

Table des Matières

Introduction Générale	4
0.1 Note historique	4
0.2 Contribution	5
1 Rappels et problématique	8
1.1 Introduction	8
1.2 Rappels des concepts généraux	8
1.2.1 Définition d'un milieu linéaire homogène et isotrope	8
1.2.2 Définition d'un milieu non linéaire et anisotrope	10
1.3 Quelques types d'interactions non linéaires quadratiques	10
1.3.1 Les équations de Maxwell dans un milieu diélectrique	12
1.3.2 Propagation dans les milieux non linéaires homogènes	16
1.4 Problématique	23
1.4.1 position du problème	23
1.4.2 Modèle anharmonique	23
1.5 Conclusion	24
2 Résolution du problème et discussion	26
2.1 Introduction	26
2.2 Détermination des sources non linéaires dans l'approximation dipolaire	26

2.3	Modélisation de l'interaction matière rayonnement dans les matériaux diélectriques	27
2.3.1	Modèle anharmonique	27
2.4	Les conditions nécessaires pour l'activité optique quadratique	33
2.5	Matériaux pour l'optique non linéaire	33
2.5.1	Historique	33
2.5.2	Des matériaux pour l'optique non linéaire quadratique	34
2.5.3	Propriétés optiques pour quelques matériaux	37
2.6	Conclusion	43
3	Conversion de fréquence	46
3.1	Introduction	46
3.2	Structure choisie	47
3.2.1	Microlaser déclenché à cavité ultracourte passivement	47
3.2.2	Amplificateur	55
3.2.3	Conversion de fréquence	56
3.3	Conclusion	68
	Conclusion Générale	70
	Bibliographie	71

Introduction Générale

Introduction générale

0.1 Note historique

Il existe dans la nature un échange continu d'énergie entre les atomes, les molécules et le rayonnement électromagnétique. Le soleil est la source principale du rayonnement électromagnétique atteignant la surface de la terre. L'interaction du rayonnement électromagnétique du soleil avec les différents corps se trouvant à la surface de la terre rend compte de la plupart des phénomènes que l'on observe journalièrement, y compris la vie elle-même. L'un des plus important est le phénomène d'interaction: tout interagit avec tout [5].

Les phénomènes de physiques linéaires sont ceux qui obéissent aux principes de proportionnalité et de superposition des états. L'optique linéaire est bien dans ce cas. Mais si l'on irradie un volume d'atomes ou de molécules par une onde électromagnétique dont le champ électrique n'est plus négligeable devant le champ électrique atomique (de l'ordre de $10^{10}V/m$), le milieu matériel interagit avec le champ excitateur de telle sorte que l'onde électromagnétique diffusée se modifie : cette modification ne respecte plus les principes de proportionnalité et de superposition . On rentre dans le domaine des interactions non linéaires [27]. Les effets non linéaires en électricité et magnétisme sont connus dans la gamme des radiofréquences bien avant le 20è siècle (la saturation magnétique dans les ferromagnétiques, la décharge électrique dans les gaz ...) Seulement depuis l'invention du laser (1960), l'optique s'est considérablement renouvelée. Les études de l'interaction lumière-matière prennent un grand essort. Il est convenu maintenant que l'Optique Non Linéaire a vu le jour à la date de publication de l'article de Franken et Co. en 1961 concernant l'observation de la génération du 2nd harmonique dans le vert. Depuis, les découvertes en Optique Non Linéaire se multiplient. Les travaux théoriques en optique non linéaire se perfectionnent et permettent de comprendre de mieux en mieux

les phénomènes non linéaires. La technologie du laser en tire partie en s'améliorant de plus en plus. Actuellement les champs des investigations et ceux des applications de l'optique non linéaire sont extrêmement vastes. Ils touchent presque tous les domaines de la physique. En plus des domaines proprement optique non linéaire comme la propagation non linéaire, les diffusions stimulées, les phénomènes d'absorption multiphotonique, on note des apports importants dans l'étude de la structure de la matière (spectroscopie non linéaire), dans la conception et synthèse des matériaux (recherche des nouveaux matériaux), dans la technologie des lasers à grandes puissances, les domaines de l'énergie, de la communication, l'imagerie, la médecine ...

Dans ce mémoire, on s'intéresse à l'étude entre une onde électromagnétique et un matériaux non linéaire supposé non conductrice (diélectrique) générant une onde "second harmonique". Nous examinerons les effets d'un tel milieu sur le comportement de l'onde électromagnétique. Nous introduisons le concept de cette onde "second harmonique" qui est la base de nombreuses applications. L'étude de la propagation d'une onde électromagnétique dans le milieu nécessite la description de l'onde, du milieu dans lequel elle évolue. De ce fait, on doit faire une modélisation des interactions des charges (les électrons) avec le milieu matériel ce qui est traduit classiquement par une force de frottement et une force de rappel élastique. Le modèle utilisé dans notre travail est : le modèle anharmonique. Le champ est alors décrit par les équations de Maxwell.

0.2 Contribution

Cette étude concerne d'un autre côté les problèmes pratiques qui mettent en jeu l'interaction des champs électromagnétiques avec les milieux matériels au sein desquels sont présentées des molécules. Dans ce cas, nous sommes obligés de consacrer quelques temps à une description du comportement des ondes électromagnétiques dans les milieux matériels, nous le ferons en nous restreignant à des géométries simplifiées essentiellement celle de l'onde plane monochromatique et des milieux diélectriques d'un comportement

lui même particulièrement: les milieux diélectrique, homogène, non magnétique, non linéaire.

Ainsi, dans un premier nous abordons des rappels de quelques notions de base, la représentation de quelques types d'interactions non linéaires. Nous introduirons aussi les termes générant les non linéarités à l'intérieur des équations de Maxwell. Dans notre cas, ces non linéarités sont les termes de polarisation non linéaire donnant naissance au second harmonique, ceci nous amènera à la présentation successive de la problématique, du modèle adapté à notre problème et pour finir au principe de résolution.

Le deuxième chapitre est consacré à la résolution du problème avec une analyse détaillée des résultats de l'étude pratique de ce phénomène, puis à la représentation des propriétés optiques non linéaires pour quelques matériaux.

Ensuite, nous exposons dans le troisième chapitre, une application qui rentre dans le domaine de la Génération de second harmonique.

Ce mémoire se termine par une conclusion sur les travaux présentés et par les perspectives ouvertes par ceux-ci.

PREMIER CHAPITRE

Rappels

Chapitre 1

Rappels et problématique

1.1 Introduction

Afin d'étudier la propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu matériel, on doit prendre en compte les interactions entre le champ électromagnétique et le milieu. L'approche classique que nous considérons s'appuie sur les équations de Maxwell en présence du milieu matériel.

Dans ce premier chapitre, nous présentons quelques notions de base sur les ondes électromagnétiques et le milieu de propagation.

1.2 Rappels des concepts généraux

1.2.1 Définition d'un milieu linéaire homogène et isotrope

Un milieu isotrope est un milieu dont les propriétés sont identiques quelle que soit la direction d'observation, homogène si à une certaine échelle ses propriétés sont identiques d'un point à un autre [1]. Pour permettre un calcul du champ associé, dans un milieu donné à une situation électromagnétique donnée, il convient d'ajouter des relations qui préciseront les propriétés spécifiques du milieu étudié.

Ces relations entre les différents champs des vecteurs impliqués dans les équations de Maxwell constituent ce qu'on appelle « *les relations constitutives* » du milieu étudié, nous nous limiterons ici au cas où ces relations sont linéaires: on dit alors que le milieu est lui-même linéaire.

$$\vec{D} = \varepsilon \vec{E} \quad (1.1)$$

$$\vec{B} = \mu \vec{H} \quad (1.2)$$

$$\vec{J} = \sigma \vec{E} \quad (1.3)$$

Où \vec{D} : le vecteur d'induction (déplacement électrique) (C/m^2).

\vec{B} : l'induction magnétique (*tesla*).

\vec{J} : la densité de courant (A/m^2).

ε : la permittivité diélectrique absolue du milieu.

μ : la perméabilité magnétique absolue du milieu.

σ : la conductivité.

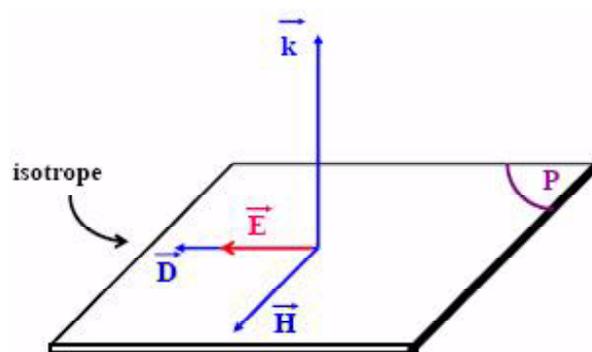


Figure 1.1

1.2.2 Définition d'un milieu non linéaire et anisotrope

Un milieu anisotrope est un milieu dont les propriétés varient suivant la direction ainsi, les « *grandeurs de matière* » qui donnent les propriétés du milieu sont en réalité des grandeurs « *tensorielles* »: conductivité (\vec{J}), susceptibilité diélectrique (\vec{D}) Comme nous l'avons déjà défini pour les milieux linéaires, les milieux non linéaires sont des milieux où les relations constitutives sont des relations non linéaires alors on dit que le milieu lui-même est un milieu non linéaire [2].

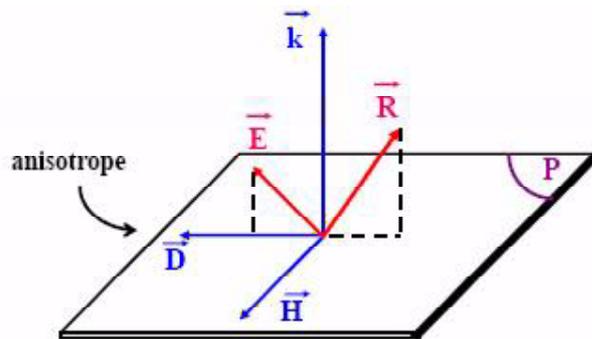


Figure 1.2

1.3 Quelques types d'interactions non linéaires quadratiques

Doublement de fréquence (Génération de Second Harmonique)

La génération de second harmonique (également appelé doublage de fréquence) est un processus d'optique non-linéaire dans lequel des photons interagissant avec un matériau non-linéaire sont combinés pour former de nouveaux photons avec le double de l'énergie, donc avec le double de la fréquence ou la moitié de la longueur d'onde des photons initiaux [3].

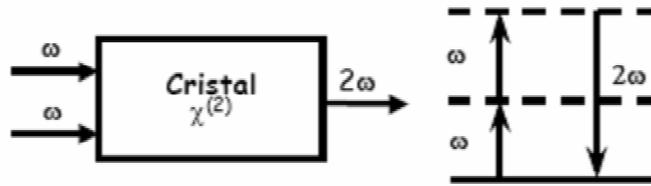


Figure 1.3: Schéma de principe du doublage de fréquence

Somme de fréquence

Le doublement de fréquence n'est qu'un cas particulier d'un processus plus général, la somme de fréquences, dans laquelle deux ondes de fréquences respectives ω_1 et ω_2 interagissent dans le milieu non linéaire pour donner lieu à une onde dont la fréquence $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ satisfait à la relation de conservation de l'énergie [4].

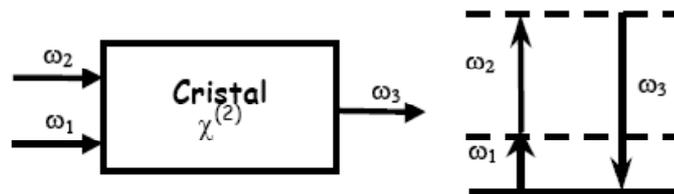


Figure 1.4: Schéma de principe de la somme de fréquence

Différence de fréquence

Le processus de différence de fréquences peut être utilisé pour obtenir une source cohérente accordable dans l'infrarouge par différence de fréquences entre un laser à fréquence fixe ω_1 et un laser à fréquence variable (colorant) à ω_2 .

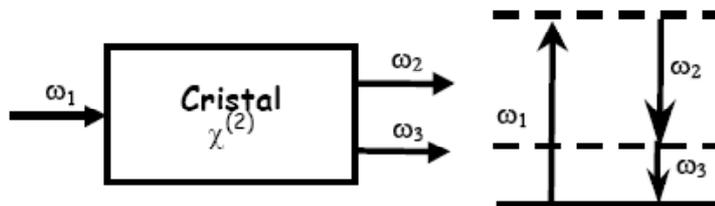


Figure 1.5: Schéma de principe de la différence de fréquence

Il existe une différence importante entre la somme et la différence de fréquences: dans ce dernier cas, pour chaque photon émis à ω_1 , un photon de la fréquence la plus élevée (par exemple ω_3) est détruit et un photon à fréquence plus basse (ω_2) est émis. Ainsi, l'onde de fréquence la plus faible est amplifiée par ce processus de manière purement optique.

1.3.1 Les équations de Maxwell dans un milieu diélectrique

Définition d'un milieu diélectrique

Un diélectrique est un matériau isolant (papier, mica, verre,...) dont les charges sont très fortement liées aux atomes qui le constituent. Il n'existe pratiquement pas d'électron libre dans les diélectriques; ce sont donc de très mauvais conducteurs d'électricité. Leur conductivité est donc très faible, et leur résistivité est comprise entre 10^{17} et $10^{19}\Omega m$ [4].

Les équations de Maxwell

Les équations de Maxwell (1.4) contiennent des dérivées partielles couplées par rapport aux variables de l'espace et du temps des champs vectoriels \vec{E} , \vec{H} , \vec{D} et \vec{B} de la densité de charge ρ et de la densité de courant J . Ce sont les quatre équations fondamentales de la théorie de l'électromagnétisme.

$$\left\{ \begin{array}{l} \operatorname{div} \vec{E} = \frac{\rho}{\varepsilon} = \operatorname{div} (\varepsilon \vec{E}) = \rho = 0 \Rightarrow \operatorname{div} \vec{D} = 0 \\ \operatorname{div} \vec{B} = 0 \\ \operatorname{rot} \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \operatorname{rot} \vec{H} = \vec{J} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \end{array} \right. \quad (1.4)$$

Où: \vec{E} : champ électrique (V/m).

\vec{H} : champ magnétique (A/m).

Modifications dues aux termes non linéaires

Les termes des équations de Maxwell dénotant les effets non linéaires sont présentés dans différents ouvrages [6, 7]. Ils apparaissent tantôt dans le vecteur polarisation reliant le champ électrique au vecteur déplacement électrique tantôt dans les densités de charges et de courants. Il est aussi possible de rencontrer ces termes sous la forme d'un développement multipolaire.

Ici, nous avons rassemblé les termes non linéaires des équations de Maxwell dans une grandeur que nous appelons polarisation effective non linéaire : \vec{P}^{nl} .

A tout moment et en tout lieu de l'espace, une onde électromagnétique vérifie les équations de Maxwell [8]:

$$\begin{cases} \operatorname{div}(\vec{D}(t)) = 0 \\ \operatorname{div}(\vec{B}(t)) = 0 \\ \operatorname{rot}(\vec{E}(t)) = -\frac{\partial \vec{B}(t)}{\partial t} \\ \operatorname{rot}(\vec{H}(t)) = \frac{\partial \vec{D}(t)}{\partial t} \end{cases} \quad (1.5)$$

Où: $\vec{J}(t)$ représente la densité de courant.

$\vec{B}(t)$ et $\vec{D}(t)$ dénotent la réponse du matériau considéré à une excitation électromagnétique. Ces vecteurs sont dépendants du temps t . Les couples $(\vec{E}(t), \vec{B}(t))$ et $(\vec{D}(t), \vec{H}(t))$ sont reliés par les relations constitutives:

$$\begin{aligned} \vec{D}(t) &= \varepsilon_0 \vec{E}(t) + \left(\vec{P}(t) - \operatorname{div}(\vec{Q}(t)) + \dots \right) \\ \vec{H}(t) &= \frac{\vec{B}(t)}{\mu_0} - \left(\vec{M}(t) + \dots \right) \end{aligned} \quad (1.6)$$

Où: ε_0 : La permittivité électrique du vide.

μ_0 : La perméabilité magnétique du vide.

Les grandeurs \vec{P} , \vec{M} , \vec{Q} reflètent l'interaction entre la matière et le rayonnement électromagnétique au travers d'un développement multipolaire. Ce sont respectivement les contributions dipolaire électrique, dipolaire magnétique et quadripolaire électrique engendrées par cette interaction. Les points de suspension reflètent les contributions d'ordre supérieurs.

Nous préférons regrouper les différents effets multipolaires dans une densité de polarisation généralisée \vec{P} défini par l'équation:

$$\begin{aligned} \overrightarrow{rot} \left(\frac{\vec{B}(t)}{\mu_0} \right) &= \frac{\partial \varepsilon_0 \vec{E}(t) + \vec{P}(t)}{\partial t} \\ \text{avec,} & \\ \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} &= \frac{\partial \vec{P} - \text{div}(\vec{Q}(t))}{\partial t} + \overrightarrow{rot}(\vec{M}) \end{aligned} \quad (1.7)$$

\vec{P} , \vec{M} , \vec{Q} contiennent des termes linéaires et non linéaires. Pour les termes linéaires, nous tenons uniquement compte de la contribution dipolaire électrique. \vec{P}^l est relié directement au tenseur diélectrique relatif.

$$\varepsilon_0 \vec{E}(t) + \vec{P}^l = \varepsilon_0 \vec{E}(t) + \vec{P}^l = \varepsilon_0 \overleftarrow{\varepsilon} \vec{E}(t) \quad (1.8)$$

Dans un milieu isotrope, $\overleftarrow{\varepsilon}$ est multiple de la matrice identité : $\overleftarrow{\varepsilon} = \varepsilon \vec{I}$.

Par la suite, nous étudions la génération de second harmonique dans les matériaux anisotropes, le plus souvent, uniaxes où $\overleftarrow{\varepsilon}$ peut être diagonalisé sous une forme semblable à:

$$\overleftarrow{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \varepsilon_1 & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_1 & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_2 \end{pmatrix} \quad (1.9)$$

Pour définir les différents effets non linéaires, il est d'usage de travailler dans l'espace de Fourier fréquentiel. Un vecteur quelconque \vec{E} , \vec{B} , \vec{P} est décrit par sa transformée de

Fourier temporelle:

$$\vec{A}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{A}(\omega) e^{i\omega t} d\omega \quad (1.10)$$

Pour des ondes électromagnétiques, les champs \vec{E} et \vec{B} sont reliés et il est commode d'exprimer \vec{P} en un développement de Taylor.

Dans ce travail, nous n'étudions que la génération de second harmonique. La polarisation non linéaire correspondante peut donc s'écrire:

$$\vec{P}_i^{nl}(2\omega) = \chi_{ijk}^d(2\omega : \omega, \omega) \vec{E}_j(\omega) \vec{E}_k(\omega) + \chi'_{ijkl}(2\omega : \omega, \omega) \vec{E}_j(\omega) \partial_k \vec{E}_l(\omega) + \dots \quad (1.11)$$

Où:

- Les indices i, j, k, l représentent les différentes composantes x, y, z .
- χ^d est un tenseur d'ordre 3. Il est noté χ^2 dans la plupart des manuels sur l'optique non linéaire. Il est purement dipolaire électrique. C'est le premier ordre du développement de Taylor.
- χ' est un tenseur d'ordre 4 et il dénote l'ordre suivant du développement. Il contient des termes d'origine quadripolaire électrique et dipolaire magnétique.
- Les pointillés représentent les termes d'ordre supérieurs du développement de Taylor de la polarisation non linéaire effective.

En générale, nous pouvons dire que les effets de χ' sont négligeables devant ceux créés par χ^d pour les matériaux non centrosymétriques. Mais pour certaines symétries les termes dipolaires s'annulent. La relation liant la contribution dipolaire de la polarisation non linéaire $\vec{P}_i^{nl}(2\omega)$ au champ électrique à la fréquence fondamentale $\vec{E}(\omega)$ étant:

$$\vec{P}_i^{nl}(2\omega) = \chi_{ijk}^d(2\omega : \omega, \omega) \vec{E}_j(\omega) \vec{E}_k(\omega) \quad (1.12)$$

1.3.2 Propagation dans les milieux non linéaires homogènes

La résolution des équations de Maxwell détermine l'évolution du champ électromagnétique dans le système considéré en fonction du temps et de l'espace. Dans ce paragraphe, nous étudions l'évolution de ce champ au travers de l'équation de propagation obtenue grâce aux équations de Maxwell dans l'espace de Fourier fréquentiel.

Nous considérons uniquement le premier et le second harmonique pour lesquels nous résolvons les équations de propagation dans les milieux isotropes et anisotropes homogènes. Nous supposons aussi que le milieu n'est pas magnétique et que l'onde incidente est une onde plane de pulsation ω .

Milieux isotropes

Le matériau considéré est isotrope et conducteur. Le tenseur qui détermine la permittivité électrique relative au milieu est donc diagonalisé et tous ses éléments sont égaux. En d'autres termes, la permittivité ε est un scalaire. La partie linéaire de la polarisation effective devient alors directement proportionnelle au champ électrique et l'équation de propagation s'écrit:

$$r \overrightarrow{\sigma} t \left(r \overrightarrow{\sigma} t \left(\overrightarrow{E}(\omega_n) \right) \right) - \frac{\varepsilon(\omega_n) \omega^2}{c^2} \overrightarrow{E}(\omega_n) = \mu_0 \omega_n^2 \overrightarrow{P}^{nl}(\omega_n) \quad (1.13)$$

Où: ω_n représente à la fois le premier et le second harmonique.

Pour le premier harmonique Les non linéarités sont négligées. Le second terme de l'équation (1.13) est donc nul et l'équation à résoudre devient:

$$r \overrightarrow{\sigma} t \left(r \overrightarrow{\sigma} t \left(\overrightarrow{E}(\omega) \right) \right) - \frac{\varepsilon(\omega) \omega^2}{c^2} \overrightarrow{E}(\omega) = 0 \quad (1.14)$$

La résolution dans ce cas est classique. Nous obtenons une solution de la forme onde plane :

$$\vec{E}(\omega) = \vec{E}_0(\omega) e^{i(\vec{K}(\omega) \cdot \vec{R} - \omega t)} \quad (1.15)$$

Où: $\vec{E}_0(\omega)$ est l'amplitude du champ $\vec{E}(\omega)$

$\vec{K}(\omega)$ est le vecteur d'onde du champ avec les composantes:

$$\vec{K}(\omega) = \begin{pmatrix} \alpha(\omega) \\ \beta(\omega) \\ \gamma(\omega) \end{pmatrix} \quad (1.16)$$

Le module carré du vecteur d'onde est:

$$(K(\omega))^2 = \frac{\varepsilon(\omega) \omega^2}{c^2} \quad (1.17)$$

Pour le second harmonique La résolution n'est pas triviale même si les conditions d'isotropie et de non magnétisme sont maintenues. En effet, il existe un second membre dû à la non linéarité dans l'équation de propagation qui devient:

$$r \vec{\sigma} t \left(r \vec{\sigma} t \left(\vec{E}(2\omega) \right) \right) - \frac{4\varepsilon(2\omega) \omega^2}{c^2} \vec{E}(2\omega) = 4\mu_0 \omega^2 \vec{P}^{nl}(2\omega) \quad (1.18)$$

Quelque soit la source non linéaire, la partie non linéaire de la polarisation effective peut s'écrire avec le formalisme onde plane:

$$\vec{P}^{nl}(2\omega) = \vec{P}_0^{nl}(2\omega) e^{i(\vec{K}^{nl}(2\omega) \cdot \vec{R} - 2\omega t)} \quad (1.19)$$

Où: \vec{P}_0^{nl} est l'amplitude de la polarisation non linéaire effective \vec{P}^{nl} .

Le module carré du vecteur d'onde de la polarisation non linéaire est donné par:

$$(K^{nl}(2\omega))^2 = \frac{4\varepsilon(\omega) \omega^2}{c^2} = 4(K(\omega))^2 \quad (1.20)$$

Pour aller plus loin, le vecteur d'onde de la polarisation non linéaire est défini par $\vec{K}^{nl}(2\omega) = 2\vec{K}(\omega)$. La résolution de l'équation (1.18) se fait en deux temps. Nous résolvons tout d'abord l'équation (1.18) sans second membre.

La solution est comme pour le premier harmonique une onde plane:

$$\vec{E}(2\omega) = \vec{E}_0(2\omega) e^{i(\vec{K}(2\omega) \cdot \vec{R} - 2\omega t)} \quad (1.21)$$

Où:

$$\left(\vec{K}(2\omega)\right)^2 = \frac{4\varepsilon(\omega)\omega^2}{c^2} \quad (1.22)$$

Ensuite, nous cherchons une solution particulière $\vec{E}_p(2\omega)$ de l'équation (1.18) avec le second membre. Cette solution particulière est ajoutée à la solution trouvée sans second membre pour obtenir la solution générale de l'équation de propagation pour le second harmonique:

$$\begin{aligned} \vec{E}(2\omega) = & \vec{E}_0(2\omega) e^{i(\vec{K}(2\omega) \cdot \vec{R} - 2\omega t)} - \frac{4\omega^2}{c^2((K(2\omega))^2 - (K^{nl}(2\omega))^2)} \\ & \times \left(\frac{\vec{P}_0^{nl}(2\omega)}{F_0^{nl}(2\omega)} - \frac{\vec{K}_{nl}(2\omega) \left(\vec{K}_{nl}(2\omega) \cdot \vec{P}_0^{nl}(2\omega) \right)}{(K^{nl}(2\omega))^2} \right) e^{i(\vec{K}_{nl}(2\omega) \cdot \vec{R} - 2\omega t)} \end{aligned} \quad (1.23)$$

Plusieurs remarques peuvent être soulignées. En premier, ce résultat montre que le champ électrique pour le second harmonique généré par les sources non linéaires \vec{P}^{nl} contient deux termes. Le premier est la solution de l'équation (1.18) sans second membre. Quant au second terme, c'est la solution de l'équation (1.18) avec le second membre. Ces deux termes ont une phase différente. En effet d'après les équations (1.20) et (1.22), les deux vecteurs d'onde ne sont généralement pas égaux ($\vec{K}(2\omega) \neq \vec{K}_{nl}(2\omega)$). Ceci implique que la production de champ électromagnétique non linéaire est directement liée à l'accord de phase entre le premier et le second harmonique.

Dans un deuxième temps, nous pouvons dire que si les deux vecteurs d'onde ($\vec{K}(2\omega)$ et $\vec{K}_{nl}(2\omega)$) sont égaux (autrement dit à l'accord de phase $\varepsilon(\omega) = \varepsilon(2\omega)$), le dénominateur

en facteur du deuxième terme du champ électrique de l'équation (1.23) s'annule. Ceci n'est pas très physique, mais nous pouvons dire que, dans ce cas la production de second harmonique est grandement exaltée. Nous introduisons ici la notion d'accord de phase soulignée dans de nombreux ouvrages [9].

Le cas plus général d'un milieu anisotrope est traité dans le paragraphe suivant.

Milieux anisotropes

Le matériau considéré ici est diélectrique anisotrope. La permittivité électrique relative $\overleftarrow{\varepsilon}(\omega_n)$ est un tenseur d'ordre deux:

$$\overleftarrow{\varepsilon}(\omega) = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx}(\omega) & \varepsilon_{xy}(\omega) & \varepsilon_{xz}(\omega) \\ \varepsilon_{xy}(\omega) & \varepsilon_{yy}(\omega) & \varepsilon_{yz}(\omega) \\ \varepsilon_{zx}(\omega) & \varepsilon_{zy}(\omega) & \varepsilon_{zz}(\omega) \end{pmatrix} \quad (1.24)$$

Ce qui implique que la partie linéaire de la polarisation effective n'est plus directement proportionnelle au champ électrique $\overrightarrow{E}(\omega_n)$. Les différentes composantes du champ électrique sont donc couplées dans l'équation de propagation.

Pour le premier harmonique La résolution ne peut plus se faire directement comme dans le cas du milieu isotrope, mais l'équation de propagation s'écrit sous la même forme:

$$r \overrightarrow{\partial} t \left(r \overrightarrow{\partial} t \left(\overrightarrow{E}(\omega) \right) \right) - \frac{\overleftarrow{\varepsilon}(\omega) \omega^2}{c^2} \overrightarrow{E}(\omega) = 0 \quad (1.25)$$

Cette résolution ne peut plus se faire directement puisque la partie linéaire de la permittivité électrique relative est un tenseur de rang deux(1.24). Pour résoudre ce système, nous utilisons une méthode aux valeurs propres discutée dans la thèse de A. Vial.

Pour une onde plane, l'équation différentielle (1.25) devient algébrique, $S(\omega) \overrightarrow{E}(\omega) = 0$.

avec:

$$S(\omega) = \begin{pmatrix} \frac{\varepsilon_{xx}(\omega)\omega^2}{c^2} - \beta^2(\omega) - \gamma^2(\omega) & \frac{\varepsilon_{xy}(\omega)\omega^2}{c^2} + \alpha(\omega) - \beta(\omega) & \frac{\varepsilon_{xz}(\omega)\omega^2}{c^2} + \alpha(\omega)\gamma(\omega) \\ \frac{\varepsilon_{yx}(\omega)\omega^2}{c^2} + \alpha(\omega)\beta(\omega) & \frac{\varepsilon_{yy}(\omega)\omega^2}{c^2} - \alpha^2(\omega) - \gamma^2(\omega) & \frac{\varepsilon_{yz}(\omega)\omega^2}{c^2} + \beta(\omega)\gamma(\omega) \\ \frac{\varepsilon_{zx}(\omega)\omega^2}{c^2} + \alpha(\omega)\gamma(\omega) & \frac{\varepsilon_{zy}(\omega)\omega^2}{c^2} + \beta(\omega)\gamma(\omega) & \frac{\varepsilon_{zz}(\omega)\omega^2}{c^2} - \alpha^2(\omega) - \beta^2(\omega) \end{pmatrix} \quad (1.26)$$

Il s'agit d'un système linéaire homogène dont le déterminant doit être nul. L'équation $(\det(S) = 0)$ conduit à une relation entre les composantes du vecteur d'onde, ω et $\overleftarrow{\varepsilon}(\omega)$ qui est l'équation de dispersion.

Pour un système contenant des interfaces parallèles, nous choisissons l'axe z comme perpendiculaire aux plans moyens des interfaces. Les solutions de $(\det(S(\omega)) = 0)$ sont quatre composantes $\gamma(\omega)$ distinctes du vecteur d'onde. En fait, nous avons deux couples de solutions opposées:

$$(\gamma_1(\omega), \gamma_2(\omega) \neq \gamma_1(\omega)) \text{ et } (\gamma_3(\omega) = -\gamma_1(\omega), \gamma_4(\omega) = -\gamma_2(\omega)) \quad (1.27)$$

Ces quatre solutions sont les valeurs propres de l'opérateur $S(\omega)$. En injectant une à une ces quatre valeurs propres dans l'opérateur $S(\omega)$ de l'équation (1.26), les vecteurs propres correspondants sont calculés en résolvant l'équation (1.25). La forme analytique de ces vecteurs propres est en général très complexe. Elles est discutée dans la thèse de A. Vial. Nous avons donc quatre vecteurs propres qui sont les quatre modes possibles du champ électrique correspondant chacun à une valeur propre $(\overrightarrow{E}_\xi(\omega) \text{ avec } \xi = (1.2.3.4))$:

$$\overrightarrow{E}_\xi(\omega) = \overrightarrow{E}_{o\xi}(\omega) e^{i(\overrightarrow{K}_\xi(\omega) \cdot \overrightarrow{R} - \omega t)} \quad (1.28)$$

Dans un milieu uniaxe, $\vec{E}_1(\omega)$ et $\vec{E}_2(\omega)$ sont les ondes ordinaire et extraordinaire. Le champ total dans un tel milieu est donc la somme des différents modes:

$$\vec{E}(\omega) = \sum_{\xi} \vec{E}_{\xi}(\omega) \quad (1.29)$$

Dans la suite, nous résolvons les équations de Maxwell pour exprimer les champs présents dans le système en fonction de l'onde incidente. Dans cette optique, nous exprimons les vecteurs propres sous la forme du produit de leur norme par le vecteur exprimant leur polarisation:

$$\begin{aligned} \vec{E}_{\xi}(\omega) &= \vec{E}_{\xi}(\omega, t) \vec{V}_{\xi}(\omega) \\ &= E_{o\xi}(\omega, t) \vec{V}_{\xi} e^{i(\vec{K}_{\xi}(\omega) \cdot \vec{R} - \omega t)} \end{aligned} \quad (1.30)$$

Où $\vec{V}_{\xi}(\omega)$ est le vecteur unitaire indiquant la polarisation du mode $\vec{E}_{\xi}(\omega)$ et son amplitude est dénotée par $E_{o\xi}(\omega)$. Dans ce formalisme, le vecteur V_{ξ} est donné à partir de la valeur propre γ_{ξ} . Ce vecteur n'est donc pas un inconnu contrairement à l'amplitude $E_{o\xi}$ et à γ_{ξ} qui sont des variables dans les équations de Maxwell.

Pour le second harmonique Nous devons résoudre l'équation (1.13). Il faut toutefois se rappeler que la partie non linéaire de la polarisation effective au second harmonique est fonction du champ électrique au premier harmonique. Dans notre cas, le champ électrique à ω est formé en général de quatre modes. La polarisation effective non linéaire est donc considérée comme une superposition de quatre ondes, ce qui donne seize termes:

$$\vec{IP}^{nl}(2\omega) = \sum_{\xi} \sum_{\xi'} \vec{IP}_{\xi\xi'}^{nl} \vec{IP}_{o\xi\xi'}^{nl} e^{i(\vec{K}_{nl\xi\xi'}(2\omega) \cdot \vec{R} - 2\omega t)} \quad (1.31)$$

où

$$\vec{K}_{nl\xi\xi'}(2\omega) = \vec{K}_{\xi}(\omega) + \vec{K}_{\xi'}(\omega)$$

Nous considérons que la solution particulière $\vec{E}_p 2\omega$ de l'équation (1.13) pour le second harmonique est la somme des solutions particulières $\vec{E}_{p\xi\xi'} 2\omega$ obtenues en ne tenant compte que d'une source non linéaire $\vec{I}\vec{P}_{\xi\xi'}^{nl}$ à la fois:

$$\vec{E}_p(2\omega) = \sum_{\xi} \sum_{\xi'} \vec{E}_{p\xi\xi'}(2\omega) \quad (1.32)$$

Les différentes solutions $\vec{E}_{p\xi\xi'} 2\omega$ sont obtenues de la même façon en cherchant une solution particulière à l'équation:

$$S(2\omega) \vec{E}_{p\xi\xi'}(2\omega) = 4\mu_0\omega^2 \vec{I}\vec{P}_{\xi\xi'}^{nl}(2\omega) \quad (1.33)$$

Les solutions particulières sont choisies pour avoir le même vecteur d'onde que la polarisation non linéaire considérée:

$$\vec{E}_{p\xi\xi'}(2\omega) = \vec{E}_{op\xi\xi'}(2\omega) e^{i(\vec{K}_{nl\xi\xi'}(p_x, p_y, z, 2\omega) \cdot \vec{R} - 2\omega t)} \quad (1.34)$$

La solution générale pour le second harmonique à l'équation (1.13) est la somme des solutions particulières et des solutions sans second membre.

$$\vec{E}(2\omega) = \sum_{\xi} \vec{E}_{\xi}(2\omega) + \sum_{\xi} \sum_{\xi'} \vec{E}_{p\xi\xi'}(2\omega) \quad (1.35)$$

Toutefois, le résultat analytique est trop complexe pour être exploitable à cause du couplage entre les différentes composantes dans le système d'équations engendré par la relation (1.26). L'étude de la propagation d'une onde électromagnétique est donc fait de façon numérique. Si nous reprenons le cas particulier où $\varepsilon(\omega)$ est un tenseur diagonal dont tous les termes sont égaux, tous les modes sont confondus aussi bien pour le premier que pour le second harmonique. Autrement dit, nous retrouvons les résultats du cas isotrope.

1.4 Problématique

1.4.1 position du problème

Notre problème consiste à l'étude de l'interaction entre une onde électromagnétique plane monochromatique de pulsation ω et de vecteur d'onde $\vec{k} = k\vec{z}$ dans la direction (oz) et un milieu matériel isolant, homogène, non linéaire et non magnétique constitué de molécules possédant chacune deux électrons périphériques jouant un rôle dans la propagation des ondes électromagnétiques.

On appellera N le nombre de ces électrons dispersifs par unité de volume. Le milieu est soumis à un champ de force:

$$\vec{f} = -\omega_0 m \vec{r} \quad (1.36)$$

Où:

m : La masse de l'électron.

ω_0 : La pulsation propre du mouvement de l'électron.

\vec{r} : Le rayon vecteur de l'électron compté à partir du centre de la molécule.

1.4.2 Modèle anharmonique

Pour étudier physiquement l'effet d'une onde électromagnétique sur une molécule du milieu, nous allons présenter l'extension du modèle de Lorentz[10]. On modélise une molécule du cristal par un atome à un électron. L'électron est relié au noyau comme un oscillateur anharmonique (figure 1.6).

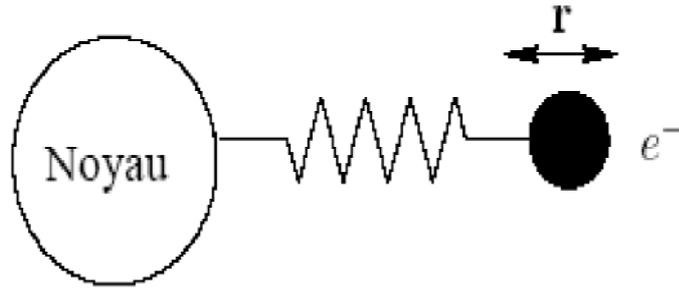


Figure 1.6: l'oscillateur anharmonique.

Nous supposons que le noyau est fixe sous l'action du champ électrique, et que l'atome n'est pas influencé par les autres molécules du milieu. Le matériau est ainsi représenté par des atomes isolés les uns par rapport aux autres. Si $\vec{p} = q\vec{x}$ est la polarisation induite par un atome, la polarisation induite par le milieu de densité N est donc:

$$\vec{P} = Nq\vec{x} \tag{1.37}$$

Où q est la charge et x le rayon atomique. Pour étudier l'interaction de la lumière et du milieu, il suffit donc de calculer l'interaction de la lumière avec un atome.

1.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les notions de bases du point de vue des sciences des matériaux qui nous ont permis de comprendre la non linéarité. Nous avons ensuite étudié la propagation d'une onde électromagnétique dans les milieux isotropes et anisotropes et donc nous avons trouvé que le cas des milieux isotropes est un cas particulier du cas général traitant l'anisotropie des milieux.

Le modèle que nous introduirons dans ce cas permet d'étudier la propagation de l'onde électromagnétique dans les milieux diélectriques homogènes non linéaires, ainsi la réponse d'un tel milieu au champ électrique appliqué.

DEUXIEME CHAPITRE

Résolution du problème et discussion

Chapitre 2

Résolution du problème et discussion

2.1 Introduction

Ce chapitre est dédié à la modélisation du phénomène de génération de second harmonique par une méthode basée sur le modèle anharmonique. Après avoir détaillé le principe de la méthode, nous présentons quelques cristaux non linéaires les plus utilisés pour le doublement de fréquence d'une onde fondamentale et les propriétés optiques pour quelques matériaux.

2.2 Détermination des sources non linéaires dans l'approximation dipolaire

Dans l'approximation dipolaire [8], l'interaction entre les champs électromagnétiques et la matière se fait de manière locale. Dans ce cas, il est donc considéré qu'un atome en un point est uniquement sensible au champ en ce point et que les effets dus à la variation du champ autour de la position initiale sont négligeables. Cette approximation n'est valable

que pour des matériaux dans lesquels le déplacement des électrons dû à l'application d'un champ reste négligeable devant la distance nécessaire pour que la variation de ce champ soit appréciable. Dans cette approximation, la génération de second harmonique ne peut être modélisée que pour des matériaux n'ayant pas d'électrons libres. En d'autres termes, nous modéliserons uniquement les matériaux diélectriques en utilisant l'approche locale pour l'interaction matière rayonnement. Pour modéliser le mouvement de l'électron lié à son noyau créé par un champ exciteur, nous utilisons le modèle de l'oscillateur anharmonique [11].

2.3 Modélisation de l'interaction matière rayonnement dans les matériaux diélectriques

Pour des matériaux diélectriques, il n'y a pas de porteurs de charges libres. Les électrons sont donc tous liés au noyau de l'atome. La polarisation linéaire peut être décrite en considérant l'ensemble électro- noyau comme un oscillateur harmonique soumis à un champ électromagnétique.

2.3.1 Modèle anharmonique

C'est dans le potentiel anharmonique de l'oscillateur que les non linéarités apparaissent dans ce modèle. Pour simplifier la discussion, nous prenons un oscillateur anharmonique. Le champ exciteur est une onde plane polarisée selon la direction de liberté de l'oscillateur (nous l'appellerons x) et elle se propage dans une direction perpendiculaire (notée z) suivant son vecteur d'onde \vec{k} (α, β, γ) dont la composante non nulle est γ suivant z . Sa pulsation est ω . Alors, le champ électrique s'écrit :

$$E = \begin{pmatrix} E_x \\ E_{y=0} \\ E_{z=0} \end{pmatrix} e^{i(\gamma z - \omega t)} \quad (2.1)$$

Nous pouvons donc déterminer le mouvement de l'électron grâce à son équation de mouvement (écrite en notation complexe) dans un potentiel harmonique corrigé par un potentiel anharmonique.

Equation de mouvement de l'électron

1. En l'absence de forces de frottement et de l'onde électromagnétique, l'électron dispersif vibre autour d'une position d'équilibre avec une pulsation caractéristique ω_0 avec $\omega_0^2 = \frac{k}{m}$ est le carré de la pulsation propre de l'oscillateur harmonique constitué de l'électron rappelé vers sa position d'équilibre (le noyau). \vec{x} étant le vecteur déplacement de l'électron, nous avons donc [5]:

$$m \frac{d^2 \vec{x}}{dt^2} + m\omega_0^2 \vec{x} = 0 \quad (2.2)$$

Cette équation est celle d'un oscillateur harmonique.

2. En présence de l'onde, et en l'absence de forces de frottement, l'équation du mouvement de l'électron (en négligeant les effets de la partie magnétique de la force de Lorentz) s'écrit:

$$m \frac{d^2 \vec{x}}{dt^2} + m\omega_0^2 \vec{x} = q \vec{E} \quad (2.3)$$

Où: q est la charge de l'électron.

3. En présence de forces de frottement et de l'onde électromagnétique, la force appliquée à cet oscillateur dérive du champ, c'est la force de Lorentz:

$$\vec{F}_{\text{lorentz}} = q \left(\vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B} \right) \quad (2.4)$$

L'équation du mouvement d'un électron devient:

$$m \frac{d^2 \vec{x}}{dt^2} + m\omega_0^2 \vec{x} + a \frac{d\vec{x}}{dt} = q \left(\vec{E} + \frac{d\vec{x}}{dt} \wedge \vec{B} \right) \quad (2.5)$$

La vitesse des électrons considérés restant toujours très faible par rapport à celle de la lumière dans le vide c , la force exercée par le champ magnétique de l'onde est négligeable devant celle due au champ électrique:

$$\vec{F}_{mag} = q \frac{d\vec{x}}{dt} \wedge \vec{B} \ll \vec{F}_{elec} \quad (2.6)$$

L'équation de mouvement s'écrit:

$$\frac{d^2 \vec{x}}{dt^2} + \omega_0^2 \vec{x} + a \frac{d\vec{x}}{dt} = \frac{q}{m} \vec{E} \quad (2.7)$$

En régime sinusoïdale, et dans un potentiel anharmonique l'équation de mouvement devient:

$$\frac{d^2 \vec{x}}{dt^2} + \omega_0^2 \vec{x} + a \frac{d\vec{x}}{dt} + b \vec{x}^2 = \frac{q}{m} E_x e^{i(\gamma z - \omega t)} \quad (2.8)$$

Dans cette équation, m est la masse de l'électron, a représente le facteur d'amortissement, ω_0 la pulsation propre de l'oscillateur (liée au potentiel harmonique) et b le facteur de non linéarité quadratique (lié au potentiel anharmonique). Cette dernière est considérée comme très faible et peut être traitée comme une perturbation.

Solution de l'équation du mouvement (vecteur de déplacement)

Puisque on travaille dans l'espace de Fourier fréquentiel. Le vecteur de déplacement \vec{x} est décrit par sa transformée de Fourier temporelle :

$$\vec{x}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{x}(t) e^{i\omega t} dt$$

L'équation du mouvement pour un électron est:

$$\frac{d^2 \vec{x}}{dt^2} + \omega_0^2 \vec{x} + a \frac{d\vec{x}}{dt} = \frac{q}{m} E_x e^{i(\gamma z - \omega t)} \quad (2.9)$$

On pose:

$$\begin{cases} x(t) = x(t) \\ x'(t) = \frac{dx(t)}{dt} \\ x''(t) = \frac{d^2x(t)}{dt^2} \end{cases}$$

$$F(x'(t)) = x'(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} x'(t) e^{i\omega t} dt \quad (2.10)$$

L'intégration par partie donne:

$$\begin{aligned} x'(t) &\rightarrow x(t) \\ e^{i\omega t} &\rightarrow i\omega e^{i\omega t} \end{aligned}$$

$$x(t) e^{i\omega t} \Big|_{-\infty}^{+\infty} - i\omega \int_{-\infty}^{+\infty} x'(t) e^{i\omega t} dt = -i\omega x(\omega)$$

$$F(x''(t)) = x''(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} x''(t) e^{i\omega t} dt \quad (2.11)$$

$$F(x^n(t)) = (-i\omega)^n (x(t)) = (-i\omega)^n x(\omega)$$

$$F(x''(t)) = (-i\omega)^2 x(\omega)$$

Finalement:

$$(-i\omega)^2 x(\omega) - ia\omega x(\omega) + \omega_0^2 x(\omega) = \frac{q}{m} E_x e^{i(\gamma z - \omega t)} \quad (2.12)$$

$$(-\omega^2 - ia\omega x + \omega_0^2) x(\omega) = \frac{q}{m} E_x e^{i(\gamma z - \omega t)} \quad (2.13)$$

Ce qui conduit à la solution de l'oscillateur harmonique:

$$x(\omega) = \frac{qE_x e^{i(\gamma z - \omega t)}}{m(-\omega^2 - ia\omega + \omega_0^2)} \quad (2.14)$$

Et en l'injectant dans l'expression de la non linéarité quadratique de l'équation (2.8), nous obtenons le déplacement de l'électron pour la fréquence du second harmonique [8]:

$$x(2\omega) = \frac{q^2 b E_x^2 e^{2i(\gamma z - \omega t)}}{m^2 (-\omega^2 - ia\omega + \omega_0^2)^2 (-4\omega^2 - 2ia\omega + \omega_0^2)} \quad (2.15)$$

Moment dipolaire induit

L'électron mobile de chaque atome forme avec le noyau un dipôle de moment dipolaire, $\vec{p} = q \vec{x}$. Donc on obtient pour le premier harmonique:

$$\vec{p} = \frac{q^2 E_x e^{i(\gamma z - \omega t)}}{m (-\omega^2 - ia\omega + \omega_0^2)} \quad (2.16)$$

Et pour le second harmonique:

$$\vec{p} = \frac{q^3 b E_x^2 e^{2i(\gamma z - \omega t)}}{m^2 (-\omega^2 - ia\omega + \omega_0^2)^2 (-4\omega^2 - 2ia\omega + \omega_0^2)} \quad (2.17)$$

Vecteur de polarisation

Si nous supposons que notre matériau peut être modélisé par un ensemble de N oscillateurs anharmoniques tous formés d'un électron lié à son noyau, la polarisation non linéaire P^{nl} sera la somme des contributions de chaque oscillateur :

$$P^{nl}(2\omega) = N q x(2\omega) \quad (2.18)$$

En remplaçant $x(2\omega)$ par sa forme analytique de l'équation (2.15), la polarisation non linéaire s'écrit de la façon suivante :

$$P^{nl}(2\omega) = \chi_{xxx} E_x^2 e^{2i(\gamma z - \omega t)} \quad (2.19)$$

où χ_{xxx} est la susceptibilité non linéaire du matériau. Dans notre cas, elle se déduit des équations (2.15) et (2.19)

$$\chi_{xxx} = \frac{Nq^3b}{m^2 (-\omega^2 - ia\omega + \omega_0^2)^2 (-4\omega^2 - 2ia\omega + \omega_0^2)} \quad (2.20)$$

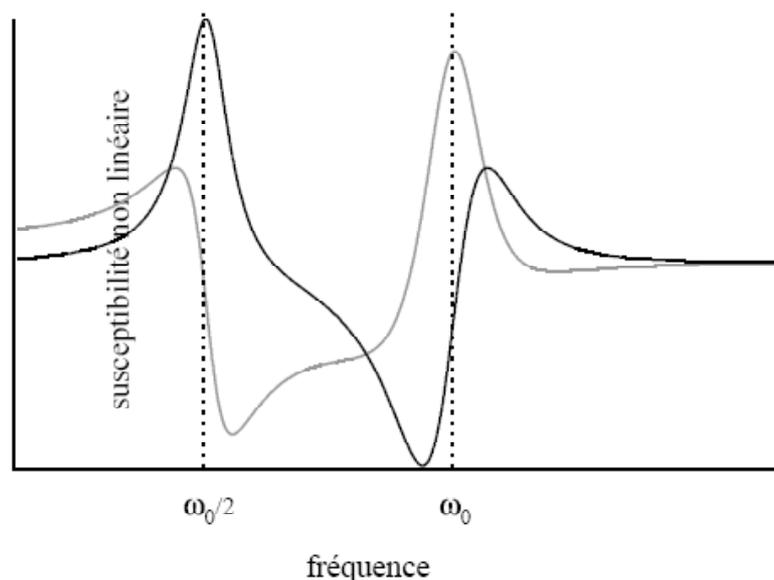


Figure 1.7: Variation de la susceptibilité non linéaire en fonction de la fréquence incidente

Le trait clair représente la partie réelle et le trait foncé représente la partie imaginaire. Il apparaît clairement dans la figure 1.7 que cette susceptibilité non linéaire possède deux fréquences de résonance pour une fréquence fondamentale ω égale à ω_0 et une fréquence harmonique égale à $\frac{\omega_0}{2}$.

La source non linéaire \vec{P}^{nl} pour l'extension à trois dimensions est une généralisation de l'équation 2.19:

$$\vec{P}^{nl}(2\omega) = \chi(2\omega : \omega, \omega) : \vec{E}_0(\omega) \vec{E}_0(\omega) e^{2i(\vec{k}(\omega) \cdot \vec{r} - \omega t)} \quad (2.21)$$

Où: $\chi(2\omega : \omega, \omega)$ est le tenseur de susceptibilité non linéaire de rang trois.

Le symbole “ : ” dénote d’un double produit tensoriel.

2.4 Les conditions nécessaires pour l’activité optique quadratique

Les résultats encourageants d’utilisation de cristaux à propriétés non linéaire ont déclenché le développement de nombreux cristaux. Les cristaux candidats à ce type d’application doivent avoir les propriétés suivantes [12]:

- 1- Non linéarité adéquate et suffisante.
- 2- Transparence optique dans le domaine d’application.
- 3- Biréfringence (élevée) suffisante pour l’accord de phase.
- 4- Coefficients électro-optiques élevés.
- 5- Bonne qualité cristallographique.
- 6- Stabilité thermique des propriétés optiques.
- 7- Résistance suffisante aux dommages optiques.
- 8- Crisatallogénèse aisée, bonne terme mécanique des cristaux.

2.5 Matériaux pour l’optique non linéaire

2.5.1 Historique

En 1961 Franken et Al [13] mettaient en évidence le phénomène de doublement de fréquence (ou génération de second harmonique) dans un cristal de quartz. L’optique non linéaire s’est alors rapidement développé avec caractérisation d’autre cristaux minéraux non-centrosymétriques comme, par exemple KH_2PO_4 , $LiNBO_3$, $KTiOPO_4$.

Leur grande stabilité (thermique, chimique et mécanique) leur fenêtre de transparence

étendue en longueurs d'onde ainsi que des cristallogénèses bien maîtrisées conduisent à des échantillons de très bonne qualité optique.

Cependant, leurs coefficients non linéaire quadratiques sont nettement inférieurs à ceux de certains cristaux organiques moléculaires mis en évidence dans les années 80.

2.5.2 Des matériaux pour l'optique non linéaire quadratique

Depuis Franken, de nombreux matériaux non linéaire ont été synthétisés et largement explorés dans le domaine du visible et du proche infrarouge. Il s'agit essentiellement de cristaux minéraux: oxydes et sels inorganiques. En particulier des monocristaux de niobates et de tantalats qui possèdent d'excellent coefficients électrooptiques.

Les propriétés physiques de ces matériaux permettent d'avoir un large domaine d'application dans les systèmes optiques utilisés pour la modulation, la déflexion et la conversion de fréquence des sources lasers ainsi que pour le stockage holographique des informations. Par contre ces matériaux ont de nombreux inconvénients: le coût d'élaboration, la fragilité et surtout la difficulté de développer ces matériaux sous forme de couche mince et guide d'onde en vue de l'application recherchée. Le cristal actuellement le plus largement utilisé dans les dispositifs électro-optiques est le niobate de lithium ($LiNbO_3$).

Passons rapidement en revue les grandes familles de composés étudiés et pour certains commercialisés [12].

Les niobates

Dans la famille des niobates une série de cristaux présente d'excellents propriétés; il s'agit en particulier de $LiNbO_3$, $Ba_2NaNb_5O_{15}$ (BNN).

$LiNbO_3$ a fait l'objet d'intenses recherches depuis une quarantaine d'année. Ce matériau a été synthétisé par Fedulov et al [14], ainsi que Ballman et al en 1965 [15]. $LiNbO_3$ présente un large domaine de transparence pour des longueurs d'onde comprises entre 0.4 et $4\mu m$ [16]. Ses coefficients électrooptiques et optique non linéaire sont très élevés et varient avec la composition en lithium. A la température ambiante, le niobate de lithium

possède une structure ferroélectrique de symétrie rhomboédrique.

Bien que ce composé possède des coefficients d_{ijk} élevés, les premiers résultats expérimentaux ont montré qu'il souffre de deux défauts majeurs limitant son utilisation pratique : faible résistance à l'endommagement optique (inférieur à $100\text{Mw}/\text{cm}^2$) et mauvaise homogénéité des paramètres optiques. Du point de vue des propriétés optiques, il a été montré que l'addition d'un dopant tel que MgO limitait de manière significative les effets indésirables.

Les coefficients d'optique non linéaire de $\text{Ba}_2\text{NaNb}_5\text{O}_{15}$ sont deux fois supérieurs à ceux du LiNbO_3 et 20 fois supérieurs à ceux de KH_2PO_4 . L'obtention de second harmonique peut être réalisée à la température ambiante ainsi qu'à des températures élevées. Le niobate de baryum et de sodium possédant des coefficients non linéaires très élevées (de l'ordre de $-13\text{pm}/\text{V}$ pour le d_{31}), des effets de GSH par accord de phase ont été observés aux alentours de 1060nm . Ces deux caractéristiques extrêmement intéressantes font du BNN dopé ND^{3+} un excellent candidat pour devenir un matériau laser auto-doubleur de fréquence.

Les phosphates

Le KDP (KH_2PO_4) Le KDP est un cristal très utilisé bien que ses non linéarités ne soient pas très fortes. Le KDP possède un seuil de dommage supérieur à $5\text{GW}/\text{cm}^2$ à 1064nm avec $t = 10\text{ns}$ et $f = 10\text{Hz}$. Il est facile de produire des cristaux de grandes dimensions. Ce cristal est par exemple utilisé dans le projet de laser Méga-Joule. Le cristal de KDP y est utilisé comme cristal doubleur ou tripleur de fréquence. A l'entrée de la chaîne, la source laser produit une impulsion à la fréquence ω . Les ondes utilisées dans le laser Méga-Joule ne sont pas particulièrement courtes puisque qu'elles sont de l'ordre de la nanoseconde.

Le KTP (KTiOPO_4) La découverte et la caractérisation cristallographique de KTP (KTiOPO_4) a été réalisée au laboratoire de Cristallographie CNRS de Grenoble par

Tordjman, Masse et Guitel. Le *KTP* possède un haut seuil de dommage ($3GW.cm^{-2}$ à $1064nm$, $10Hz$, $3 ns$) et des propriétés thermiques relativement bonnes. Le domaine de transmission total du *KTP* s'étend de $350nm$ à $4.5\mu m$. En fait, la transmission est supérieure à 90% entre $700nm$ et $2.7\mu m$. Mais après $3\mu m$, elle chute et ne permet pas de générer efficacement des longueurs d'onde au-dessus de cette valeur. Ce cristal est mécaniquement robuste, chimiquement inerte et n'est pas hygroscopique. Il peut être utilisé en atmosphère ambiante et ne nécessite pas de protection particulière. Parmi les cristaux susceptibles de produire de l'infrarouge moyen de façon efficace, on trouve *KTiOPO₄* (*KTP*) et son isomorphe *KTiAsO₄* (*KTA*) qui sont utilisés dans les techniques lidar (Light Detection And Ranging) de mesure des aérosols.

Ce cristal a des propriétés physiques et mécaniques proches de celles du *KTP*, notamment un seuil de dommage ($10GW.cm^{-2}$ à $1064nm$, $10Hz$, $10ns$) comparable. Il est aussi chimiquement stable et non hygroscopique et peut donc être utilisé sans problème en atmosphère ambiante. Le domaine de transmission du *KTA* dans l'infrarouge est un des grands avantages de ce cristal par rapport au *KTP*. Ce domaine de transmission s'étend à plus de $5\mu m$ alors que celui du *KTP* s'arrête à $4.5\mu m$.

Les borates

De très nombreux borates ont été étudiés. De nombreux cristaux de cette famille sont connus pour leurs propriétés optiques non linéaires, on peut citer: $\beta - BaB_2O_4$ (*BBO*), *LiB₃O₅* (*LBO*), *BiB₃O₆* (*BiBO*), *CsLiB₆O₁₀* (*CLBO*) etc...dont la structure non centrosymétrique peut être génératrice de propriétés en optique non linéaire.

Certains d'entre eux (métaborate de césium lithium (*CLBO*), tétraborate de lithium (*LTB*) et métaborate de baryum (*BBO*) se distinguent par leur transparence spectrale très large, en particulier pour les basses longueurs d'onde. Ils présentent un domaine de transparence qui s'étend de $3.5\mu m$ dans l'IR jusqu'à des longueurs d'onde de $0.17\mu m$ dans l'UV. De plus ils offrent un excellent seuil d'endommagement optique (*BBO* : $10GW/cm^2$ pour des impulsions de $0.1ns$, *CLBO* : $26GW/cm^2$ pour des impulsions de $1.1ns$, $10Hz$;

LTB : $40\text{GW}/\text{cm}^2$ pour des impulsions de 10ns , 10Hz).. Une large biréfringence leur permet de proposer une plage d'accordabilité suffisante pour réaliser des sources UV par doublage successif de la radiation d'un laser classique *YAG : Nd*.

Les cristaux de borates de calcium-lanthane ont pour application la génération de second harmonique. Si l'on tient compte du critère de stabilité chimique, le *CLBO* présente l'inconvénient majeur d'être notamment hygroscopique ce qui risque de limiter son utilisation. L'utilisation de *BBO* pour l'UV semble être confrontée à des problèmes de vieillissement prématuré similaires en apparence à ceux du *KTP*. Les origines de ces absorptions dans l'UV ne sont pas encore bien connues mais une étude des impuretés présentes dans $\beta - \text{BBO}$ a été effectuée.

2.5.3 Propriétés optiques pour quelques matériaux

Dépendance en longueur d'onde des indices

Les indices de réfraction dépendent de la longueur d'onde suivant la relation de dispersion.

En particulier, La variation des indices principaux n_x , n_y , n_z , pour les cristaux biréfringents, est donnée par des équations empiriques de type équations de Sellmeier de la forme [17]:

$$n_i = \sqrt{\left(A_i + \frac{B_i}{1 - C_i \cdot \lambda^{-2}} - D_i \cdot \lambda^2 \right)} \quad (2.22)$$

Avec $i = x, y, z$, λ en μm et les coefficients A_i, B_i, C_i, D_i connus empiriquement pour chaque cristaux.

Cas du *KTP* Pour ce cristal, deux ensembles de coefficients, l'un calculé par Bierlein [18] et l'autre par Kato [19] (Tableau 1)

Axes	A	B	C	D
$n_x = a$	2.1146	0.89188	0.20861	0.0132
$n_y = b$	2.1518	0.87862	0.21801	0.01327
$n_z = c$	2.3136	1.00012	0.23831	0.01679

Tableau 2.1: Coefficients des équations de Sellmeier pour le *KTP* obtenus par Bierlein .

Axes	A	B	C	D
$n_x = a$	3.0065	0.03901	0.04251	0.01327
$n_y = b$	3.0333	0.04154	0.04547	0.01408
$n_z = c$	3.3134	0.05694	0.05658	0.01682

Tableau 2.2: Coefficients des équations de Sellmeier pour le *KTP* obtenus par Kato

Les figures (2.1) et (2.2) montrent l'allure de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde obtenu par Bierlein et l'autre par Kato. On remarque que plus la longueur d'onde (fréquence) augmente plus l'indice de réfraction diminue. Cela veut dire que la longueur d'onde n'est pas proportionnelle à l'indice de réfraction.

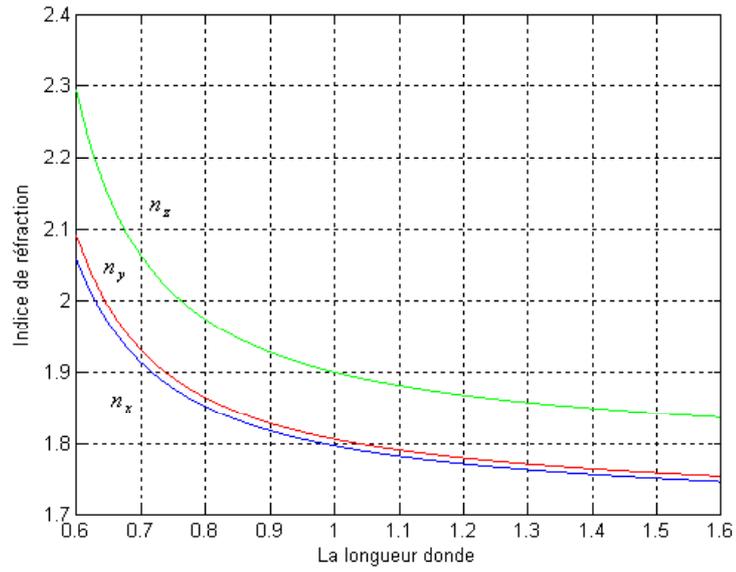


Figure 2.1: Coefficients des équations de Sellmeier pour le KTP obtenus par Bierlein

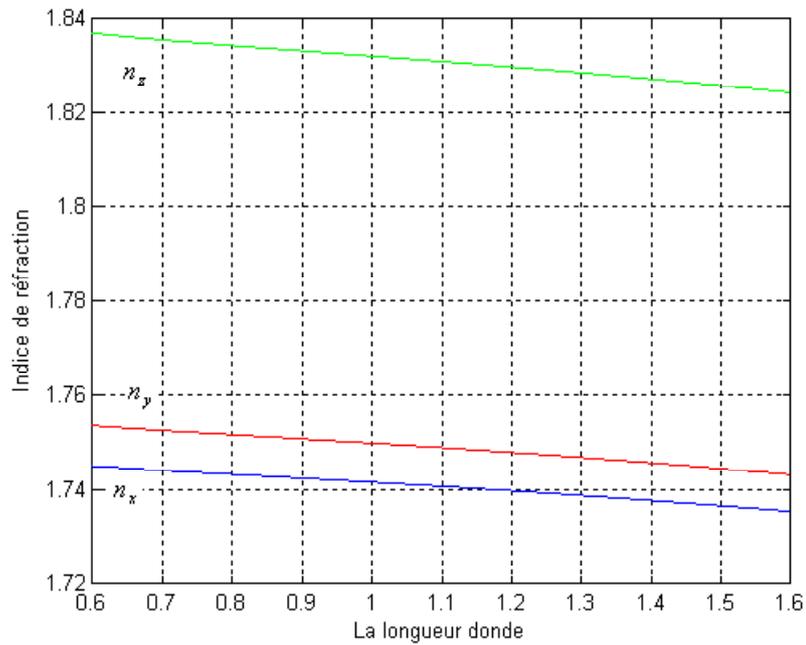


Figure 2.2: Coefficients des équations de Sellmeier pour le KTP obtenus par Kato

En comparant les résultats obtenus par Beirlein et par Kato nous remarquons que l'indice de réfraction suivant la direction z calculé par Beirlein est élevée par rapport à celui calculée par Kato, cela nous permet de dire que les coefficients calculé par Beirlein sont mieux adaptés dans notre étude que celles calculés par Kato.

Cas du KTA Les coefficients A_i, B_i, C_i, D_i sont donnés dans le Tableau 2.3. Il existe bien entendu d'autres valeurs pour ces coefficients dans la littérature, telles celles de Kato [20].

Axes	A	B	C	D
$n_x = a$	1.90713	1.23522	0.19692	0.01025
$n_y = b$	2.15912	1.00099	0.21844	0.01096
$n_z = c$	2.14786	1.29559	0.22719	0.01436

Tableau 2.3: Coefficients des équations de Sellmeier pour le KTA obtenus pas Fenimore [21].

La représentation graphique de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde est illustrée par la figure (2.3); remarquant une chose que l'indice de réfraction suivant la direction x coïncide avec l'indice de réfraction suivant la direction y .

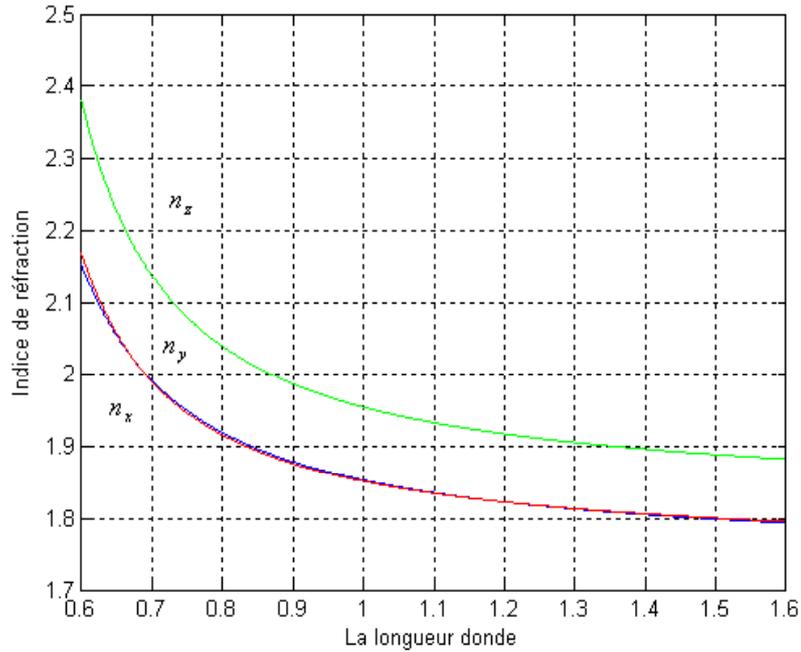


Figure 2.3: Coefficients des équations de Sellmeier pour le KTA obtenus par Fenimore

Dépendance en température des indices

Cas du KTP La dépendance en température des indices de réfraction du KTP est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{dn_i}{dT} = (A_i \cdot \lambda^{-3} - B_i \cdot \lambda^{-2} + C_i \cdot \lambda^{-1} + D_i) \cdot 10^{-6} / ^\circ C \quad (2.23)$$

Avec $i = x, y, z$, λ en μm et les coefficients A_i, B_i, C_i, D_i connus empiriquement pour chaque cristaux (Tableau 3).

Axes	A	B	C	D
$n_x = a$	1.427	4.735	8.711	0.952
$n_y = b$	4.269	14.761	21.232	-2.113
$n_z = c$	12.415	44.414	59.129	-12.101

Tableau 2.4: Coefficients pour les équations de variation des indices du KTP en fonction de la température.

La figure (2.4) montre l'évolution de l'indice de réfraction en fonction de la température. Plus la température augmente plus l'indice de réfraction augmente aussi donc l'indice de réfraction est proportionnel à la température.

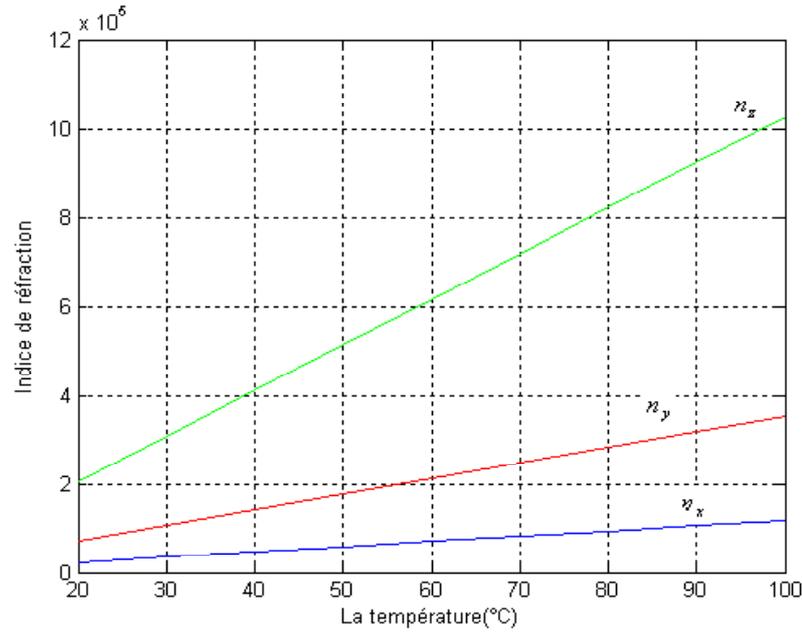


Figure 2.4: Coefficients pour les équations de variation des indices du KTP en fonction de la température

2.6 Conclusion

Rappelons les points essentielles:

- * La polarisation non linéaire à la pulsation 2ω déduite de l'approximation dipolaire est de forme quadratique. De plus, elle ne fait intervenir que le caractère local du champ excitateur de pulsation ω (aucune dérivée du champ). Cette forme est couramment utilisée dans les matériaux diélectriques. Toutefois, le caractère tensoriel de cette source la rend dépendante de la structure cristalline du matériau. C'est pourquoi il est nécessaire de discuter des domaines d'application de cette approximation.

- * La réponse non linéaire du milieu étudié au champ électrique appliqué est décrite en terme de susceptibilité non linéaire qui possède deux fréquences de résonance pour une fréquence fondamentale ω égale à ω_0 et une fréquence harmonique égale à $\frac{\omega_0}{2}$.

- * L'indice de réfraction dépend de la longueur d'onde suivant la relation de dispersion.

En particulier, pour les cristaux biréfringents, cet indice est donné par des équations empiriques de type équation de Sellmeier de la forme:

$$n_i = \sqrt{\left(A_i + \frac{B_i}{1 - C_i \cdot \lambda^{-2}} - D_i \cdot \lambda^2 \right)}$$

TROISIEME CHAPITRE

Conversion de fréquence

Chapitre 3

Conversion de fréquence

3.1 Introduction

L'architecture des étages de conversion en fréquence comprendra obligatoirement trois étages distincts : deux étages de conversions de fréquence pour accéder à l'ultraviolet et un étage donnant accès à une large accordabilité. Ce dernier se devant, comme l'ensemble de la source, d'être simple, il sera constitué d'un dispositif à simple passage de type générateur ou amplificateur paramétrique optique. Cette exigence de simplicité nous fait rejeter une solution pourtant séduisante : l'Oscillateur Paramétrique Optique synchrone. Un tel dispositif permet en effet d'obtenir une accordabilité importante ainsi qu'une puissance de sortie élevée du fait du caractère résonant de sa structure. Par contre cet OPO doit convertir en fréquence des impulsions picosecondes : il est donc nécessaire comme nous l'avons vu de synchroniser chacune des impulsions de pompe avec les impulsions signal produites. Cette contrainte impose une structure électronique de synchronisation relativement complexe, ce qui nous a conduit à ne pas choisir cette solution dans l'immediat.

Nous rappelons que notre objectif est d'atteindre 330nm (l'ultraviolet). Nous pouvons imaginer que la partie conversion de fréquence s'articule schématiquement de la façon suivante:

1064nm \rightarrow 532nm \rightarrow 660nm \rightarrow 330nm.

On commence par un étage de doublement de fréquence pour passer de l'infrarouge à 1064 nm au vert à 532 nm, puis un étage de génération paramétrique optique permet de passer du vert à une longueur d'onde rouge accordable autour de 660 nm et un dernier étage de doublement permet d'atteindre l'ultraviolet à 330 nm.

3.2 Structure choisie

Le schéma global que nous allons mettre en oeuvre comporte trois blocs, à savoir la source, l'amplificateur et les étages de conversion de fréquence. Nous avons déjà choisi d'utiliser une source possédant les bonnes caractéristiques temporelles et une longueur d'onde de 1064 nm : celle-ci pourra être un microlaser déclenché à cavité ultracourte. Un étage d'amplification suivra, puis nous utiliserons comme énoncé précédemment une architecture de conversion de fréquence de type génération de second harmonique puis amplificateur paramétrique optique puis à nouveau génération de second harmonique. La figure 3.1 ci-dessous représente schématiquement le système.

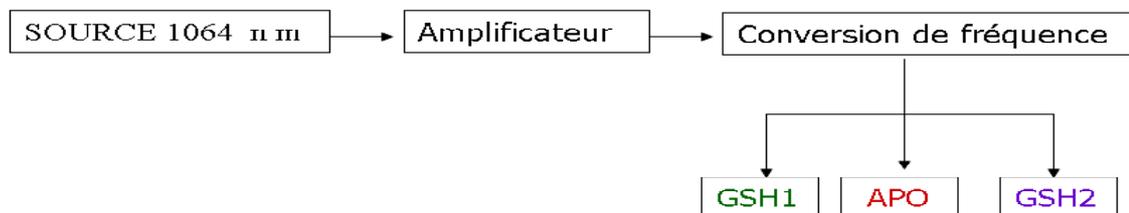


Figure 3.1: Le système choisi.

3.2.1 Microlaser déclenché à cavité ultracourte passivement

Une des techniques la plus courante pour rendre un laser impulsif est le déclenchement (également appelée « commutation des pertes ») ou « Q-switching ». Le principe,

résumé par la figure 3.2, peut être énoncé comme suit : des pertes sont volontairement introduites dans la cavité de façon à obtenir artificiellement un niveau de pertes P_1 élevé. Sous l'effet du pompage, l'inversion de population ΔN se construit peu à peu. L'effet laser ne peut cependant se produire car le gain reste inférieur au niveau de pertes. Si on attend suffisamment longtemps, ΔN atteint un état stationnaire (correspondant à l'inversion de population maximale susceptible d'être atteinte avec un matériau laser donné) ΔN_i . On diminue alors brusquement les pertes de la cavité : le niveau de pertes passe de P_1 à P_2 , et l'intensité laser se met à augmenter très rapidement (ΔN_i est à ce moment très supérieure à l'inversion de population correspondant au seuil d'oscillation laser) pour atteindre sa valeur maximale pour $\Delta N = \Delta N_s$. L'impulsion laser ainsi créée dépeuple le niveau supérieur de la transition laser, et ΔN diminue donc jusqu'à ce que le gain disponible soit inférieur au niveau de pertes P_2 , ce qui met fin à l'impulsion.

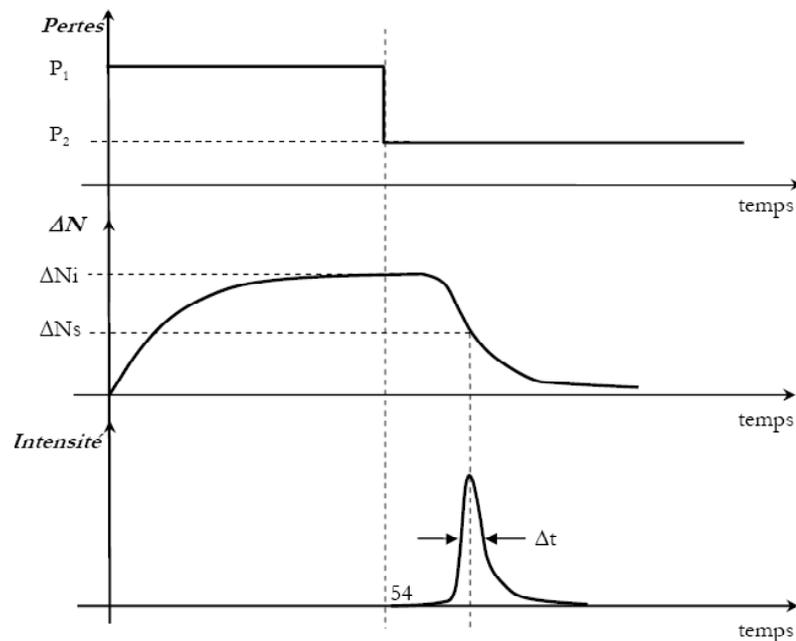


Figure 3.2: Principe du laser déclenché par commutation des pertes.

Une grande partie de l'énergie accumulée lors du pompage se libérant d'un seul coup, l'impulsion émise est extrêmement brève : la durée des impulsions ainsi produites dépend

de la longueur de la cavité laser et des pertes dans cette cavité. On peut considérer de façon brutale que Δt est proportionnelle au temps de vie des photons dans la cavité, c'est à dire d'autant plus petite que la cavité est courte et que les pertes (en pratique la transmission du miroir de sortie) sont importantes.

Il existe un grand nombre de techniques pour réaliser la commutation rapide des pertes de P_1 à P_2 que l'on peut classer en deux catégories : le déclenchement actif et le déclenchement passif. La première catégorie regroupe des techniques très diverses : la plus ancienne et la plus simple consiste à utiliser comme miroir de fond de cavité un miroir tournant à très grande vitesse angulaire. Les techniques actuelles utilisent des composants électro-optiques (une cellule de Pockels couplée à un polariseur permet de réaliser une « porte de polarisation » ouverte ou fermée selon la tension appliquée) ou acousto-optiques (la lumière est alors diffractée en dehors de la cavité) permettant de contrôler très précisément les paramètres de déclenchement. La seconde catégorie consiste à utiliser les propriétés non-linéaires de certains matériaux appelés absorbants saturables : ces derniers sont plus opaques si l'éclairement est faible que s'il est fort, ce qui permet d'obtenir des pertes importantes sans effet laser puis de les diminuer brutalement lorsque l'intensité de l'impulsion laser naissante atteint une valeur suffisante pour saturer l'absorbant saturable.

Les avantages de la technique « passive » sont évidents : elle permet en particulier de se passer de tout élément électronique actif dans la cavité et est de ce fait particulièrement simple et peu coûteuse. Côté inconvénients, il faut noter que la cadence du laser n'est pas contrôlée, et que la gigue temporelle entre deux impulsions successives est parfois importante. Pour préserver le côté passif de notre source, nous avons choisi de déclencher notre laser avec un absorbant saturable. Si on met de côté les solutions à base de colorants qui furent utilisées dans les premiers systèmes déclenchés passivement, peu pratiques d'emploi, le matériau absorbant saturable le plus utilisé pour réaliser des lasers déclenchés est le YAG dopé par ion Chrome ($\text{Cr}^{4+} : \text{YAG}$). Les impulsions produites avec de tels dispositifs ont généralement des durées de quelques nanosecondes. Comme

on a vu que cette valeur est directement proportionnelle au temps de vie des photons dans la cavité laser, donc à la longueur de cette dernière, on peut facilement réduire la durée des impulsions produites en réalisant des cavités ultracourtes. Pour ce faire, on accole l'absorbant saturable au milieu à gain pour réaliser ce qu'il est convenu d'appeler des micropuces lasers ou plus simplement des microlasers. La longueur de la cavité est alors de l'ordre de 1 mm, ce qui permet d'atteindre des impulsions de quelques centaines de picosecondes . En contrepartie, l'énergie produite est assez faible et la cadence des impulsions est limitée à quelques dizaines de kilohertz.

La théorie du déclenchement passif a été développée de façon extensive par de nombreux auteurs, et ce depuis la petite enfance du laser. Elle fut plus récemment appliquée aux lasers déclenchés par SESAM. Les équations décrivant la durée des impulsions émises ainsi que leur cadence n'ont pas d'expression analytique simple dans le cas général. Cependant, au prix d'approximations parfois assez fortes on peut obtenir des expressions remarquablement simples, qui vont constituer des guides de choix pour évaluer l'influence des diverses grandeurs physiques mises en jeu et ainsi choisir le jeu de paramètres nous permettant d'atteindre nos objectifs.

Durée des impulsions

Si on suppose que la section efficace de l'absorbant saturable est très nettement supérieure à la section efficace de l'émission laser, on peut considérer que le mécanisme de commutation des pertes est quasi-instantané.. Dans ce cas, il a été montré que la durée de l'impulsion Δt peut s'écrire :

$$\Delta t = \frac{S_p Tr}{\Delta R} \left[\frac{\delta (1 + \delta) \eta}{\delta - \ln (1 + \delta)} \right] \quad (3.1)$$

Où:

S_p est un facteur caractérisant la forme de l'impulsion.

T_r est le temps que met un photon à parcourir la cavité ($T_r = \frac{2Ln}{c}$, avec L la longueur de la cavité, n l'indice du milieu et c la vitesse de la lumière dans le vide).

ΔR sont les pertes saturables (on suppose $\Delta R \ll 1$).

$\delta = \frac{\Delta R}{T_{out} + P}$ avec T_{out} la transmission du coupleur de sortie et P les pertes non saturables (et toujours $T_{out} \ll 1$ et $P \ll 1$).

η est l'efficacité d'extraction de l'énergie, donnée par la relation implicite suivante : $\eta(1 + \delta) = -\ln(1 - \eta)$.

Considérons à partir de cette formule les limites atteintes lorsque ΔR est beaucoup plus grand ou beaucoup plus petit que la somme des autres pertes ($T_{out} + P$), autrement dit si $\delta \ll 1$ ou $\delta \gg 1$:

Cas $\delta \ll 1$ les pertes saturables sont bien plus faibles que les autres pertes, en particulier que la transmission du miroir de sortie. On peut alors réécrire la formule implicite donnant η en remarquant que $\delta \ll 1$ implique $\eta \ll 1$ et en prenant le développement limite au premier ordre du membre de droite : $\eta(1 + \delta) \approx \eta + \frac{\eta^2}{2}$ ce qui entraîne $\delta \approx \frac{\eta}{2}$. On en déduit immédiatement :

$$\Delta t = \frac{S_P T_r}{\Delta R} \left[\frac{2\delta^2}{\delta - \left(\delta - \frac{\delta^2}{2}\right)} \right] \quad (3.2)$$

qui devient :

$$\Delta t = \frac{4S_P T_r}{\Delta R} \quad (3.3)$$

Cas $\delta \gg 1$ les pertes saturables sont alors plus importantes que les autres pertes, en particulier que la transmission du miroir de sortie. On a alors $\eta \approx 1$ et il vient immédiatement :

$$\Delta t = \frac{S_P T_r}{T_{out} + P} \quad (3.4)$$

On s'aperçoit immédiatement en observant les expressions précédentes que la durée des impulsions est dans tous les cas proportionnelle à la longueur de la cavité. L'influence sur la durée des impulsions des pertes saturables ΔR et du coupleur de sortie T_{out} est illustrée par les courbes des figures 3.3 et 3.4. On note que la valeur de coefficient ΔR est prépondérante, et en particulier qu'un grand ΔR est nécessaire pour produire des impulsions très brèves.

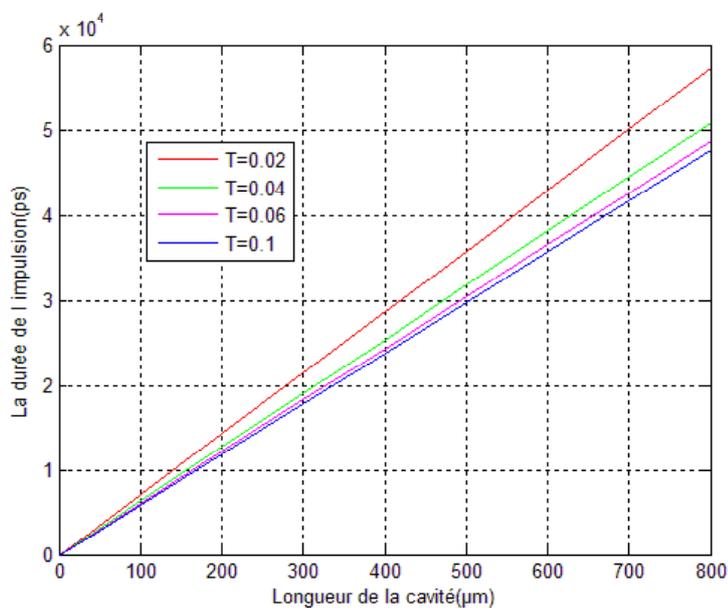


Figure 3.3: Evolution de la durée des impulsions avec la longueur de la cavité pour différents coupleurs de sortie T_{out} .

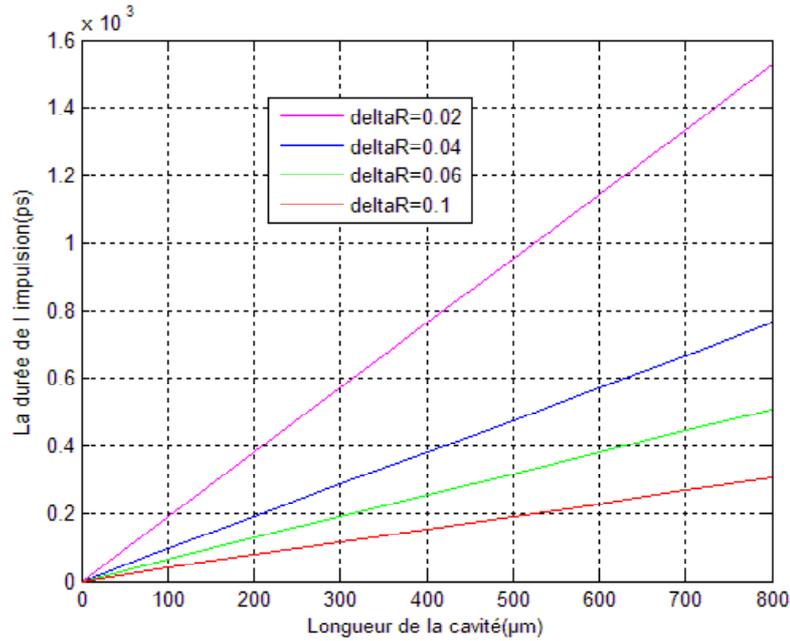


Figure 3.4: Evolution de la durée des impulsions avec la longueur de la cavité pour différents valeurs des pertes saturables ΔR .

On remarque de façon générale sur ces courbes que pour obtenir des impulsions de durée très courte il faut réaliser une cavité de quelques dizaines de microns. N'oublions cependant pas qu'il est nécessaire d'absorber une quantité suffisante de rayonnement de pompe : comme on ne peut utiliser un dopage trop important, il faut utiliser un cristal suffisamment long : on note ici encore l'intérêt du choix du cristal de Nd :YVO₄, qui possède une absorption à 808 nm environ cinq fois plus importante que le Nd :YAG, permettant ainsi d'utiliser des cristaux plus courts. Pour rester réaliste et assurer la solidité mécanique du cristal laser nous arrêtons notre choix sur une longueur de 200 μm , ce qui doit nous amener à des durées d'impulsions de 200 ps environ (pour un ΔR de 6%, voir la figure 3.4) compatibles avec nos exigences. On remarque également que la formule 3.1 ne fait intervenir la puissance de pompe à aucun moment : la durée des impulsions est indépendante du pompage.

Cadence des impulsions

la cadence des impulsions produites peut être approximée par :

$$C = \frac{g_0 - (P + T_{out} + \Delta R)}{2\tau\Delta R} \quad (3.5)$$

Où on définit g_0 comme le coefficient de gain petit signal par unité de longueur et τ est le temps de vie de l'état excité du milieu à gain.

La cadence est donc directement proportionnelle au gain petit signal, c'est-à-dire au pompage. On peut évaluer le coefficient de gain petit signal à partir de la puissance de pompe (qui est le paramètre facilement accessible à la mesure) en écrivant :

$$g_0 = \sigma_L \Delta N_0 \quad (3.6)$$

Où: σ_L est la section efficace d'émission laser

ΔN la densité d'atomes dans le niveau excité en régime petit signal.

On peut ensuite écrire que le nombre d'atome « perdus » par unité de temps par émission spontanée doit être égal au nombre d'atomes portés au niveau excité par la pompe :

$$\frac{AL\Delta N_0}{\tau} = \frac{\eta_p P_p}{h\nu_p} \quad (3.7)$$

A : Surface du faisceau de pompe.

τ : le temps de vie du niveau excité.

η_p : Efficacité de pompage.

P_p : Puissance de pompe absorbée.

h : Constante de Planck.

ν_p : Fréquence de l'onde de pompe.

On en déduit immédiatement la relation approchée suivante :

$$g_0 = \frac{\sigma_L \eta_p P_p \tau}{L.A h\nu_p} \quad (3.8)$$

et par suite en injectant cette expression dans l'équation 3.5 :

$$C = \frac{\frac{\sigma_L \eta_p P_p \tau}{L.A h \nu_p} - (P + T_{out} + \Delta R)}{2\tau \Delta R} \quad (3.9)$$

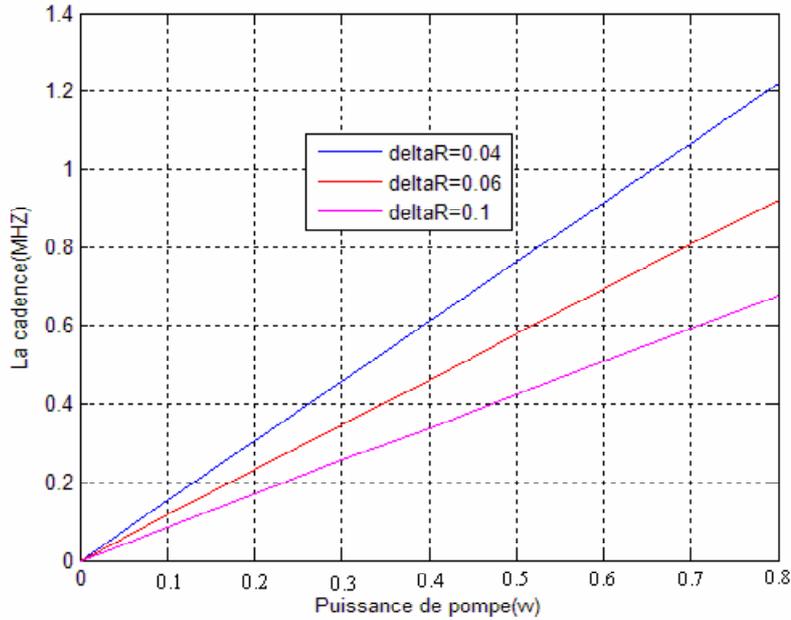


Figure 3.5: Estimation de la cadence en fonction de la puissance de pompage du microlaser.

On s'aperçoit qu'il est possible d'atteindre une valeur importante de la cadence avec une puissance de pompe raisonnable pour peu que les pertes saturables ne soient pas trop importantes.

3.2.2 Amplificateur

Quel que soit le choix de la source infrarouge, il est probable qu'elle ne soit pas assez puissante pour atteindre les puissances crêtes nécessaires à d'efficaces conversions non-linéaires : un étage amplificateur est donc indispensable. le rôle de l'amplificateur est d'augmenter la puissance sans modifier ou le moins possible ces valeurs, autrement dit de porter le microlaser Mégahertz à des puissances suffisantes pour réaliser d'efficaces conversions de fréquence.

3.2.3 Conversion de fréquence

La génération de second harmonique

Réalisation classique de l'accord de phase De manière générale, l'accord de phase correspond à une relation vectorielle entre les vecteurs d'onde[4]:

$$k^{\omega_1} + k^{\omega_2} = k^{\omega_3} \quad (3.10)$$

En pratique, on se limite au cas de l'accord de phase colinéaire. La relation 3.10 devient purement scalaire, et peut s'exprimer sous la forme:

$$n_{\omega_3}\omega_3 = n_{\omega_1}\omega_1 + n_{\omega_2}\omega_2 \quad (3.11)$$

Ce qui donne, pour le doublement de fréquence :

$$n_{2\omega} = n_{\omega}$$

Dans le cadre d'un accord de phase de type I, les deux champs électriques E^{ω_1} et E^{ω_2} sont parallèles et polarisés linéairement, le champ résultant E^{ω_3} étant polarisé perpendiculairement aux deux précédents. On peut donc avoir, dans le cas de la génération de second harmonique:

$$n_e^{2\omega}(\theta) = n_o^{\omega} \quad (3.12)$$

Ou

$$n_o^{2\omega} = n_e^{\omega}(\theta) \quad (3.13)$$

Où θ est l'angle du faisceau incident fondamental avec des axes diélectriques du cristal. Dans le cas d'un accord de phase de type II, les ondes aux fréquences ω_1 et ω_2 sont polarisées perpendiculairement l'une à l'autre et diffèrent donc par leur vitesse de phase et leur indice de réfraction. Pour le doublement de fréquence, cette situation correspond

à celle d'une onde fondamentale polarisée circulairement. La relation d'accord de phase s'écrit alors:

$$n_e^{2\omega}(\theta) = \frac{1}{2}(n_e^\omega(\theta) + n_o^\omega) \quad (3.14)$$

Ou bien:

$$n_o^{2\omega} = \frac{1}{2}(n_e^\omega(\theta) + n_o^\omega) \quad (3.15)$$

Les relations d'accord de phase pour le type I peuvent être résolues analytiquement, sachant que l'indice extraordinaire est donné par la relation: (dans le cas d'un accord de phase par biréfringence).

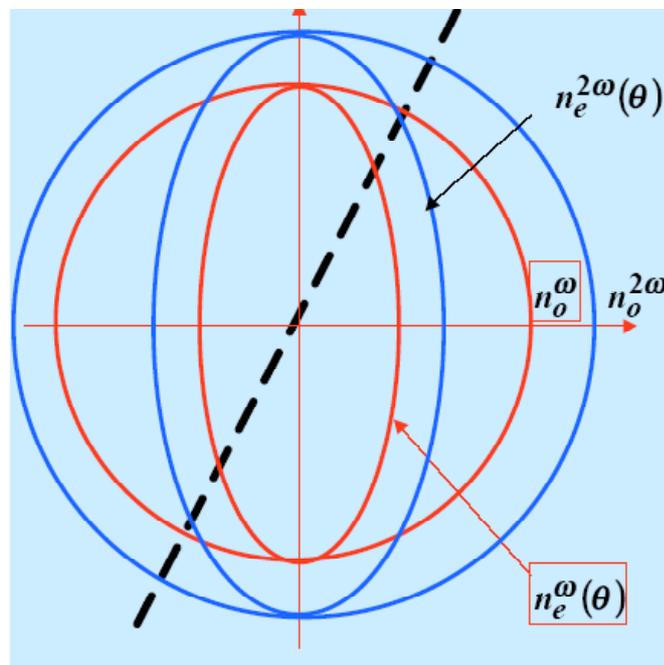


Figure 3.6: Accord de phase par biréfringence[22].

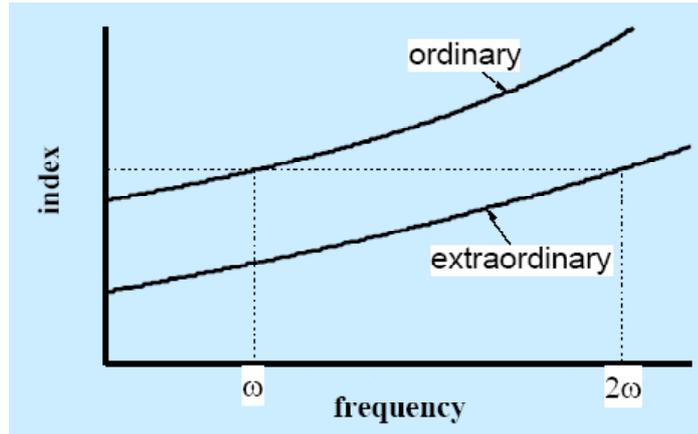


Figure 3.7: Principe de l'accord de phase dans un milieu optiquement anisotrope.

On remarque que l'intensité de l'harmonique à l'accord de phase n'est plus une fonction oscillante, mais augmente avec l'épaisseur traversée L de manière quadratique. On peut ainsi atteindre rapidement des rendements de conversion vers l'harmonique élevés.

Exemple d'application simple

Doublage dans le Niobate de Lithium Niobate de lithium est un matériau le plus largement utilisé dans les dispositifs électro-optiques (il possède un indice extraordinaire inférieur à l'indice ordinaire). Les valeurs des indices de réfraction de $LiNbO_3$ pour différentes longueurs d'onde sont reportées dans le tableau ci-dessous.

Accord de phase:

$$n_e^{2\omega}(\theta) = n_o^\omega \quad (3.16)$$

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} \quad (3.17)$$

Plusieurs modèles permettent d'extrapoler la valeur des indices en fonction de λ , Celui proposé par Sellmeier:

$$n^2 = A - \frac{B}{c - \lambda^2} - D\lambda^2 \quad (3.18)$$

A partir des données du tableau suivant on peut définir la figure (3.8):

	<i>A</i>	<i>B</i>	<i>C</i>	<i>D</i>
n_e	4.5820	0.099169	0.0444432	0.021950
n_o	4.9048	0.11768	0.04750	0.027169

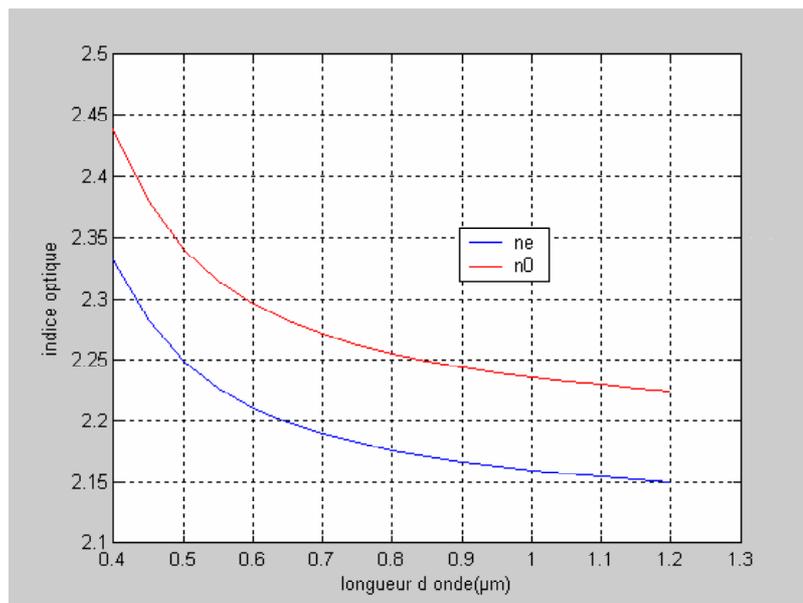


Figure 3.8: Doublage dans le Niobate de Lithium.

Rendement de conversion pour la génération de second harmonique Comme nous l'avons vu précédemment, l'un des effets non-linéaires est la conversion de fréquence. Nos recherches concernent essentiellement les matériaux pour l'optique non-linéaire quadratique[23], c'est à dire l'effet de $\chi^{(2)}$. La génération de second harmonique (GSH) consiste à générer une onde de pulsation double 2ω à partir d'un rayonnement incident à la pulsation ω .

Son principe est schématisé sur la figure 3.9.

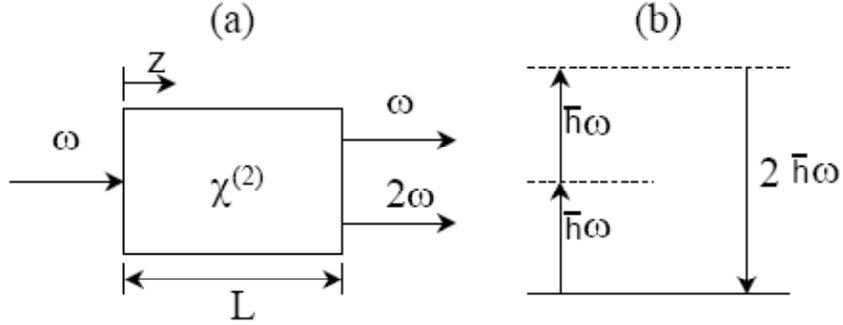


Figure 3.9 : (a) Géométrie et (b) diagramme d'énergie de la génération de second harmonique

Si l'on considère une onde plane électromagnétique, se propageant selon z à la pulsation ω , de la forme :

$$E(z, t) = E(z) e^{-i\omega t} + c.c \quad (3.19)$$

Considérons une onde plane monochromatique se propageant dans un milieu linéaire d'indice n_o et de vecteur d'onde K_o . Lorsqu'elle pénètre dans un matériau non-linéaire d'indice n , cette onde, de vecteur d'onde K_1 , va créer localement une polarisation macroscopique présentant, entre autre, une composante oscillant à la pulsation 2ω . Cette "onde de polarisation", ou onde forcée, de pulsation 2ω , possède un vecteur d'onde :

$$K_p = 2K_1 = \frac{2\omega}{c} n_p \quad (3.20)$$

Où: $n_p = n(\omega)$ (Figure 3.2)[24][25]. Elle se propage donc de manière colinéaire et à la même vitesse que l'onde à la fréquence fondamentale ω :

$$P_{2\omega}^{nl} = \epsilon_0 (\chi^{(2)} E(\omega) E(\omega)) e^{iK_p z} \quad (3.21)$$

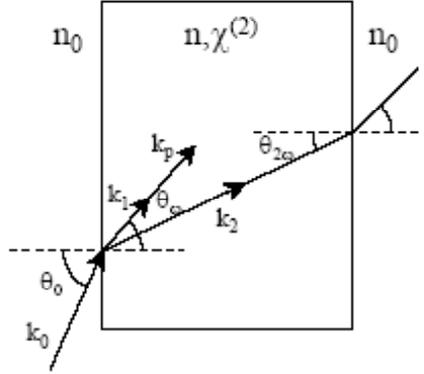


Figure 3.10: Représentation géométrique de la propagation des ondes fondamentale et de second harmonique libre et forcée au sein du matériau non-linéaire[25].

S'il est délicat de parler de propagation pour une onde forcée, la résolution des équations de Maxwell montre l'existence d'une onde libre de polarisation se propageant à la fréquence 2ω avec un vecteur d'onde K_2 . Ces deux ondes libre et forcée vont donc interférer tout au long de leur propagation au sein du matériau. Le transfert d'énergie $\omega \rightarrow 2\omega$ sera optimal lorsque ces deux ondes oscilleront en phase, c'est à dire lorsque $K_2 = K_p$ soit $K_2 = 2K_1$. On appelle cette condition l'accord de phase. En considérant que les deux ondes ω et 2ω se propagent de manière colinéaire (faible épaisseur ou incidence normale soit $\theta_\omega \approx \theta_{2\omega}$), l'équation de propagation du champ électrique, provenant de la résolution des équations de Maxwell, s'écrit :

$$\frac{\partial E(2\omega)}{\partial z} = \frac{i(2\omega)^2}{2\varepsilon_0 c^2 K_2} P_{2\omega}^{nl} e^{-iK_2 z} \quad (3.22)$$

En utilisant l'expression 3.21, l'équation 3.22 devient :

$$\frac{\partial E(2\omega)}{\partial z} = \frac{i(2\omega)^2}{4c^2 k_2} \chi^{(2)} E(\omega) E(\omega) e^{-i(2k_1 - k_2)z} \quad (3.23)$$

Dans les conditions d'accord de phase:

$$\frac{\partial E(2\omega)}{\partial z} = cte \quad (3.24)$$

Cette équation n'est valable que dans le cas d'une onde fondamentale non déplétée. Par intégration de cette expression, on remarque que l'amplitude du champ électrique à la sortie du matériau est proportionnelle à la longueur L traversée. L'intensité dépendra donc de L^2 comme représenté sur la figure 3.3 dans le cas $\Delta k = k_2 - 2k_1 = 0$.

Dans le cas général où cette condition d'accord de phase n'est pas respectée, l'intégration de l'expression 3.23 conduit à une intensité de second harmonique égale à :

$$I_{2\omega} = \frac{2\omega^2 d_{eff}^2 L^2}{n_{2\omega} n_{\omega}^2 \varepsilon_0 c^3} \sin^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) I_{\omega}^2 \quad (3.25)$$

En souvenant que $I = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c n E^2$ et en notant $\sin c(x) = \frac{\sin x}{x}$, $\Delta k = k_2 - 2k_1$.

On voit dans cette expression que l'intensité est maximale lorsque la longueur traversée est telle que :

$$L = \frac{(2p+1)\pi}{\Delta k} = (2p+1) L_c \quad (3.26)$$

Avec $L_c = \frac{\pi}{\Delta k}$ la longueur de cohérence (c'est la longueur sur laquelle on peut produire un maximum de seconde harmonique). Si l'on raisonne en terme de différence d'indice de réfraction, la longueur de cohérence s'écrira alors :

$$L_c = \frac{\lambda}{4(n_{2\omega} - n_{\omega})} \quad (3.27)$$

On peut réécrire l'équation 3.7 en faisant intervenir le paramètre puissance à la place de l'intensité:

$$\frac{P_{2\omega}}{P_{\omega}} = \frac{2\omega^2 d_{eff}^2 L^2}{n_{2\omega} n_{\omega}^2 \varepsilon_0 c^3 \pi \omega_0^2} \sin^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) P_{\omega} \quad (3.28)$$

Les paramètres influents apparaissent immédiatement sur cette expression : pour obtenir

un rendement important, il importe de choisir un matériau non-linéaire possédant un coefficient d_{eff} élevé, une longueur d'interaction L grande et un faisceau fortement focalisé (ω_0 petit). Il faut noter ici que ces deux dernières assertions sont à prendre avec précautions : l'équation ci-dessus n'est valable que dans la mesure où on peut considérer les ondes se propageant dans le cristal comme planes. Or un faisceau gaussien n'est pas une onde plane : il diverge beaucoup s'il est fortement focalisé, ce qui contredit l'hypothèse d'une section constante, alors que la longueur d'interaction L est quant à elle limitée par plusieurs phénomènes (divergence du faisceau donc, mais aussi « double réfraction » dans les cristaux biréfringents).

Cette équation illustre l'accroissement parabolique du rendement de conversion avec le coefficient non-linéaire d_{eff} et la longueur L du cristal, vrai dans le cas des ondes planes. Si cette approximation n'est pas valable.

La formule précédente 3.28 est largement utilisée dans la littérature, essentiellement en raison de sa simplicité. En effet elle ne peut décemment pas être appliquée dans les cas où le rendement de conversion surpasse les 30 %, ce qui est courant avec des lasers impulsifs (I_ω est alors élevée, et on note en observant l'équation 3.25 que le rendement est directement proportionnel à l'intensité de la pompe). Dans le cas général où on ne peut négliger ce qu'on appelle couramment « la déplétion de la pompe », c'est-à-dire lorsque le taux de conversion devient important, le calcul est plus complexe[26].

La mise en oeuvre de la génération de second harmonique est assez directe une fois le cristal est bien choisi (on a choisi *LBO*, *BBO*, voir le chapitre II) : il s'agit d'un processus en simple passage. Par conséquent, un ajustement précis des angles d'incidence du faisceau dans le cristal (pour se placer à l'accord de phase $\Delta K = 0$) suffit pour obtenir un rayonnement efficacement doublé. L'optimisation consiste essentiellement en le choix de la taille du faisceau fondamental dans le cristal (c'est-à-dire en pratique de la lentille de focalisation choisie). D'après Boyd et Kleinman l'efficacité de conversion optimale est obtenue pour une longueur de cristal $L \approx 5.68 Z_r$ où Z_r est la distance de Rayleigh du faisceau laser utilisé. En pratique, il semble en fait que la configuration

dite « confocale », c'est-à-dire $L \approx 2Z_r$ donne de meilleurs résultats.

Nous avons donc choisi une lentille de distance $f = 170mm$ nous permettant de focaliser notre faisceau sur une tache de rayon $\omega_0 = 40\mu m$, correspondant à $Z_r = 4.7mm$ et donc $2Z_r = 9.4mm$.

Prenons donc deux cristaux massifs « classiques » pour le doublement de fréquence (avec $\lambda = 1064nm$), à savoir le *LBO*, le *BBO*. Nous avons regroupé dans ce tableau les différentes valeurs des paramètres n_ω , $n_{2\omega}$ et d_{eff} .

	<i>LBO</i>	<i>BBO</i>
d_{eff}	0.832	2.01
n_ω	1.626	1.674
$n_{2\omega}$	1.639	1.7

Les résultats obtenus sont présentés sur les figures ci-dessous :

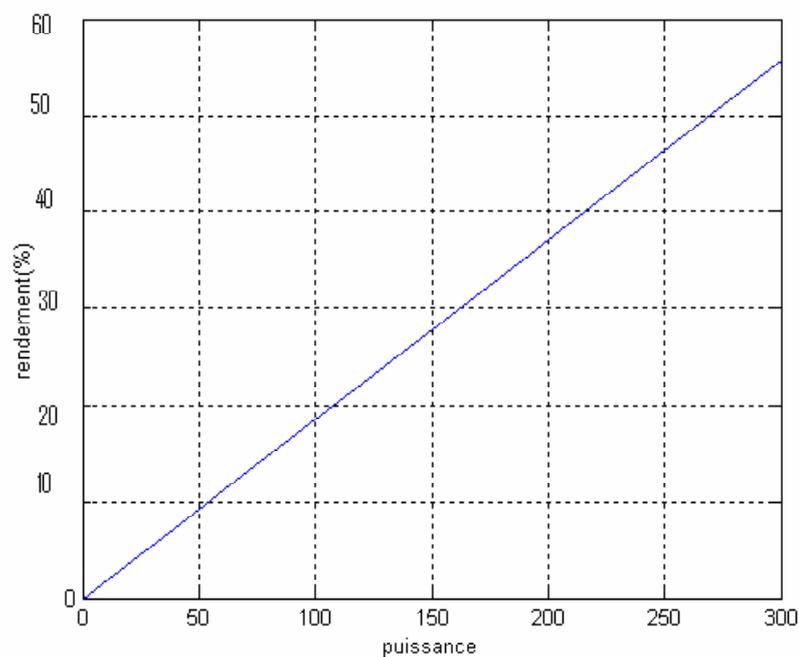


Figure 3.11: Rendement de conversion pour la génération de second harmonique pour *LBO*.

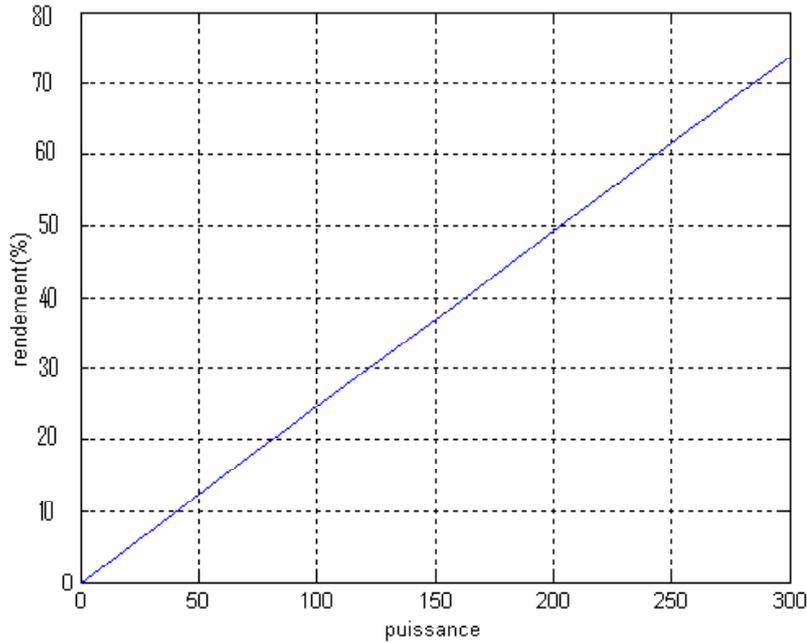


Figure 3.12: Rendement de conversion pour la génération de second harmonique pour *BBO*.

La puissance crête équivalente est donc supérieure à 300 kW : cette valeur très élevée permet d’espérer des rendements de conversion intéressants dans des matériaux classiques tels que le LBO ou le BBO.

On remarque une allure de « saturation » sur cette courbe : en effet, à basse puissance incidente on peut considérer que la conversion est faible (disons pour moins de 30 %) : le rendement est proportionnel à la puissance incidente.

En comparant les deux figures, nous remarquons que le rendement de conversion pour la génération de second harmonique pour le LBO est $\approx 60\%$ ce qui correspond en termes de puissance moyenne à 3,42W de rayonnement vert tandis que pour le deuxième matériaux il vaut $\approx 80\%$ pour la même puissance 300KW. On peut donc affirmer que le BBO est un meilleur matériaux que le LBO pour le doublement de fréquence.

La qualité spatiale du faisceau vert ainsi produit est très bonne (Figure 3.13).

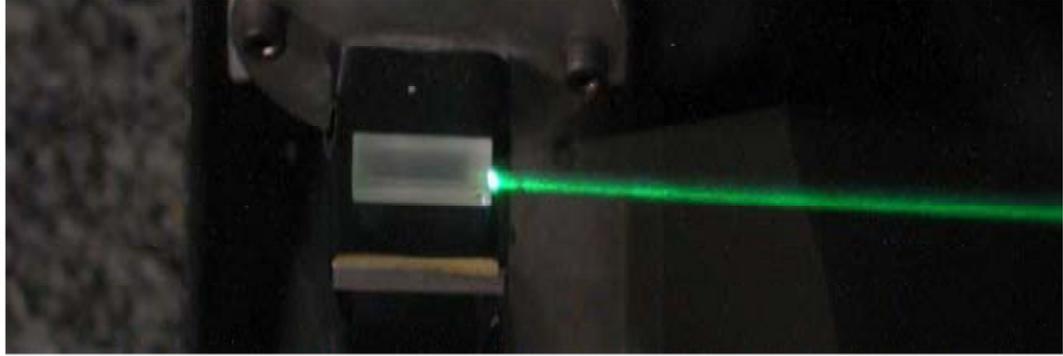


Figure 3.13: Doublement de fréquence dans un cristal de LBO.

Amplification paramétrique optique

Nous allons maintenant traiter le cas (plus général que la génération de second harmonique) de l'interaction de trois ondes dans le cristal non-linéaire afin de passer du vert à une longueur d'onde rouge autour de 660nm.

Dans ce cas l'équation d'onde s'écrit sous cette forme:

$$\frac{\partial^2 E_s}{\partial z^2} + i\Delta k \frac{\partial E_s}{\partial z} - g^2 E_s = 0 \quad (3.29)$$

Où on a défini :

$$g^2 = \frac{2\omega_s \omega_c d_{eff}^2 I_p}{\varepsilon_0 c^3 n_p n_s n_c} \quad (3.30)$$

Les indices s , c , et p se rapportent à l'onde signal, complémentaire et pompe respectivement, Δk est le désaccord de phase effectif total.

La résolution de cette équation différentielle se fait en deux parties, selon que le déterminant de l'équation caractéristique associée ($\Delta = 4g^2 - \Delta k^2$) est positif ou négatif. Les conditions aux limites dans le cas particulier de l'amplification paramétrique sont :

$$E_s(z=0) = E_{s0} \text{ et } E_c(z=0) = 0$$

Si $\Delta > 0$, la solution de l'équation 3.29 est :

$$E_s(z) = E_{s0} e^{\frac{j\Delta kz}{2}} \left[\cosh\left(\frac{\sqrt{\Delta}z}{2}\right) + i \frac{\Delta k}{\sqrt{\Delta}} \sinh\left(\frac{\sqrt{\Delta}z}{2}\right) \right] \quad (3.31)$$

On peut souvent se placer dans des conditions de gain fort, ou suffisamment près de l'accord de phase pour pouvoir affirmer $g \gg \frac{\Delta k}{2}$. L'équation 3.31 se simplifie alors et on obtient :

$$G = \frac{I_s(L)}{I_0} = \cosh^2(gL) \quad (3.32)$$

On a donc une évolution d'allure parabolique à l'accord de phase.

Si $\Delta < 0$, la solution de l'équation 3.29 est:

$$E_s(z) = E_{s0} e^{-\frac{j\Delta kz}{2}} \left[\cos\left(\frac{\sqrt{-\Delta}z}{2}\right) + i \frac{\Delta k}{\sqrt{-\Delta}} \sin\left(\frac{\sqrt{-\Delta}z}{2}\right) \right] \quad (3.33)$$

Ici l'approximation de faible gain $g \ll \frac{\Delta k}{2}$ est trop brutale et conduit directement à $G = 1$ (pas d'amplification). Si on développe le calcul au préalable, on a :

$$G = 1 + \frac{4g^2}{\Delta k^2 - 4g^2} \sin^2\left(\frac{\sqrt{\Delta k^2 - 4g^2}}{2}z\right) \quad (3.34)$$

On peut à partir de là faire $g \ll \frac{\Delta k}{2}$ pour finalement obtenir :

$$G = 1 + (gL)^2 \sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (3.35)$$

Où on retrouve notre dépendance en $L^2 \sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)$ déjà rencontrée plus haut pour le doublement de fréquence 3.25

L'ensemble de ces résultats peut être résumé par le faisceau de courbes figure 3.14. Le gain exponentiel pour les faibles Δk ne doit pas nous tromper : dans ce cas l'hypothèse de la pompe non-déplétée. devient rapidement caduque et on observe une importante saturation du gain.

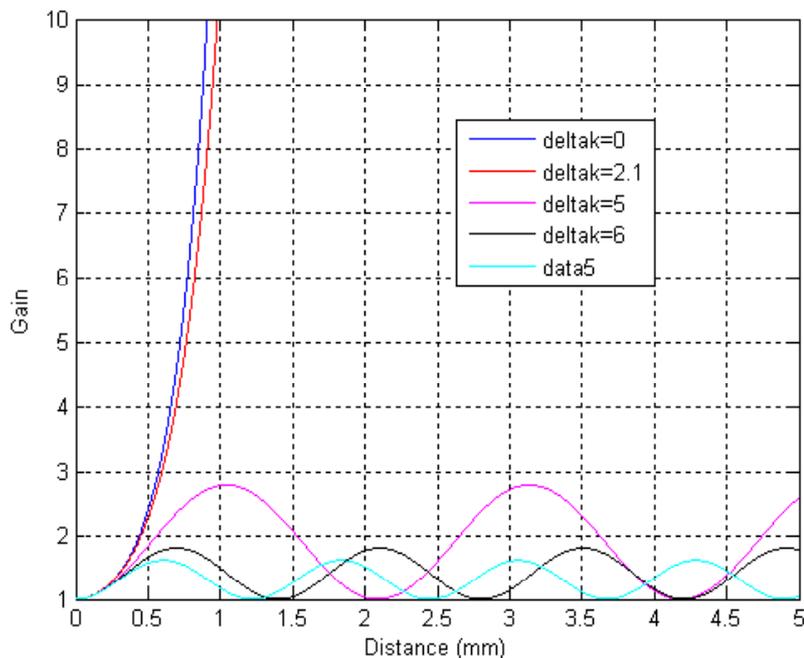


Figure 3.14.: Evolution du gain avec la distance L parcourue dans le cristal.

3.3 Conclusion

La génération de second harmonique est un processus d'optique non linéaire qui est très utilisé en pratique. En effet, les lasers que nous avons réalisés émettent dans l'infrarouge. Or maintenant, on sait très bien convertir ces longueurs d'ondes en rayonnement visible ou ultraviolet ; cependant le rendement de cette conversion dépend de la puissance crête du rayonnement fondamental : il est par conséquent nécessaire de mettre en place un amplificateur afin d'obtenir suffisamment de photons harmoniques.

La dernière étape consiste naturellement à doubler le rayonnement rouge pour obtenir une large accordabilité dans l'ultraviolet; En effet, nous ne sommes pas parvenus à réaliser cette dernière étape, par manque de cristaux non-linéaires efficaces.

Conclusion Générale.

Conclusion générale

Notre travail à été consacré à l'étude de l'interaction d'une onde électromagnétique plane monochromatique avec un milieu matériel diélectrique, homogène, non linéaire et non magnétique en utilisant le modèle anharmonique.

Notre modèle permet de décrire l'équation du mouvement de l'électron, qui régit par une équation différentielle.. Les principaux résultats obtenus sont:

* La propagation d'une onde électromagnétique dans le cas des milieux isotropes est un cas particulier du cas général traitant l'anisotropie des milieux.

* La réponse non linéaire du milieu étudié au champ électrique appliqué est décrite en terme de susceptibilité non linéaire qui possède deux fréquences de résonnance pour une fréquence fondamentale ω égale à ω_0 et une fréquence harmonique égale à $\frac{\omega_0}{2}$.

* La discussion sur la génération de second harmonique (GSH) est indépendante de l'origine des sources non linéaires. La seule restriction à leur sujet est quelle soient de pulsation égale à deux fois la pulsation du premier harmonique, nous pouvons donc appliquer ces résultats dans n'importe quel cas.

* L'indice de réfraction dépend de la longueur d'onde suivant la relation de dispersion. En particulier, pour les cristaux biréfringents, cet indice est donné par des équations empiriques de type équation de Sellmeier.

* L'objet de la dernière partie consiste à décrire une application qui rentre dans le domaine de la génération de second harmonique.

* Dans la plupart des effets non linéaires (GSH, APO) il existe un paramètre capital apparaît régulièrement c'est l'accord de phase.

Enfin, les différents résultats obtenus dans le présent travail, ont ouvert une direction de recherche qui nous suggèrent de consacrer ultérieurement nos activités à un futur travail basé sur l'étude:

1- De l'existence d'un modèle quantique permettant de décrire d'une façon approfondie l'interaction du rayonnement avec la matière..

2- De la génération de second harmonique optique dans le domaine champ proche qui est un domaine très important et ce, pour différents types de matériaux.

Bibliographie

- [1] **N.Sabri** :(2001), Etude du phénomène de polarisation rotatoire: Effet Faraday. Thèse de magister Tlemcen.
- [2] **A.K.Baba Ahmed** :(1999), Génération du deuxième harmonique dans un milieu non linéaire. Mémoire en Physique Electronique Tlemcen.
- [3] **E.Reino** :(2002), Les oxoborates de calcium et de lanthanide: Synthèse et recherche d'angles d'accord de phase non critique pour la conversion de fréquence de longueurs d'onde Laser spécifiques. Thèse de doctorat Paris
- [4] **I.Ledoux** :Optique non linéaire quadratique. Laboratoire de Bagneux
- [5] **H.Benosman** :(2006), Interaction d'une onde électromagnétique avec une vapeur atomique. Thèse de magister Tlemcen.
- [6] **A.Yariv & P.Yeh** :(1984), Optical waves in crystals. New York.
- [7] **N.Bloembergen** :(1965), Nonlinear optics. New York.
- [8] **T.Laroche** :(2004), Génération de second harmonique pour la nano-optique et la microscopie optique en champ proche. Thèse de doctorat France.
- [9] **R.W.Boyd** :(1992), Nonlinear optics.
- [10] **O.Saut** :(2003), Etude numérique des non-linéarités d'un cristal par résolution des équations de MLaxwell-Bloch. Thèse de doctorat des sciences appliquées. Toulouse

- [11] **Y.Shen** :(1984), The principles of nonlinear optics.A Wiley-interscience publication, New York.
- [12] **A.Gacemi** :(2006), Ingénierie de nouveaux matériaux pour l'optique non linéaire quadratique.Les halogénothiocyanates. Thèse de doctorat en sciences. Spécialité chimie Batena.
- [13] **Franken et Al** :(1961), Phys.Rev.Lett.,7,118.
- [14] **A.A Fedulov, I.Z.Shapiro, B.P.Ladyzhinsky**:(1965), Kristallogr.10, 268.
- [15] **A.A.Ballman** :(1965), J.Am.Ceram.Soc.48,112.
- [16] **K.Nasseau, H.J.Levinstein, J.Loianco** :(1966), Phys.Chem.Solids 27,983.
- [17] **Didier Mondelain** :(2001), Lidar linéaire et non linéaire dans l'infrarouge moyen. Thèse de doctorat Lyon I.
- [18] **J.D Bierlein, H.Vanherzeele** :(1989), Potassium titanyl phosphate : properties and new applications. J. Opt. Soc. Am. B 6, 622.
- [19] **K.Kato** .:(1991), Parametric oscillation at 3.2 μ m in KTP pumped at 1.064 μ m. IEEE-J. Quantum Elec 27, 1137.
- [20] **K.Kato** :(1994), Second-harmonic and sum frequency generation in KTA. IEEE- J. Quantum Elec 30, 881.
- [21] **W.Wiechmann, S.Kubota et al** :(1993), Refractive-index temperature derivatives of KTP. Opt. Lett. 18, 1208.
- [22] **E.Roencher**, Les oscillateurs paramétriques optiques: fondement et application. DSG/ONERA.
- [23] **J.Teyssier** :(2004), Réalisation de guides d'ondes pour l'optique non-linéaire. Développement de nanocomposites inorganiques.

- [24] **W. Herman, L. Hayden** :(1995) Maker fringes revisited : second-harmonic generation from birefringent or absorbing materials, J. Opt. Soc. Am. B 12 (3) 416427.
- [25] **M. Braun, F. Bauer, T. Vogtmann, Schwoerer** :(1997), Precise second-harmonic generation maker fringe measurements in single crystals of diacetylene NP/4-MPU and evaluation by a second-harmonic generation theory in 4x4 matrix formulation and ray tracing, J. Opt. Soc. Am. B 14 (7) 16991706.
- [26] **R.L.Byer** :(1977), Nonlinear Optics, Eds: P.G. Harper, B.S.Wherett, Academic Press,, pp.47-161, New York.
- [27] **Xuan Nguyen Phu**, Optique non linéaire, Laboratoire POMA - UMR CNRS 6136.Université d'Angers.