)t} \right\},$$

$$\text{où } \vec{E}^{\omega}(\vec{z}) = \vec{E}_o^{\omega}(\vec{z}) e^{-ik_1 z}, \quad k_1 = n_e(\omega) \frac{\omega}{c},$$

$$\text{et } \vec{E}^{2\omega}(\vec{z}) = \vec{E}_o^{2\omega}(\vec{z}) e^{-ik_2 z}, \quad k_2 = n_o(2\omega) \frac{2\omega}{c},$$

sont les amplitudes complexes des ondes à ω et à 2ω ; la propagation est suivant l'axe Z , de vecteur unitaire $\hat{0}$; $\hat{E}_0^\omega(Z)$ et $\hat{E}_0^{2\omega}(Z)$ sont des enveloppes



lentement variables à l'échelle de la longueur d'onde. \hat{e} (resp. \hat{o}) est un vecteur unitaire suivant la polarisation extraordinaire (resp. ordinaire); \hat{e} est dans le plan (z, \hat{u})

et orthogonal à \hat{u} , tandis que \hat{o} est orthogonal au plan (z, \hat{u}) ; les orientations de \hat{e} et \hat{o} sont choisies de façon que $(\hat{u}, \hat{e}, \hat{o})$ corresponde à la base orthogonale habituelle $(\hat{u}_r, \hat{u}_\theta, \hat{u}_\varphi)$ des coordonnées sphériques.

Il est à remarquer que, dans l'expression de $\vec{E}(Z, t)$, le champ électrique de l'onde extraordinaire à ω a été pris parallèle à \hat{e} . Ceci est une approximation, justifiée par le fait que les milieux optiques ont des biréfringences faibles. En effet, on peut montrer que l'angle δ entre \hat{e} et le champ électrique du mode de propagation extraordinaire varie avec θ en suivant la loi

$$\operatorname{tg} \delta = \frac{(n_o^2 - n_e^2) \operatorname{tg} \theta}{n_e^2 + n_o^2 \operatorname{tg}^2 \theta}, \quad -\frac{\pi}{2} < \delta < \frac{\pi}{2}; \quad \text{on en déduit qu'il prend pour } \theta \approx \pm \frac{\pi}{4}$$

des valeurs extrêmes $\pm \delta_{\text{MAX}}$ avec $\delta_{\text{MAX}} \approx \frac{|n_e - n_o|}{n_o}$, lorsque $|n_e - n_o| \ll n_o$.

δ_{MAX} est usuellement plus petit ou de l'ordre de 1° , et atteint au plus quelques

degrés dans les milieux à forte biréfringence. En outre, c'est une bonne chose

que l'approximation en question puisse être faite, puisqu'elle permet que le champ $\vec{E}(z,t)$ dans le milieu vérifie $\text{div} \vec{E} = 0$, condition sous laquelle on peut employer l'équation d'onde non linéaire

$$\frac{1}{c^2} \underline{\epsilon}_r \cdot \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} - \Delta \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2}$$

vue au § I-5-a. On est ici dans un milieu non linéaire d'ordre deux, où la partie non linéaire de la ^{densité de} polarisation de la matière est donnée par

$$P_{NLi} = 2 \sum_{j,k} d_{ijk} E_j E_k, \quad i,j,k \quad \text{référant des coordonnées cartésiennes.}^{(*)}$$

b) Le champ $\vec{E}(z,t)$ pressenti étant injecté dans l'équation d'onde non linéaire ci-dessus, le premier terme fait apparaître $\underline{\epsilon}_r \cdot \hat{e}$ et $\underline{\epsilon}_r \cdot \hat{o}$.

Or, dans un milieu linéaire anisotrope, les équations de Maxwell $\text{rot} \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$

$$\text{et } \text{rot} \vec{B} = \frac{1}{c^2} \underline{\epsilon}_r \cdot \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \text{ conduisent à } \underline{\epsilon}_r \cdot \vec{E}_{(a)} = n_a^2 \vec{E}_{(a)\perp} \text{ et } \underline{\epsilon}_r \cdot \vec{E}_{(b)} = n_b^2 \vec{E}_{(b)\perp}$$

pour chacun des deux modes de propagation a et b (cf. § A-1-b), avec

$$\vec{E}_{(p)}(\vec{r},t) = \vec{E}_{0(p)} \exp[i(\omega t - n_p \frac{\omega}{c} \hat{o} \cdot \vec{r})], \quad p = a \text{ ou } b, \text{ et } \vec{E}_{(p)\perp} \text{ la projection de } \vec{E}_{(p)} \text{ sur un plan orthogonal à } \hat{o};$$

dans le cas d'un milieu biréfringent uniaxial, on a donc $\underline{\epsilon}_r \cdot \hat{o} = n_o^2 \hat{o}$ (car $\vec{E}_{(o)} \parallel \hat{o}$) et également,

puisque l'angle δ entre $\vec{E}_{(a)}$ et \hat{e} est négligé (cf. § a), $\underline{\epsilon}_r \cdot \hat{e} \approx n_e^2 \hat{e}$. Le

membre de gauche de l'équation d'onde non linéaire fait alors

(*) Le repère principal x,y,z est le plus utile en pratique, car c'est dans ce repère que les éléments non nuls de $[d_{ijk}]$ sont d'autant plus rares que le cristal possède plus de symétries.

apparaître une composante spectrale à ω polarisée suivant \hat{e} , et une autre à 2ω polarisée suivant \hat{o} .

De son côté, le terme source $-\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2}$ fait intervenir la ^{densité de} polarisation non linéaire $P_{NLi} = \frac{1}{2} \sum_{j,k} d_{ijk} \left\{ \mathcal{E}^\omega(\mathbf{z}) e_j e^{i\omega t} + \mathcal{E}^{2\omega}(\mathbf{z}) o_j e^{i2\omega t} + c.c. \right\} \times \dots$
 $\dots \times \left\{ \mathcal{E}^\omega(\mathbf{z}) e_k e^{i\omega t} + \mathcal{E}^{2\omega}(\mathbf{z}) o_k e^{i2\omega t} + c.c. \right\}$,

expression sur laquelle on identifie une composante spectrale à ω ,

$\mathcal{P}_{NL} \left\{ \vec{\mathcal{E}}_{NL}^\omega e^{i\omega t} \right\}$, avec : $\mathcal{P}_{NLi}^\omega(\mathbf{z}) = 2 \left(\sum_{j,k} d_{ijk} o_j e_k \right) \mathcal{E}^{2\omega}(\mathbf{z}) \mathcal{E}^\omega(\mathbf{z})^*$, et une

autre à 2ω , d'amplitude : $\mathcal{P}_{NLi}^{2\omega}(\mathbf{z}) = \left(\sum_{j,k} d_{ijk} e_j e_k \right) \mathcal{E}^\omega(\mathbf{z})^2$.

c) L'équation d'onde non linéaire conduit ainsi aux équations couplées suivantes pour les deux ondes à ω et 2ω :

$$\begin{cases} \frac{d^2 \mathcal{E}^\omega}{dz^2}(\mathbf{z}) + k_1^2 \mathcal{E}^\omega(\mathbf{z}) = -2\mu_0 \omega^2 d_{eff} \mathcal{E}^{2\omega}(\mathbf{z}) \mathcal{E}^\omega(\mathbf{z})^* \\ \frac{d^2 \mathcal{E}^{2\omega}}{dz^2}(\mathbf{z}) + k_2^2 \mathcal{E}^{2\omega}(\mathbf{z}) = -\mu_0 (2\omega)^2 d_{eff} \mathcal{E}^\omega(\mathbf{z})^2, \end{cases}$$

avec $d_{eff} = \sum_{i,j,k} d_{ijk} e_i o_j e_k = \sum_{i,j,k} d_{ijk} o_i e_j e_k$, la seconde égalité tenant grâce à la symétrie de Kleinman^(*) sur $[d_{ijk}]$ (cf. §I-4-b).

Ces équations de Helmholtz couplées pour les ondes à ω et 2ω , sont exactement les mêmes que celles qui ont été obtenues au §III-A-1-a, dans le cadre d'une théorie scalaire de la lumière. Tous les résultats

(*) En toute rigueur, la symétrie de Kleinman $d_{ijk} = d_{jik}$ n'est qu'une approximation en présence de dispersion. Ce cours néglige cette subtilité.

physiques discutés au § III-A sont ^{donc} immédiatement transposables ici : relation de Manley-Rowe et interprétation en termes de collisions de photons (§ III-A-2), évolution des intensités des deux ondes à l'accord de phase (§ III-A-3), et effet d'un désaccord de phase (§ III-A-4). Cette similitude avec la théorie scalaire de la lumière provient de la polarisation linéaire des modes de propagation qui existent dans un milieu biréfringent ; mais des différences ^{notables} apparaissent, bien sûr dans l'accord de phase rendu possible, et ^{aussi} dans la dépendance de $\text{deff}(\theta = \theta_{AP}, \psi)$ avec l'angle ψ (cf. la figure de la p. IV-8).

3) Accord de phase de type II

a) La polarisation de la lumière fournissant un degré de liberté supplémentaire (par rapport à une théorie scalaire), il est possible de réaliser la génération de second harmonique avec deux ondes à la pulsation ω , l'une polarisée ordinairement : $\hat{o} \sum_{(o)}^{\omega}(\mathbf{z}) e^{i\omega t}$ avec $\sum_{(o)}^{\omega}(\mathbf{z}) = \sum_{(o)}^{\omega}(\mathbf{z}) e^{-in_o^{\omega} \frac{\omega}{c} \mathbf{z}}$, et l'autre extraordinairement : $\hat{e} \sum_{(e)}^{\omega}(\mathbf{z}) e^{i\omega t}$ avec $\sum_{(e)}^{\omega}(\mathbf{z}) = \sum_{(e)}^{\omega}(\mathbf{z}) e^{-in_e^{\omega}(\theta) \frac{\omega}{c} \mathbf{z}}$, ces ondes se propageant dans la même direction définie par \hat{o} (cf. figure de la page IV-8). Les enveloppes $\sum_{(o,e)}^{\omega}(\mathbf{z})$ sont supposées lentement variables à l'échelle de la longueur d'onde.

Le champ total dans le milieu est de la forme :

$$\vec{E}(z,t) = \mathcal{P}oe \left\{ \hat{o} \xi_{(o)}^{\omega}(z) e^{i\omega t} + \hat{e} \xi_{(e)}^{\omega}(z) e^{i\omega t} + \hat{p} \xi^{\omega}(z) e^{2i\omega t} \right\},$$

où la polarisation $p = o$ ou $p = e$ de l'onde à 2ω est encore

inconnue. La ^{densité de} polarisation non linéaire $P_{NLi} = 2 \sum_{jk} d_{ijk} E_j E_k$ possède une composante spectrale à 2ω , dont l'amplitude complexe est trouvée égale à $\mathcal{P}_{NLi}^{2\omega}(z) = \sum_{jk} d_{ijk} [o_j \xi_{(o)}^{\omega}(z) + e_j \xi_{(e)}^{\omega}(z)] [o_k \xi_{(o)}^{\omega}(z) + e_k \xi_{(e)}^{\omega}(z)]$. Dans

la source de rayonnement $-\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2}$, la composante spectrale à 2ω

(d'amplitude $\mu_0 (2\omega)^2 \mathcal{P}_{NLi}^{2\omega}(z)$) peut ne retenir que les termes en

$\xi_{(o)}^{\omega}(z) \xi_{(o)}^{\omega}(z)$ car les accords de phase de type I qui engageraient soit uniquement la polarisation ordinaire, soit uniquement la polarisation

extraordinaire à ω , sont supposés ne pas être réalisés. La source de

rayonnement à 2ω qui est intéressante a donc une amplitude

$$2\mu_0 (2\omega)^2 \left[\sum_{jk} d_{ijk} o_j e_k \right] \xi_{(o)}^{\omega}(z) \xi_{(e)}^{\omega}(z).$$

b) Cette source a pour nombre d'onde $n_o \frac{\omega}{c} + n_e(\theta) \frac{\omega}{c}$. L'accord de phase est réalisé lorsque le nombre d'onde $n_p \frac{2\omega}{c}$ de l'onde à 2ω est égal à celui de la source, soit :

$$n_p^{2\omega} = \frac{1}{2} \left(n_o^{\omega} + n_e^{\omega}(\theta) \right),$$

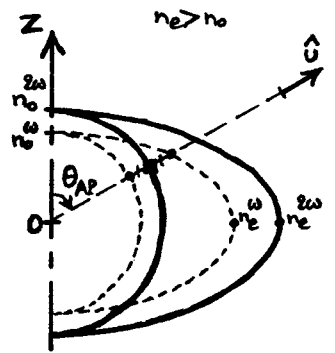
ie : l'indice de réfraction ^{propre} à 2ω est la moyenne des indices ^{propre} ordinaire et

extraordinaire à ω . Dans un milieu uniaxial positif, cet accord de phase est possible avec une polarisation ordinaire pour l'onde de second harmonique ($p=0$), à condition que $n_o^{2\omega} < \frac{1}{2}(n_o^\omega + n_e^\omega)$; l'angle d'accord de phase θ_{AP} est déterminé par

$$n_o^{2\omega} = \frac{1}{2} [n_o^\omega + n_e^\omega(\theta_{AP})],$$

soit, en utilisant l'expression de $n_e^\omega(\theta)$ en

fonction de θ (cf. § A-2-b):
$$\sin^2 \theta_{AP} = \frac{(n_o^\omega)^2 - (2n_o^{2\omega} - n_o^\omega)^2}{(n_o^\omega)^2 - (n_e^\omega)^2}.$$

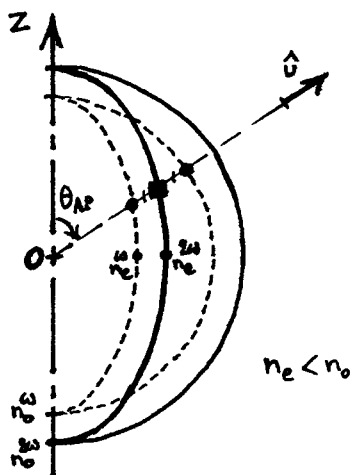


↳ Dans le cas d'un milieu uniaxial négatif, l'accord de phase de type II est réalisable (*) avec une onde à 2ω polarisée extraordinairement ($p=e$); la

relation d'accord de phase s'écrit $n_e^{2\omega}(\theta_{AP}) = \frac{1}{2} [n_o^\omega + n_e^\omega(\theta_{AP})]$, soit:

$$2 \left\{ \frac{\cos^2 \theta_{AP}}{(2\omega)^2} + \frac{\sin^2 \theta_{AP}}{(n_e^\omega)^2} \right\}^{-1/2} = n_o^\omega + \left\{ \frac{\cos^2 \theta_{AP}}{(n_o^\omega)^2} + \frac{\sin^2 \theta_{AP}}{(n_e^\omega)^2} \right\}^{-1/2},$$

égalité qui ne permet pas d'obtenir une expression analytique déterminant l'angle d'accord de phase θ_{AP} . θ_{AP} est alors obtenu soit exactement à



l'aide d'un programme numérique, soit de façon

approchée en utilisant un facteur d'homothétie

artificielle $\alpha = \frac{n_e^{2\omega}}{n_e^\omega} \approx \frac{n_o^{2\omega}}{n_o^\omega}$ entre les deux

nappes extraordinaires à ω et à 2ω , ce qui

permet de tirer $\sin^2 \theta_{AP} \approx [(\alpha-1)^2 - 1] / [(\frac{n_o^\omega}{n_e^\omega})^2 - 1]$

(*) si $n_e^{2\omega} < (n_o^\omega + n_e^\omega)/2$

(On peut d'ailleurs procéder par itération, en prenant un nouveau facteur

$\alpha = \frac{n_e^{2\omega}(\theta_{AP})}{n_e^{\omega}(\theta_{AP})}$ pour calculer une deuxième valeur plus précise de θ_{AP} , et ainsi de suite jusqu'à la précision voulue).

4) Équations d'ondes couplés pour l'accord de phase de type II

Les équations qui exeriment le couplage entre les trois ondes précédentes (deux à ω et une à 2ω) se construisent de la même façon qu'au § 2 concernant l'accord de phase de type I. La source de rayonnement à 2ω créée par les deux ondes à ω , a été calculée (cf. § 3.a). Il reste à évaluer la source à ω ; son amplitude complexe est trouvée égale à

$$2\mu_0 \omega^2 \left\{ \left(\sum_{ijk} d_{ijk} o_j o_k \right) \mathcal{E}^{2\omega}(\mathbf{z}) \mathcal{E}_{(o)}^{\omega}(\mathbf{z})^* + \left(\sum_{jkl} d_{jkl} o_j o_k \right) \mathcal{E}^{2\omega}(\mathbf{z}) \mathcal{E}_{(e)}^{\omega}(\mathbf{z})^* \right\}$$

(on se place dans un milieu uniaxial positif); le premier terme, de nombre d'onde $n_o^{2\omega} \frac{2\omega}{c} - n_o^{\omega} \frac{\omega}{c}$ proche de $n_e^{\omega}(\theta) \frac{\omega}{c}$ au voisinage de l'accord de phase, contribue à l'onde extraordinaire à ω , tandis que le second terme, de nombre d'onde $n_o^{2\omega} \frac{2\omega}{c} - n_e^{\omega}(\theta) \frac{\omega}{c} \sim n_o^{\omega} \frac{\omega}{c}$, contribue à l'onde ordinaire à ω .

L'équation d'onde non linéaire vérifiée par le champ total $\vec{E}(\mathbf{z}, t)$ du § 3.a^(*), donne alors par projections sur les composantes spectrales et sur les polarisations des ondes:

(*) Avec $p=0$ ici (milieu uniaxial positif).

$$\begin{cases} \frac{d^2 \mathcal{E}_o^{\omega}}{dz^2}(z) + \left(n_o \frac{\omega}{c}\right)^2 \mathcal{E}_o^{\omega}(z) = -2\mu_o \omega^2 d_{\text{eff}} \mathcal{E}^{2\omega}(z) \mathcal{E}_o^{\omega}(z)^* \\ \frac{d^2 \mathcal{E}_o^{\omega}(\theta)}{dz^2}(z) + \left(n_e(\theta) \frac{\omega}{c}\right)^2 \mathcal{E}_o^{\omega}(z) = -2\mu_o \omega^2 d_{\text{eff}} \mathcal{E}^{2\omega}(z) \mathcal{E}_o^{\omega}(z)^* \\ \frac{d^2 \mathcal{E}^{2\omega}}{dz^2}(z) + \left(n_o \frac{2\omega}{c}\right)^2 \mathcal{E}^{2\omega}(z) = -2\mu_o (2\omega)^2 d_{\text{eff}} \mathcal{E}_o^{\omega}(z) \mathcal{E}_o^{\omega}(z) \end{cases}$$

avec $d_{\text{eff}} = \sum_{ijk} d_{ijk} o_i o_j e_k$. Ces 3 équations de Helmholtz couplées sont exactement semblables aux équations du mélange à trois ondes obtenues au § III-B-a ; en effet, les trois ondes en jeu ici sont caractérisées par leur pulsation et leur polarisation, et sont donc différentes deux à deux.

Dans un milieu uniaxial négatif, les mêmes équations sont obtenues avec une onde à 2ω de polarisation extraordinaire :

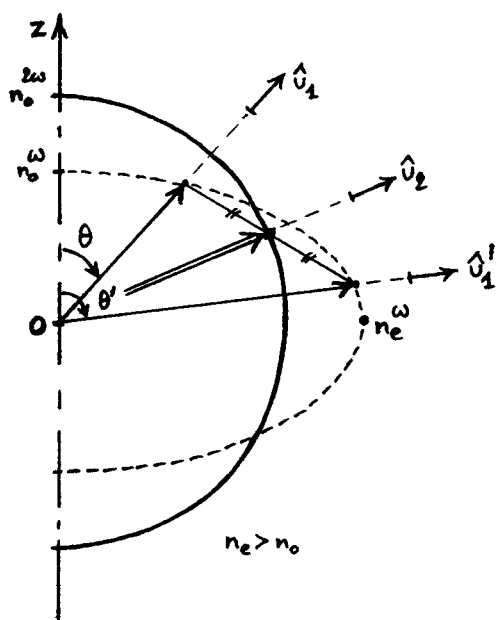
$n_e^{2\omega}(\theta)$ remplace $n_o^{2\omega}$ et d_{eff} devient $d_{\text{eff}} = \sum_{ijk} d_{ijk} o_i e_j e_k$.

5) Accord de phase vectoriel

La génération de second harmonique peut également se produire avec deux ondes à ω n'ayant pas la même direction de propagation dans le milieu. En considérant par exemple l'accord de phase de type I dans un milieu biréfringent positif, les deux ondes à ω sont de polarisation extraordinaire (cf. § 1-a) et s'écrivent

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{o(e)}^{\omega} \hat{e}_1 e^{-ik_1 \cdot \vec{r}} \quad , \quad \vec{k}_1 = n_e^{\omega}(\theta) \frac{\omega}{c} \hat{u}_1 \\ \text{et} \quad \mathcal{E}_{o(e)}^{\omega} \hat{e}'_1 e^{-ik'_1 \cdot \vec{r}} \quad , \quad \vec{k}'_1 = n_e^{\omega}(\theta') \frac{\omega}{c} \hat{u}'_1. \end{aligned}$$

La source de rayonnement à 2ω ^{qui} fait intervenir le produit de ces deux ondes, possède un vecteur d'onde $\vec{k}_2 = \vec{k}_1 + \vec{k}_1'$. L'onde de second harmonique, polarisée ordinairement, est générée lorsque son vecteur d'onde $\vec{k}_2 = n_o \frac{2\omega}{c} \hat{u}_2$ coïncide avec celui de la source : $\vec{k}_2 = \vec{k}_1 + \vec{k}_1'$, soit : $n_o \hat{u}_2 = \frac{1}{2} (n_e(\theta) \hat{u}_1 + n_e(\theta') \hat{u}_1')$.



Un tel accord de phase vectoriel est représenté sur la figure ci-contre, où, pour la clarté, sont seules représentées la nappe extraordinaire de la surface des indices à ω et la nappe ordinaire de celle à 2ω . Cette figure montre un cas où les vecteurs

d'onde des deux ondes à ω appartiennent au même plan axial passant par l'axe optique z . D'autres solutions existent pour \hat{u}_1 et \hat{u}_1' n'appartenant pas au même plan axial.

© Mélange à trois ondes

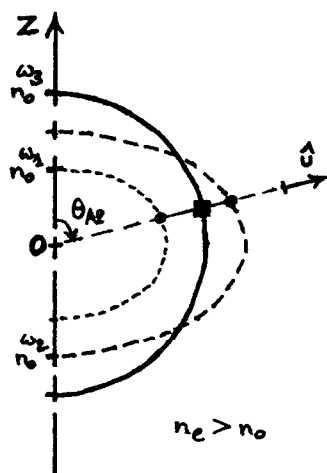
1) Accord de phase

Dans le mélange à trois ondes (cf. § III-B), trois ondes planes progressives de pulsations ω_1 , ω_2 et $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ différentes deux à deux,

interagissent mutuellement lorsque leurs vecteurs d'onde respectifs \vec{k}_1 , \vec{k}_2 et \vec{k}_3 vérifient la relation d'accord de phase $\vec{k}_3 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$. Deux ondes quelconques parmi les trois se combinent alors pour contribuer à la troisième; les trois ondes sont dites en interaction paramétrique.

Lorsque les trois ondes se propagent dans la même direction, la relation d'accord de phase s'écrit $n^{\omega_3} \omega_3 = n^{\omega_1} \omega_1 + n^{\omega_2} \omega_2$: l'indice de réfraction ^{propre} à la pulsation ω_3 , n^{ω_3} , doit être la moyenne des indices _{propres} n^{ω_1} et n^{ω_2} pondérés avec $\frac{\omega_1}{\omega_1 + \omega_2}$ et $\frac{\omega_2}{\omega_1 + \omega_2}$ respectivement.

Par exemple, la figure ci-dessous (*) montre l'accord de phase dans un milieu



uniaxial positif, pour des ondes à ω_1 et à ω_2 de polarisation extraordinaire, l'onde à ω_3 étant alors polarisée ordinairement (seules sont représentées les nappes des surfaces des indices qui interviennent ici).

Dans cet exemple, l'angle d'accord de phase

θ_{AP} qui repère la direction de propagation commune des trois ondes,

est fixé par: $\omega_3 n_o^{\omega_3} = \omega_1 n_e^{\omega_1}(\theta_{AP}) + \omega_2 n_e^{\omega_2}(\theta_{AP})$,

$n_e^{\omega}(\theta)$ étant donné par la relation du § A-2-b.

(*) Il est clair sur cette figure que $\omega_2 > \omega_1$.

2) Équations d'ondes couplées

Les équations d'ondes couplées pour le mélange à trois ondes s'obtiennent par la même procédure que d'habitude (cf. § B-2 ou § B-4). En poursuivant sur l'exemple du paragraphe précédent, les trois ondes en interaction sont

$$\begin{cases} \hat{e} \mathcal{E}^{\omega_1}(z) e^{i\omega_1 t}, & \mathcal{E}^{\omega_1}(z) = \mathcal{E}_0^{\omega_1}(z) e^{-in_e(\theta) \frac{\omega_1}{c} z} \\ \hat{e} \mathcal{E}^{\omega_2}(z) e^{i\omega_2 t}, & \mathcal{E}^{\omega_2}(z) = \mathcal{E}_0^{\omega_2}(z) e^{-in_e(\theta) \frac{\omega_2}{c} z} \\ \hat{o} \mathcal{E}^{\omega_3}(z) e^{i\omega_3 t}, & \mathcal{E}^{\omega_3}(z) = \mathcal{E}_0^{\omega_3}(z) e^{-in_o \frac{\omega_3}{c} z}, \end{cases}$$

où les enveloppes $\mathcal{E}_0^{\omega_j}(z)$, $j=1,2,3$, sont lentement variables dans l'espace.

Les notations de la figure de la page IV-8 ont été utilisées.

La somme de ces trois ondes suit l'équation d'onde non linéaire, dont les projections sur les composantes spectrales et leur polarisation fournissent:

$$\begin{cases} \frac{d^2 \mathcal{E}^{\omega_1}}{dz^2}(z) + \left(n_e(\theta) \frac{\omega_1}{c}\right)^2 \mathcal{E}^{\omega_1}(z) = -2\mu_0 \omega_1^2 d_{\text{eff}} \mathcal{E}^{\omega_2}(z)^* \mathcal{E}^{\omega_3}(z) \\ \frac{d^2 \mathcal{E}^{\omega_2}}{dz^2}(z) + \left(n_e(\theta) \frac{\omega_2}{c}\right)^2 \mathcal{E}^{\omega_2}(z) = -2\mu_0 \omega_2^2 d_{\text{eff}} \mathcal{E}^{\omega_1}(z)^* \mathcal{E}^{\omega_3}(z) \\ \frac{d^2 \mathcal{E}^{\omega_3}}{dz^2}(z) + \left(n_o \frac{\omega_3}{c}\right)^2 \mathcal{E}^{\omega_3}(z) = -2\mu_0 \omega_3^2 d_{\text{eff}} \mathcal{E}^{\omega_1}(z) \mathcal{E}^{\omega_2}(z). \end{cases}$$

Ces trois équations de Helmholtz couplées sont exactement celles du § III-B-a,

avec $d_{\text{eff}} = \sum_{ijk} d_{ijk} e_i e_j o_k$. Tous les effets physiques décrits au § III-B, dans

une approche scalaire de la lumière, sont donc bien réels, le présent

développement apportant des précisions sur la polarisation des trois ondes en

interaction paramétrique et sur la réalisation de l'accord de phase.

Ainsi, au voisinage ^{immédiat} de l'accord de phase et lorsque $\Delta k \neq 0$, les phénomènes de conversion de fréquence optique (§ III-B-1 et § III-B-2a), d'amplification (§ III-B-2-b) ou d'oscillation (§ III-B-3) paramétriques mélangent non seulement les pulsations des trois ondes lumineuses en interaction, mais aussi les polarisations qui leur sont associées: les objets physiques en interaction sont des modes de propagation du champ électromagnétique, caractérisés par leur pulsation, leur vecteur d'onde et leur polarisation.

Annexe au chapitre IV: Optique non linéaire en milieu dispersif

On a vu que la dispersion, c'est-à-dire la variation des indices de réfraction principaux avec la pulsation optique ω , joue un rôle important dans la génération de second harmonique, en l'interdisant lorsqu'un seul indice de réfraction intervient (cf. § II-A-1-b et § AII-1) et en intervenant dans la détermination de l'angle d'accord de phase dans un milieu anisotrope (cf. § B-1 et § B-3). Cependant, par souci de simplicité, le traitement de la dispersion dans ce cours, bien que finalement exact, n'a pas été mené de façon tout à fait rigoureuse: utilisant une équation d'onde non linéaire obtenue en l'absence de dispersion (cf. § I-5), on a remplacé le facteur n^2 — ou bien le tenseur $\underline{\epsilon}_r$ — par $(n^\omega)^2$ ou $(n^{2\omega})^2$ (cf. § II-A-1-b) — ou bien par $(n_o^\omega)^2 \hat{o}\hat{o} + (n_e^\omega)^2 \hat{e}\hat{e}$ ou $(n_o^{2\omega})^2 \hat{o}\hat{o} + (n_e^{2\omega})^2 \hat{e}\hat{e}$ (cf. § B) — suivant qu'il était appliqué à une composante spectrale du champ électrique à ω ou à 2ω .

Le traitement rigoureux du rôle de la dispersion en Optique non linéaire est présenté dans cette annexe, où l'on s'appuyera sur l'exemple de la génération de second harmonique. Les résultats déjà obtenus seront retrouvés, finalement accompagnés de ce raffinement supplémentaire que la susceptibilité non linéaire effective doit dépendre de la pulsation optique.

1) Densités de polarisation linéaire et non linéaire

a) Le § AI-2 a déjà présenté l'expression de la densité de polarisation linéaire, dans un milieu homogène présentant de la dispersion :

$$\vec{P}_{\text{lin.}}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int dt' [R(t')] \vec{E}(\vec{r}, t-t'),$$
 où $[R(t)]$ est la réponse (réelle) linéaire du milieu (vérifiant $[R(t < 0)] = 0$ par causalité). Si le champ électrique est harmonique à la pulsation ω : $\vec{E}(\vec{r}, t) = \text{Re}\{\vec{E}^{\omega}(\vec{r}) e^{i\omega t}\}$, alors la densité de polarisation linéaire est à la même pulsation : $\vec{P}_{\text{lin.}}(\vec{r}, t) = \text{Re}\{\vec{P}_{\text{lin.}}^{\omega}(\vec{r}) e^{i\omega t}\}$, avec une amplitude complexe $\vec{P}_{\text{lin.}}^{\omega}(\vec{r}) = \epsilon_0 [\chi(\omega)] \vec{E}^{\omega}(\vec{r})$ où la susceptibilité linéaire $[\chi(\omega)]$ est la transformée de Fourier de la fonction de réponse linéaire :

$$[\chi(\omega)] = \int dt [R(t)] e^{-i\omega t}, \text{ ie } \chi_{ij}(\omega) = \int dt R_{ij}(t) e^{-i\omega t} \quad (i, j = 1, 2 \text{ ou } 3).$$

b) En se limitant ici à la description de la non-linéarité d'ordre deux d'un milieu diélectrique, la densité de polarisation non linéaire $\vec{P}_{\text{NL}} = \vec{P} - \vec{P}_{\text{lin.}}$ qu'il porte s'exerime sous la forme ($i = 1, 2 \text{ ou } 3$) :

$$P_{\text{NL}i}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \sum_{j,k} \int dt' \int dt'' R_{ijk}^{(2)}(t', t'') E_j(\vec{r}, t-t') E_k(\vec{r}, t-t''),$$

où les fonctions $R_{ijk}^{(2)}(t', t'')$ sont les composantes du tenseur de réponse non linéaire ^{d'ordre deux} $[R^{(2)}(t', t'')]$. Par causalité, $R_{ijk}^{(2)}(t', t'') = 0$ dès que $t' < 0$ ou $t'' < 0$.

Si $[R^{(2)}(t', t'')]$ n'est non nul que pour des temps t' et t'' très courts devant la période optique, alors on peut écrire $E_j(\vec{r}, t-t') \approx E_j(\vec{r}, t)$ et

$E_k(\vec{r}, t-t'') \approx E_k(\vec{r}, t)$ dans l'expression de $P_{NLi}(\vec{r}, t)$, et il vient alors

$$P_{NLi}(\vec{r}, t) \approx \epsilon_0 \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_j(\vec{r}, t) E_k(\vec{r}, t) \quad \text{avec} \quad \chi_{ijk}^{(2)} = \int dt' \int dt'' R_{ijk}^{(2)}(t', t'').$$

C'est dans ce cas particulier que l'on s'est placé dans ce cours^(*), en utilisant le changement de notation $[d] = \frac{\epsilon_0}{2} [\chi^{(2)}]$. Cependant, pour être cohérent avec la prise en compte de la dispersion affectant la densité de polarisation linéaire (cf. § a), cette description ^{simplifiée} doit être abandonnée, et c'est l'expression exacte de la densité de polarisation non linéaire $P_{NLi}(\vec{r}, t)$ qui doit être employée.

2) Équation d'onde non linéaire dispersive

En procédant suivant la démarche empruntée au § I-5-a, la densité de polarisation linéaire étant maintenant exprimée comme au § 1-a, on trouve l'équation d'onde non linéaire suivie par la charge électrique $\vec{E}(\vec{r}, t)$ dans un milieu homogène présentant de la dispersion :

$$\frac{1}{c^2} \left\{ \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2}(\vec{r}, t) + \int dt' [R(t')] \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2}(\vec{r}, t-t') \right\} - \Delta \vec{E}(\vec{r}, t) = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2}(\vec{r}, t).$$

$\vec{P}_{NL}(\vec{r}, t)$ est la partie non linéaire de la densité de polarisation; dans le cas d'un milieu non linéaire d'ordre deux, $\vec{P}_{NL}(\vec{r}, t)$ prend la forme vue au § 1-b.

Dans l'établissement de l'équation d'onde non linéaire ci-dessus, on a

(*) Cf. § I-3-b.

considéré que $\text{div } \vec{E} = 0$ (cf. § I-5-a), en prévision de l'utilisation d'ondes planes progressives transverses ou quasi transverses (cf. § IV-B-2-a).

3) Génération de second harmonique en milieu dispersif

On se place dans la situation de la génération de second harmonique de type I, où l'onde à ω est polarisée extraordinairement et l'onde à 2ω ordinairement (cf. § IV-B-1 et § IV-B-2) : le champ électrique total (*)

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \Phi_{0e} \left\{ \mathcal{E}^{\omega}(\vec{z}) \hat{e} e^{i\omega t} + \mathcal{E}^{2\omega}(\vec{z}) \hat{o} e^{i2\omega t} \right\},$$

$$\text{avec } \begin{cases} \mathcal{E}^{\omega}(\vec{z}) = \mathcal{E}_0^{\omega}(\vec{z}) e^{-ik_1 z}, & k_1 = n_e^{\omega}(\theta) \frac{\omega}{c} \\ \mathcal{E}^{2\omega}(\vec{z}) = \mathcal{E}_0^{2\omega}(\vec{z}) e^{-ik_2 z}, & k_2 = n_o^{2\omega} \frac{2\omega}{c}, \end{cases}$$

est injecté dans l'équation d'onde non linéaire du § 2 précédent. On trouve^(*) alors que les amplitudes $\mathcal{E}^{\omega}(\vec{z})$ et $\mathcal{E}^{2\omega}(\vec{z})$ suivent les équations de Helmholtz couplées :

$$\begin{cases} \frac{d^2 \mathcal{E}^{\omega}}{dz^2}(\vec{z}) + k_1^2 \mathcal{E}^{\omega}(\vec{z}) = -2\mu_0 \omega^2 \text{deff}(\omega, 2\omega \rightarrow \omega) \mathcal{E}^{2\omega}(\vec{z}) \mathcal{E}^{\omega}(\vec{z})^* \\ \frac{d^2 \mathcal{E}^{2\omega}}{dz^2}(\vec{z}) + k_2^2 \mathcal{E}^{2\omega}(\vec{z}) = -\mu_0 (2\omega)^2 \text{deff}(\omega, \omega \rightarrow 2\omega) \mathcal{E}^{\omega}(\vec{z})^2, \end{cases}$$

$$\text{avec } \text{deff}(\omega, \omega \rightarrow 2\omega) = \frac{\epsilon_0}{2} \sum_{ijk} \epsilon_i \epsilon_j \epsilon_k \int dt' \int dt'' R_{ijk}^{(2)}(t', t'') e^{-i\omega(t'+t'')}$$

$$\text{et } \text{deff}(\omega, 2\omega \rightarrow \omega) = \frac{\epsilon_0}{2} \sum_{ijk} \epsilon_i \epsilon_j \epsilon_k \int dt' \int dt'' R_{ijk}^{(2)}(t', t'') e^{+i\omega(t'-t'')}.$$

Ces équations couplées pour les ondes lumineuses à ω et 2ω , sont semblables à celles qui sont apparues au § IV-B-2-c. Les seules différences sont que :

(*) Cf. les notations de la figure de la p. IV-8. (**) On utilise $R_{ijk}(t', t'') = R_{ikj}(t'', t')$.

(i) la dispersion sur les indices de réfraction γ soit apparue naturellement;

(ii) les couplages $d_{\text{eff}}(\omega, \omega \rightarrow 2\omega)$ et $d_{\text{eff}}(\omega, 2\omega \rightarrow \omega)$ γ soient

^{entre eux} différents et présentent de la dispersion.

En somme, ce cours a introduit "à la main" mais sans erreur la dispersion affectant les indices de réfraction, et a négligé celle touchant la densité de polarisation non linéaire; si ^{en toute rigueur} cette approche manque ^{maintenant} clairement de cohérence (on ne peut justifier que la dispersion intervienne sur la partie linéaire de la densité de polarisation, et soit dans le même temps absente sur sa partie non linéaire), elle est cependant largement satisfaisante pour un cours d'introduction à l'optique non linéaire.
