Optique non linéaire

J.-Y. Courtois

Institut d'Optique Théorique et Appliquée, BP. 147, 91403 Orsay cedex, France

Présentation du cours

Les lasers sont des sources de lumière cohérente, caractérisées par un très haut degré de monochromaticité, une grande directionnalité et une forte intensité. Pour illustrer cette dernière propriété, considérons le cas d'un petit laser à rubis (le premier laser à avoir été inventé par Maiman en 1960) ayant un milieu actif d' 1 cm^3 . En fonctionnement déclenché, un tel laser peut émettre en 10 ns environ 10^{18} photons de longueur d'onde 694 nm. En focalisant le faisceau sur une surface de l'ordre de $100 \mu\text{m}^2$ (donc loin de la limite de diffraction), on obtient alors une densité de puissance crête de 10^{13} W/cm^2 . Ainsi, malgré la très faible valeur de l'énergie déposée par impulsion, 0.1 J, correspondant à la consommation d'une ampoule de 100 W ou à la chaleur produite par le corps humain pendant un millième de seconde, la densité de puissance obtenue, 10 térawatts/cm², est impressionnante (comme l'indique d'ailleurs le préfixe téra, venant du grec τερασ qui signifie monstruosité). Pour s'en faire une meilleure idée, il n'est qu'à songer que la puissance totale produite par les stations électriques du monde entier est de l'ordre de 1 térawatt. Une telle densité de puissance correspond à un champ électrique ayant une amplitude au niveau de la tache focale de l'ordre de 10^{10} V/m , donc comparable aux champs internes des atomes et molécules responsables de la liaison des électrons de valence. Un tel laser est donc capable d'arracher les électrons de leurs orbites, et de transformer tout matériau en un plasma hautement ionisé. Il est clair qu'alors la notion familière de réponse optique *linéaire* caractérisée par un indice de réfraction constant, en d'autres termes une polarisation induite proportionnelle à l'amplitude du champ laser, cesse d'être valable. Ainsi, et ce même à des intensités lasers bien plus modérées, il apparaît une *non-linéarité* dans la relation constitutive entre polarisation d'un milieu et champ électrique lumineux appliqué. A la limite perturbative où l'amplitude du champ laser est petite devant celle du champ intra-atomique, cette relation admet un développement en puissances des composantes de polarisation du champ, qui est de la forme :

$$P_i = \epsilon_0 \left[\chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \right]$$

où ϵ_0 est la permittivité du vide, et $\chi^{(i)}$ est le tenseur susceptibilité électrique d'ordre i (le premier terme de ce développement, ou susceptibilité linéaire, définit la constante diélectrique du milieu $\epsilon = 1 + \chi^{(1)}$). De telles non-linéarités sont connues à plus basses fréquences depuis environ un siècle. Par exemple, les ingénieurs acousticiens ou électriciens sont familiers de la relation non linéaire entre champ magnétique et induction, $B = \mu(H)H$, qui se manifeste dans certains transformateurs et solénoïdes par un phénomène de distortion des ondes. Les non-linéarités aux fréquences optiques sont elles plus récentes⁽¹⁾ (la première observation d'un effet

(1) Il est à ce propos amusant de noter qu'au cours de la première décennie de ce siècle, Lorentz effectua le calcul de $\chi^{(1)}$ en modélisant les électrons comme des oscillateurs harmoniques. S'il avait admis une certaine anharmonicité, il aurait pu développer le domaine de l'optique non linéaire avec 50 ans d'avance ! En fait, ce domaine n'était pas alors accessible à l'expérience, et Lorentz a probablement manqué de la stimulation liée à... l'émission stimulée.

non linéaire en optique date de 1961 lorsque Franken réalisa la génération de seconde harmonique dans le quartz) et donc toujours un peu surprenantes, bien qu'elles se décrivent sans difficulté en combinant la relation constitutive non linéaire avec les équations de Maxwell.

L'optique non linéaire est aujourd'hui, 30 ans après sa découverte et 10 ans après le prix Nobel de son père spirituel, Nicolaas Bloembergen, un domaine toujours aussi vivant. Le champ de ses applications est aussi large que la diversité de ses phénomènes, et ses répercussions sont aussi grandes en recherche fondamentale que dans le monde industriel. Les effets non linéaires sont à la base même du fonctionnement des lasers. La génération d'harmoniques, l'amplification paramétrique, la diffusion Raman stimulée ont étendu le domaine des sources cohérentes de l'infra-rouge à l'ultra-violet du vide. La spectroscopie non linéaire a permis des avancées considérables dans des domaines aussi variés que la métrologie ou le diagnostic des flammes. Les absorbants et gains saturables jouent un rôle essentiel dans la génération d'impulsions lasers ultra-courtes, qui permettent aujourd'hui d'effectuer des mesures résolues en temps à l'échelle de la femtoseconde, offrant ainsi de nouvelles perspectives dans des domaines comme la science des matériaux ou la cinétique chimique. La bistabilité optique laisse entrevoir la possibilité de réaliser des transistors, voire des ordinateurs, entièrement optiques...

On comprendra ainsi que ce cours d'optique non linéaire ne pouvait être exhaustif. Contraint dans un volume horaire très réduit, et devant être accessible à des étudiants sortant de DEA, le nombre des sujets abordés ne pouvait être que très restreint. La démarche que nous avons suivie lors de la sélection des processus à étudier a été d'insister sur les aspects *fondamentaux* de l'optique non linéaire, en ne discutant les applications et les résultats expérimentaux que dans la mesure où ils représentaient une bonne illustration de ces aspects. Le cours est organisé de la façon suivante : Le chapitre I est une introduction aux concepts de base de l'optique non linéaire. Nous illustrons sur un modèle très simple d'oscillateur anharmonique l'existence d'une non-linéarité dans l'interaction entre un matériau et un faisceau laser. Nous introduisons alors la relation constitutive entre polarisation du milieu et champ électrique auquel il est soumis, qui fait intervenir la notion de *susceptibilité optique non linéaire*, dont nous discutons certaines caractéristiques. Nous présentons ensuite l'équation des ondes régissant la propagation des ondes lumineuses à travers un milieu non linéaire. Nous faisons alors apparaître le concept d'*accord de phase*, qui joue un rôle déterminant pour l'efficacité d'un processus non linéaire. Nous concluons le chapitre par une brève discussion concernant la description des processus non linéaires dans le cadre de la théorie quantique du rayonnement électromagnétique. Les chapitres II et III illustrent les concepts du chapitre I sur des exemples concrets de processus non linéaires. Le chapitre II est consacré aux effets non linéaires du deuxième ordre. Nous étudions plus particulièrement les processus de *doublage de fréquence* et de *mélange paramétrique*, dont nous présentons une application importante : l'*oscillateur paramétrique optique*. Le chapitre III traite de quelques processus non linéaires du troisième ordre. Nous discutons dans un premier temps l'*effet Kerr optique*, dont nous montrons l'intérêt pour la réalisation de *transistors* et de *bistables optiques*. Nous nous intéressons ensuite à la *spectroscopie non linéaire pompe-sonde*, et nous montrons la richesse des processus non linéaires impliqués dans l'apparition de structures résonnantes sur le spectre de transmission de l'onde sonde. Dans ce cadre, nous étudions successivement les processus de *diffusion Raman*, *Brillouin* et *Rayleigh stimulée*, en faisant ressortir leur origine physique, leurs caractéristiques, ainsi que la nature des informations qu'ils apportent sur le milieu non linéaire sondé. Nous présentons enfin le mélange à quatre ondes, en insistant plus particulièrement sur l'un de ses aspects les plus spectaculaires : la conjugaison de phase.

L'auteur tient à exprimer sa profonde reconnaissance à Gilbert Grynberg pour l'avoir initié et guidé dans ce domaine si riche et subtil qu'est l'optique non linéaire. Il tient également à remercier chaleureusement l'éminent *trio* d'enseignants de l'Ecole Polytechnique (G. Grynberg, A. Aspect, C. Fabre) pour l'avoir autorisé à reproduire ici des extraits du cours "Introduction aux lasers et à l'optique quantique" : quoi de plus normal que de transmettre les leçons reçues de ses maîtres ? Et comme l'a dit Oscar Wilde dans *The Picture of Dorian Gray*, "Every portrait that is painted with feeling is a portrait of the artist, not of the sitter".

I. Principes de base

Les processus optiques non linéaires sont des manifestations de la propriété de certains matériaux d'acquies sous l'effet d'un champ lumineux une polarisation dépendant de façon non linéaire de l'amplitude du champ. Dans la plupart des cas, l'origine physique de cette propriété se situe au niveau *microscopique* du matériau (nature des atomes ou des molécules le constituant, structure cristalline, etc...), et sa description rigoureuse nécessite le recours à la mécanique quantique. On pourrait alors penser que l'extrême diversité des propriétés microscopiques des milieux se traduit par un inextricable foisonnement de processus optiques non linéaires. Bien heureusement, il n'en est rien, et si l'ordre de grandeur de ces processus varie considérablement d'un matériau à un autre, le nombre d'effets non linéaires *élémentaires* est en fait relativement restreint.

La description de tels effets est basée sur une extension de la notion de propagation *linéaire* du champ électromagnétique dans la matière. Elle repose sur l'usage des équations de Maxwell macroscopiques dans lesquelles la polarisation est exprimée au moyen d'un développement en puissances de l'amplitude des champs présents dans le milieu (ou plus exactement des composantes de polarisation de ces champs). De la même façon que les propriétés linéaires du milieu sont décrites au moyen d'une seule quantité, la susceptibilité linéaire, les propriétés non linéaires d'un matériau sont caractérisées par un certain nombre de *susceptibilités optiques non linéaires*. Selon la structure de celles-ci et la forme du champ électrique le traversant, le matériau pourra donner lieu à un certain nombre d'effets non linéaires. Cette correspondance entre nature des processus et structure des susceptibilités permet ainsi une description globale et universelle des effets optiques non linéaires. Ainsi, pour être schématique, la mécanique quantique fournit le cadre adéquat pour l'estimation quantitative des susceptibilités et l'interprétation physique de la non-linéarité, tandis que l'électromagnétisme classique permet de décrire de façon macroscopique la propagation et l'interaction des ondes entre elles et avec le matériau.

Le but de ce chapitre est de présenter plus précisément la "caisse à outils" de l'opticien non linéaire. Nous montrons pourquoi et comment la non-linéarité optique et les susceptibilités non linéaires qui lui sont rattachées se manifestent, sur l'exemple simple d'un ensemble d'oscillateurs anharmoniques chargés éclairés par une onde lumineuse (§I.A). Nous discutons ensuite de façon plus précise la structure et les propriétés de ces susceptibilités. Nous présentons alors l'équation des ondes régissant la propagation des champs dans un milieu non linéaire, ainsi que la notion d'accord de phase (§I.B). Nous concluons sur une discussion des liens existant entre interprétations des processus non linéaires dans le cadre de l'électromagnétisme classique et quantique (§I.C).

A. Origine de la non-linéarité optique

Nous décrivons ici sur un modèle simple l'origine de la non-linéarité optique, et la façon dont elle se manifeste dans un milieu. Un matériau peut être essentiellement considéré comme un ensemble de particules chargées (ions et électrons). Soumises à un champ électrique, les charges tendent à se déplacer : les charges positives dans le sens du champ électrique, les charges négatives dans le sens opposé. Dans un matériau conducteur, les électrons peuvent se déplacer à travers le matériau aussi longtemps que le champ électrique est appliqué, donnant lieu à un courant électrique. Dans le cas d'un diélectrique, qui est d'usage beaucoup plus courant en optique, les particules chargées sont liées fortement les unes aux autres, bien que leurs liens conservent une certaine "élasticité". Ainsi, en présence d'un champ électrique, les charges ont un mouvement uniquement transitoire et s'éloignent légèrement de leur position d'origine. Ces petits déplacements élémentaires (charges positives d'un côté, charges négatives de l'autre) se traduisent par l'apparition dans le matériau de moments dipolaires électriques induits. En d'autres termes, *l'effet d'un champ électrique sur un diélectrique est d'induire une polarisation*.

Une onde laser correspond à un champ électromagnétique oscillant à une fréquence de l'ordre de 10^{13} à 10^{15} Hz. Sous l'action du champ électrique d'une telle onde, les charges d'un diélectrique sont soumises à un mouvement oscillant de même fréquence, formant un ensemble de dipôles oscillants. L'effet du champ magnétique sur les particules chargées est quant à lui beaucoup plus faible, et peut être négligé. De plus, les ions positifs ayant souvent une masse considérablement supérieure à celle des électrons, il est possible de considérer en bonne approximation que seuls les électrons sont animés d'un mouvement.

FIG. I.A-1 : Représentation schématique du mouvement des particules chargées dans un milieu diélectrique soumis à un champ électrique oscillant de fréquence optique. En raison de leur masse élevée, les ions positifs ont un mouvement négligeable devant celui des électrons, beaucoup plus légers.

De façon générale, la réponse d'un électron à un champ électrique optique correspond à celle d'une particule dans un potentiel anharmonique (l'extension spatiale du potentiel ne pouvant être infinie pour des raisons physiques évidentes). On peut décrire une telle situation à l'aide d'un modèle simple où l'électron de masse m et de charge $-e$ est lié au cœur ionique par l'intermédiaire d'un ressort, les dipôles étant supposés tous orientés dans la direction du champ électrique (voir Fig. I.A-1). L'évolution de l'écart à l'équilibre x de l'électron sous l'effet du champ électrique $E(t)$ est alors régie par une équation du type :

$$\frac{\partial^2 x}{\partial t^2} + \Gamma \frac{\partial x}{\partial t} + \omega_A^2 x + \left(\zeta^{(2)} x^2 + \zeta^{(3)} x^3 + \dots \right) = -\frac{e}{m} E(t) \quad (\text{I.A-1})$$

où ω_A est la fréquence de résonance de l'électron, et $\Gamma/2$ son taux d'amortissement (lié au rayonnement dipolaire). Le second membre de l'Eq. (I.A-1) représente la force de Coulomb exercée sur l'électron par le champ électrique, force qui induit son oscillation.

Négligeons dans un premier temps les termes $\zeta^{(2)} x^2 + \zeta^{(3)} x^3 + \dots$, et considérons la réponse harmonique à un champ laser monochromatique de la forme :

$$E(t) = \mathcal{E} \exp(-i\omega t) + c.c. \quad (\text{I.A-2})$$

où ω est une fréquence optique, et $c.c.$ désigne le complexe conjugué. En portant l'expression (I.A-2) dans l'Eq. (I.A-1), et en cherchant pour x une solution forcée à la fréquence ω , on obtient sans difficulté⁽¹⁾ :

$$x(t) = -\frac{e \mathcal{E}}{m} \frac{\exp(-i\omega t)}{\omega_A^2 - \omega^2 - i\Gamma \omega} + c.c. \quad (\text{I.A-3})$$

qui, à l'approximation quasi-résonnante $|\omega - \omega_A| \ll \omega_A$, peut se récrire :

$$x(t) = \frac{e \mathcal{E}}{2m\omega_A} \frac{\exp(-i\omega t)}{\Delta + i\Gamma/2} + c.c. \quad (\text{I.A-4})$$

avec $\Delta = \omega - \omega_A$ le désaccord à résonance entre la fréquence laser (ω) et la fréquence de résonance (ω_A). La polarisation induite dans le milieu est alors donnée par :

(1) Ce régime forcé est atteint après une phase transitoire de durée $= 1/\Gamma$. $1/\Gamma$ représente donc le *temps de réponse* du milieu à une excitation laser.

$$P = -Nex \quad (\text{I.A-5})$$

où N est la densité de dipôles par unité de volume. On voit donc d'après l'Eq. (I.A-4) que la polarisation est proportionnelle à l'amplitude E du champ électrique. On exprime cette propriété au moyen de la susceptibilité linéaire $\chi^{(1)} = \chi'^{(1)} + i\chi''^{(1)}$ selon :

$$P(t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} E \exp(-i\omega t) + c.c. \quad (\text{I.A-6})$$

avec :

$$\chi'^{(1)} = \frac{-Ne^2}{2\epsilon_0 m \omega_A} \frac{\Delta}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (\text{I.A-7.a})$$

$$\chi''^{(1)} = \frac{Ne^2}{2\epsilon_0 m \omega_A} \frac{\Gamma/2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4} \quad (\text{I.A-7.b})$$

les parties réelle et imaginaire de la susceptibilité linéaire, et ϵ_0 la permittivité du vide. Les dipôles électriques oscillant à la fréquence laser vont rayonner dans le milieu un champ de fréquence ω , et ainsi modifier la propagation de l'onde laser. D'après l'expression de l'induction électrique $D = \epsilon_0 E + P$, on voit en effet que la constante diélectrique du milieu vaut $1 + \chi^{(1)}$, de sorte que l'indice de réfraction est égal à la partie réelle de $\sqrt{1 + \chi^{(1)}}$. Les pertes dans le milieu sont quant à elles décrites par la partie imaginaire $\chi''^{(1)}$ de la susceptibilité, comme le montre l'expression de la densité de puissance Π transférée du champ vers les dipôles :

$$\Pi = E(t) \frac{\partial P(t)}{\partial t} = 2\epsilon_0 \omega \chi''^{(1)} |E|^2 \quad (\text{I.A-8})$$

qui est proportionnelle à la composante de la polarisation oscillant en *quadrature* avec le champ laser. Comme le montre l'Eq. (I.A-7), les parties réelle et imaginaire de la susceptibilité linéaire sont dans un rapport $-2\Delta/\Gamma$. Ceci montre que loin de toute résonance d'un matériau, celui-ci se comporte comme un milieu purement dispersif (sans absorption). $\chi'^{(1)}$ et $\chi''^{(1)}$ sont représentées sur la Fig. I.A-2 en fonction du désaccord à résonance Δ . Leurs allures dispersive ($\chi'^{(1)}$) et lorentzienne ($\chi''^{(1)}$) sont caractéristiques de la réponse linéaire d'un milieu au voisinage d'une résonance⁽¹⁾.

FIG. I.A-2 : Dépendance des parties réelle et imaginaire de la susceptibilité linéaire en fonction du désaccord à résonance Δ au voisinage de la résonance $\omega = \omega_A$. La demi-largeur de la dispersion et de la lorentzienne est égale au taux de relaxation du dipôle.

(1) On pourra s'assurer du bien-fondé du modèle considéré ici en comparant les expressions (I.A-7) à l'Eq. (III.A-5) du §III.A.1.a obtenue par un calcul quantique exact dans le cas d'un atome à deux niveaux.

FIG. 1A-3 : Effet de la relation non linéaire entre polarisation P et champ électrique oscillant E (fréquence ω). (a) Lorsque le champ électrique incident est suffisamment faible, la polarisation apparaît essentiellement comme une fonction linéaire de E . (b) Toutefois, à plus fortes valeurs du champ, la polarisation présente une forme distordue contenant plusieurs harmoniques de ω .

En physique, la dépendance linéaire d'une quantité en fonction d'une autre est presque toujours une approximation, qui reste valable uniquement à l'intérieur d'un domaine particulier de l'espace des paramètres. Dans le cas présent, l'amplitude du mouvement des particules chargées au sein du diélectrique ne peut être

considérée comme linéaire en champ qu'à la limite où le déplacement des particules est petit. Pour des écarts à l'équilibre plus importants, la force de rappel devient significativement non linéaire en x de manière à contenir le mouvement des électrons au voisinage du cœur ionique. Cette non-linéarité est prise en compte dans notre modèle par l'intermédiaire des termes anharmoniques $\zeta^{(2)} x^2 + \zeta^{(3)} x^3 + \dots$ où les coefficients $\zeta^{(i)}$ sont des constantes [voir Eq. (I.A-1)]. Nous montrons sur la Fig. I.A-3 que la réponse anharmonique des électrons donne lieu à une polarisation induite qui peut être considérée comme étant soit linéaire (en bonne approximation), soit non linéaire en champ électrique appliqué, selon la grandeur de celui-ci. Une analyse spectrale de la polarisation induite dans le cas de la Fig. I.A-3(b) montre qu'en dehors de la composante principale oscillant à la fréquence laser ω , la polarisation du milieu contient des composantes de fréquence $2\omega, 3\omega, \dots$, ainsi qu'une composante de fréquence nulle (composante continue). Ce phénomène est analogue à l'effet bien connu de distortion des signaux par un circuit électronique dont la réponse n'est pas parfaitement linéaire. Or, la théorie de l'électromagnétisme nous apprend qu'un dipôle électrique oscillant rayonne un champ à sa fréquence d'oscillation (nous nous sommes déjà servi de ce résultat lors de la discussion de la réponse linéaire du milieu). Ainsi, la composante de la polarisation oscillant à la fréquence 2ω rayonnera un champ à la fréquence double de celle du laser. Il s'agit du processus non linéaire de génération de seconde harmonique, que nous étudierons plus en détails au chapitre II.

Lorsque les termes non harmoniques sont pris en compte, il n'existe plus de solution générale de l'équation du mouvement (I.A-1). Toutefois, dans la limite où ces termes sont suffisamment petits devant la composante harmonique, il est possible de résoudre l'Eq. (I.A-1) par perturbation en effectuant un développement de la solution $x(t)$ en puissances de l'amplitude du champ électrique. Ceci conduit à une expression de la polarisation du milieu admettant également un développement en puissance de E , du type⁽¹⁾ :

$$P = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots \right) \quad (\text{I.A-9})$$

Dans cette expression, $\chi^{(1)}$ représente la susceptibilité linéaire discutée précédemment, tandis que les quantités $\chi^{(2)}, \chi^{(3)}, \dots$ sont appelées *susceptibilités non linéaires* du milieu⁽²⁾ (respectivement d'ordre 2 et 3).

Il est intéressant d'évaluer l'ordre de grandeur du champ électrique nécessaire pour que les propriétés non linéaires des atomes ou molécules se manifestent. D'après la discussion précédente, il apparaît que la non-linéarité associée aux termes anharmoniques ne se manifestera qu'à la condition que le champ laser ne soit pas totalement négligeable devant le champ intra-atomique $\mathcal{E}_{at}$ responsable du lien entre électrons et cœur ionique. L'expression (I.A-9) peut ainsi se récrire sous la forme :

$$P = \eta^{(1)} \frac{E}{\mathcal{E}_{at}} + \eta^{(2)} \left(\frac{E}{\mathcal{E}_{at}} \right)^2 + \eta^{(3)} \left(\frac{E}{\mathcal{E}_{at}} \right)^3 + \dots \quad (\text{I.A-10})$$

où les coefficients $\eta^{(i)}$ sont tous du même ordre de grandeur. Comme nous l'avons vu en introduction, un champ électrique d'amplitude $\mathcal{E}_{at}$ correspond à une intensité laser incidente de l'ordre de 10^{13} W/cm^2 , qu'il est possible d'obtenir en utilisant des lasers impulsionnels. En fait, *il n'est pas nécessaire de disposer d'intensités lasers si élevées pour observer la plupart des processus non linéaires*. L'une des raisons pour cela est que lorsque les dipôles induits oscillent tous de façon cohérente (c'est-à-dire qu'ils possèdent une certaine relation de phase entre eux), les champs qu'ils rayonnent individuellement peuvent dans certains cas interférer constructivement et conduire à un champ ayant une intensité considérablement plus grande que celle du même nombre de dipôles rayonnant de façon incohérente. En optique non linéaire, la condition pour obtenir une telle interférence constructive porte le nom de *condition d'accord de phase*. Nous aurons l'occasion d'y revenir plus en détails aux §I.B et §I.C.

L'intensité requise pour observer certains effets non linéaires peut être encore réduite de plusieurs ordres de grandeur lorsque l'une ou plusieurs des fréquences lasers impliquées sont proches des fréquences de résonance des dipôles oscillants. Il s'agit du phénomène d'*exaltation résonnante des non-linéarités* (l'exaltation de la réponse d'un matériau au voisinage d'une résonance est clairement visible sur la Fig. I.A-2). En optique non

-
- (1) Cette expression n'est en fait valable que lorsque les susceptibilités électriques sont toutes réelles. Pour un cas plus général, voir le §I.B.
 (2) Le modèle de l'oscillateur anharmonique a été utilisé par [Bloembergen 65] et [Garrett 66] pour évaluer les susceptibilités non linéaires d'ordres 2 et 3 des diélectriques.

linéaire, l'exaltation résonnante est exploitée de deux façons. Premièrement, elle permet d'observer les processus non linéaires à des puissances lasers plus faibles, ce qui augmente considérablement leur champ d'application et leur efficacité. Deuxièmement, les phénomènes non linéaires résonnants sont à la base de la spectroscopie non linéaire, qui fournit des informations sur la structure de la matière inaccessibles par la spectroscopie linéaire conventionnelle (voir §III.B).

Notons pour terminer ce paragraphe que le modèle d'oscillateur anharmonique présenté ici a ses limites. Par exemple, nous avons uniquement considéré les cas où la fréquence optique était proche du domaine visible, de sorte que le mouvement des électrons était la composante dominante de la réponse du milieu. A plus basses fréquences, le mouvement des ions devient plus important (vibrations et rotations moléculaires dans les fluides, vibration de la matrice ionique dans les solides), et peut jouer un rôle dans la réponse non linéaire du milieu. En fait, comme nous l'avons déjà mentionné, seule la mécanique quantique fournit le cadre adéquat pour calculer de manière fiable les susceptibilités non linéaires. Nous ne détaillerons toutefois pas ici une telle approche qui, dans le cas général, n'apporte que peu d'informations supplémentaires par rapport au modèle considéré ici⁽¹⁾. Enfin, il faut mentionner que dans le cas d'un milieu non linéaire réaliste, le développement en puissances du champ électrique (I.A-9) doit en fait prendre en compte le caractère vectoriel du champ électrique (c'est-à-dire sa polarisation), ainsi que la dépendance en fréquence et le caractère tensoriel des susceptibilités. Ces questions sont abordées dans le paragraphe suivant.

B. Le formalisme de l'optique non linéaire

Nous présentons dans ce paragraphe les éléments du formalisme de l'optique non linéaire qui nous seront utiles par la suite, et nous précisons nos notations. Nous considérons d'une part la définition des susceptibilités non linéaires, et d'autre part l'équation des ondes régissant l'évolution des champs lors de leur interaction avec un milieu non linéaire.

1. Définition formelle des susceptibilités non linéaires

Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, les susceptibilités jouent un rôle clé en optique non linéaire puisqu'elles caractérisent entièrement la façon dont la polarisation d'un milieu dépend du champ électrique auquel il est soumis, et qui sous-tend tous les processus non linéaires susceptibles de se manifester dans ce milieu. Nous allons préciser ici la façon dont sont définies ces quantités dans un cadre plus général que celui envisagé précédemment. Nous considérons le cas d'un milieu non linéaire interagissant avec un champ électrique $\mathbf{E}$ résultant de la somme discrète d'ondes planes monochromatiques $\mathbf{E}_n$ de vecteurs d'onde $\mathbf{k}_n$ et de fréquences ω_n :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_{n>0} \mathbf{E}_n(\mathbf{r}, t) \quad (\text{I.B-1})$$

et nous distinguons les composantes de fréquence positive et négative des ondes $\mathbf{E}_n$:

$$\mathbf{E}_n(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_n^+(\mathbf{r}, t) + \mathbf{E}_n^-(\mathbf{r}, t) \quad (\text{I.B-2})$$

avec⁽²⁾ :

$$\mathbf{E}_n^+(\mathbf{r}, t) = \sum_{i=x,y,z} \mathcal{E}_{n,i} \mathbf{e}_i \exp(-i\omega_n t + i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}) = \mathbf{E}_n^-(\mathbf{r}, t)^* \quad (\text{I.B-3})$$

où $\mathbf{e}_i$ désigne le vecteur unitaire pointant dans la direction d'espace i , et où $(\cdot)^*$ désigne le complexe conjugué de $(\cdot)$. Il est important de noter qu'avec la convention (I.B-3), $\mathcal{E}_{n,i}$ est une quantité *complexe* dont le module est égal à la *demi-amplitude* de la composante de polarisation $\mathbf{e}_i$ du champ électrique $\mathbf{E}_n$. Le fait que les composantes de fréquence positive et négative sont complexes conjuguées l'une de l'autre résulte du fait que le champ $\mathbf{E}_n$ est une quantité réelle. Par la suite, nous utiliserons également une autre notation pour l'amplitude $\mathcal{E}_{n,i}$ et son complexe conjugué :

(1) Le lecteur intéressé par cette approche pourra se référer aux ouvrages généraux [Bloembergen 65], [Shen 84], [Butcher 90], [Boyd 92], etc...

(2) Dans tout ce cours, nous désignerons les quantités variant rapidement temporellement (à la fréquence optique) et/ou spatialement (variation à l'échelle de la longueur d'onde optique) par des lettres romaines, et les fonctions enveloppes associées, variant beaucoup plus lentement, par les mêmes lettres en caractères cursifs.

$$\begin{cases} \mathcal{E}_{n,i} = \mathcal{E}_i(\omega_n) \\ \mathcal{E}_{n,i}^* = \mathcal{E}_i(-\omega_n) \end{cases} \quad (\text{I.B-4})$$

qui est très commode, bien que la fréquence ω_n soit un paramètre et non un argument reflétant une véritable dépendance fonctionnelle. Ceci nous permettra ainsi de récrire l'Eq. (I.B-1) sous la forme compacte :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_n \sum_{i=x,y,z} \mathcal{E}_i(\omega_n) \mathbf{e}_i \exp(-i\omega_n t + i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}) \quad (\text{I.B-5})$$

où la somme porte sur les valeurs positives et négatives de n , avec la convention :

$$\begin{cases} \omega_{-n} = -\omega_n \\ \mathbf{k}_{-n} = -\mathbf{k}_n \end{cases} \quad (\text{I.B-6})$$

La non-linéarité du matériau se traduit par l'existence d'une polarisation, fonction non linéaire du champ électrique total (supposée *locale*, c'est-à-dire que sa valeur en un point d'espace dépend uniquement de la valeur du champ en ce point), dont nous supposons qu'elle admet un développement en puissances des composantes de ce champ. Dans ces conditions, la polarisation du milieu apparaît comme une somme de composantes de Fourier spatiales et temporelles, combinaisons linéaires des composantes de Fourier du champ électrique, que l'on repère collectivement par un indice m prenant également des valeurs positives et négatives⁽¹⁾ :

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \sum_m \sum_{i=x,y,z} \mathcal{P}_i(\omega_m) \mathbf{e}_i \exp(-i\omega_m t + i\mathbf{k}_m \cdot \mathbf{r}) \quad (\text{I.B-7})$$

Les non-linéarités d'ordre p du matériau sont caractérisées par les termes $\mathcal{P}_i(\omega_m)$ (notés également $\mathcal{P}_i^{(p)}(\omega_m)$) de cette somme impliquant un produit de p composantes du champ électrique. On exprime alors la relation entre la polarisation non linéaire $\mathcal{P}_i^{(p)}(\omega_m)$ et ces p composantes du champ électrique au moyen du *tenseur de susceptibilité non linéaire d'ordre p* , $\chi^{(p)}$, selon :

$$\mathcal{P}_i^{(p)}(\omega_m) = \epsilon_0 \sum_{n_1, \dots, n_p} \sum_{l_1, \dots, l_p} \chi_{i, l_1, \dots, l_p}^{(p)}(\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_p}) \mathcal{E}_{l_1}(\omega_{n_1}) \dots \mathcal{E}_{l_p}(\omega_{n_p}) \quad (\text{I.B-8})$$

où la somme est restreinte aux indices n_j vérifiant les deux relations :

$$\omega_m = \sum_{j=1}^p \omega_{n_j} \quad (\text{I.B-9.a})$$

$$\mathbf{k}_m = \sum_{j=1}^p \mathbf{k}_{n_j} \quad (\text{I.B-9.b})$$

Comme le montrent les Eqs (I.B-9), la polarisation non linéaire contient des composantes de fréquence absentes du champ électrique incident. Le champ rayonné par les dipôles induits dans le matériau peut donc conduire à la génération de nouvelles ondes. La relation (I.B-9.b) traduit plus particulièrement le fait que la composante de polarisation d'indice m n'oscille pas dans tout le matériau avec la même phase. La variation spatiale de cette phase reflète celle du produit des champs lasers induisant la polarisation. Il est donc naturel qu'elle soit décrite par le vecteur d'onde $\mathbf{k}_m$ égal à la somme des vecteurs d'onde des lasers impliqués dans l'expression (I.B-9.a).

2. Propriétés des susceptibilités non linéaires

Nous passons ici en revue quelques propriétés de symétrie des susceptibilités non linéaires $\chi^{(p)}$, en donnant leur démonstration lorsque celle-ci est brève. La connaissance de telles propriétés est essentielle, puisqu'elle permet souvent de réduire de façon considérable le nombre de termes indépendants intervenant dans l'Eq. (I.B-8). Les propriétés les plus couramment utilisées sont les suivantes :

- ◆ **Réalité de la polarisation** : La polarisation non linéaire et les champs électriques étant des quantités réelles, les Eqs (I.B-4) et (I.B-8) impliquent que l'on a :

$$\chi^{(p)}(-\omega_m; -\omega_{n_1}, \dots, -\omega_{n_p}) = \chi^{(p)}(\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_p})^* \quad (\text{I.B-10})$$

(1) Nous noterons $\mathbf{k}_m$ et non $\mathbf{k}_m^*$, le vecteur caractérisant la dépendance spatiale des composantes de polarisation. Ce choix est motivé par le fait que $\mathbf{k}_m$ n'est pas *a priori* relié à la fréquence ω_m par une relation de dispersion du type de celle liant $\mathbf{k}_n$ à ω_n .

Cette propriété permet ainsi d'éliminer la moitié des termes de (I.B-8).

- ◆ **Symétrie intrinsèque de permutation** : Les indices de sommation n_j et i_j figurant dans l'Eq. (I.B-8) étant des indices muets, l'expression (I.B-8) reste inchangée dans toute permutation du type :

$$\begin{cases} n_j \leftrightarrow n_k \\ i_j \leftrightarrow i_k \end{cases} \quad (\text{I.B-11})$$

En conséquence, il est commode de poser *par convention* :

$$\chi_{i_1, \dots, i_p, j_1, \dots, j_p}^{(p)}(\omega_m; \dots, \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_p}, \dots) = \chi_{i_1, \dots, i_p, j_1, \dots, j_p}^{(p)}(\omega_m; \dots, \omega_{n_p}, \dots, \omega_{n_1}, \dots) \quad (\text{I.B-12})$$

Il est important de noter que cette relation de symétrie résulte d'un *choix* de définition des susceptibilités et non d'une propriété fondamentale.

- ◆ **Symétrie d'inversion** : On dit qu'un matériau possède la symétrie d'inversion (on dit aussi qu'il est centro-symétrique) lorsque les constituants élémentaires responsables de sa réponse non linéaire sont globalement ou individuellement invariants par parité (c'est-à-dire l'échange des directions d'espace $\mathbf{r} \rightarrow -\mathbf{r}$). Pour un tel matériau, la polarisation doit nécessairement changer de signe lorsque le champ électrique change lui-même de signe (deux directions opposées étant rigoureusement équivalentes). Cette propriété implique qu'il ne peut y avoir de puissances paires du champ électrique dans le développement (I.B-8) de la polarisation. Ainsi, *dans un matériau possédant la symétrie d'inversion, les susceptibilités non linéaires d'ordre pair sont toutes nulles*. La non-linéarité non nulle d'ordre le plus bas est donc celle d'ordre 3. Mentionnons que d'un point de vue plus général, toute symétrie spatiale du matériau non linéaire se reflète au niveau des susceptibilités.

- ◆ **Cas d'un milieu sans perte** : Dans le cas où le milieu non linéaire est sans perte (on dit également que le milieu est purement dispersif), deux propriétés de symétrie se rajoutent aux précédentes, que nous donnons ici sans démonstration. La première exprime que *toutes les susceptibilités non linéaires sont purement réelles*. La seconde, qui porte le nom de *symétrie complète de permutation*, exprime que *toutes les fréquences des susceptibilités peuvent être permutées dès lors que l'on permute de la même façon les indices associés aux coordonnées cartésiennes*. Cette propriété ajoute à la symétrie intrinsèque de permutation (I.B-12) des relations du type :

$$\chi_{i_1, \dots, i_p, j_1, \dots, j_p}^{(p)}(\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_p}, \dots) = \chi_{i_1, \dots, i_p, j_1, \dots, j_p}^{(p)}(-\omega_{n_p}; \omega_{n_1}, \dots, -\omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_p}) \quad (\text{I.B-13})$$

qui, d'après la relation (I.B-10) et la réalité des susceptibilités, peut se récrire :

$$\chi_{i_1, \dots, i_p, j_1, \dots, j_p}^{(p)}(\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_p}, \dots) = \chi_{i_1, \dots, i_p, j_1, \dots, j_p}^{(p)}(\omega_{n_p}; -\omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_1}, \dots, -\omega_{n_p}) \quad (\text{I.B-14})$$

- ◆ **Loin de toute fréquence de résonance du milieu : la symétrie de Kleinman** : Le fait que toutes les fréquences impliquées dans le processus non linéaire (champ électrique et polarisation) soient situées très loin de toute fréquence de résonance du matériau a deux conséquences importantes. D'une part, le matériau se comporte comme un milieu sans perte, de sorte que les propriétés de symétrie évoquées précédemment s'appliquent. D'autre part, on peut considérer en bonne approximation que *les susceptibilités non linéaires sont indépendantes de la fréquence*. Cette dernière propriété, combinée avec les relations (I.B-12) et (I.B-14), exprime que *les susceptibilités non linéaires sont invariantes par permutation quelconque des indices de coordonnées cartésiennes, sans changer les fréquences*. Cette propriété porte le nom de *symétrie de Kleinman*.

3. L'équation des ondes non linéaire

La relation constitutive (I.B-8) entre polarisation non linéaire et composantes cartésiennes du champ électrique caractérise entièrement la *réponse non linéaire d'un matériau* soumis à un champ électrique. Toutefois, l'objet d'étude principal de l'optique non linéaire est le champ électrique lui-même, et plus précisément sa propagation à travers le matériau non linéaire. Or, pour décrire cette propagation, il est nécessaire de prendre en compte le *couplage* entre les ondes lumineuses et la polarisation qu'elles induisent. Ce couplage est décrit au moyen d'une équation des ondes non linéaire issue des équations de Maxwell, où la polarisation joue le rôle d'un terme source. Nous montrons dans ce paragraphe comment cette équation est obtenue, quelle est sa forme, et quelles sont les approximations qu'il est possible d'effectuer pour la résoudre. Nous nous limiterons ici, et dans toute la

suite de ce cours, au cas où les champs électriques résultent d'une somme discrète d'ondes planes du type (I.B-1).

Le point de départ pour l'établissement de l'équation des ondes non linéaire est l'ensemble des équations de Maxwell décrivant la propagation des ondes dans un milieu matériel. Dans la situation d'un milieu non magnétique où les densités de charge et de courant macroscopiques sont nulles (ce qui est très généralement le cas en optique), celles-ci prennent la forme :

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (\text{I.B-15.a})$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{B} \quad (\text{I.B-15.b})$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E} + \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{P} \quad (\text{I.B-15.c})$$

où c est la vitesse de la lumière dans le vide. En combinant le rotationnel de l'Eq. (I.B-15.b) et la dérivée temporelle de l'Eq. (I.B-15.c), on obtient alors :

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} - \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P} \quad (\text{I.B-16})$$

qu'il est possible de transformer au moyen de l'identité vectorielle :

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E} \quad (\text{I.B-17})$$

et en utilisant le fait que le premier terme du second membre de l'Eq. (I.B-17) est nul, puisque le champ $\mathbf{E}$ est somme discrète d'ondes planes. L'Eq. (I.B-16) se réduit alors à :

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P} \quad (\text{I.B-18})$$

Il est alors commode d'effectuer une décomposition de Fourier *temporelle* du champ électrique et de la polarisation du milieu, tout en distinguant les parties linéaire et non linéaire de celle-ci. En supposant le matériau isotrope (ce que nous ferons toujours par la suite), et caractérisé par une susceptibilité linéaire $\chi^{(1)}$ purement réelle (ce qui revient à négliger l'absorption linéaire, phénomène que l'on cherche toujours systématiquement à minimiser dans les applications), on peut ainsi écrire pour chaque composante de fréquence $\mathbf{P}(\omega)$ de la polarisation⁽¹⁾ :

$$\mathbf{P}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \mathbf{E}(\omega) + \mathbf{P}^{NL}(\omega) \quad (\text{I.B-19})$$

où la polarisation non linéaire $\mathbf{P}^{NL}(\omega)$ est définie avec les mêmes notations qu'au §I.B.1 :

$$\mathbf{P}^{NL}(\omega) = \sum_m \sum_{p>1} \sum_i \mathcal{P}_i^{(p)}(\omega_m) \mathbf{e}_i \exp(i\mathbf{\kappa}_m \cdot \mathbf{r}) \delta(\omega - \omega_m) \quad (\text{I.B-20})$$

où δ désigne la distribution de Dirac. En portant l'Eq. (I.B-19) dans (I.B-18), on obtient alors :

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\omega) + n^2(\omega) \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\omega) = -\frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{P}^{NL}(\omega) \quad (\text{I.B-21})$$

où $n(\omega) = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)}$ est l'indice de réfraction du milieu à la fréquence ω . L'Eq. (I.B-21) est appelée *équation des ondes non linéaire*. Elle a la forme de l'équation des ondes habituelle pour un milieu d'indice de réfraction $n(\omega)$, mais possède un terme source proportionnel à la polarisation non linéaire du milieu. Les produits d'amplitudes des champs contenus dans $\mathbf{P}^{NL}(\omega)$ décrivent l'interaction entre ondes lasers présentes dans le milieu non linéaire, les coefficients de couplage entre ondes étant proportionnels aux susceptibilités non linéaires du matériau. Du fait de ces termes d'interaction à plusieurs ondes, la propagation des champs dans le milieu non linéaire doit en fait être décrite par un *système d'équations couplées* du type (I.B-21), dont le nombre est généralement supérieur à celui des ondes lasers incidentes. Selon leur dépendance spatiale et temporelle, les composantes de polarisation $\mathcal{P}_i^{(p)}(\omega_m)$ peuvent en effet engendrer deux types de processus dans le milieu non linéaire. Le premier correspond à une modification de la propagation des ondes lasers incidentes (*changement de l'indice de réfraction, modification de l'intensité*), tandis que le second correspond à la génération de *nouvelles* composantes de Fourier du champ à partir des ondes incidentes (mélange de fréquence, effet Raman stimulé,

(1) $\mathbf{E}(\omega)$ ne doit pas être confondu avec $\mathcal{E}(\omega)$, qui ne contient pas la dépendance spatiale rapide du champ.

conjugaison de phase, etc...). Il arrive même que les nouvelles ondes ainsi générées deviennent suffisamment intenses pour donner à leur tour naissance à de nouveaux champs, qui à leur tour... En conclusion, le nombre d'équations non linéaires couplées à prendre en compte peut devenir considérable.

4. Simplification du système d'équations non linéaires couplées

Fort heureusement, dans la majorité des situations d'intérêt pratique, plusieurs facteurs contribuent à rendre peu important le nombre d'équations couplées à prendre en compte. Nous passons ici en revue quelques critères à considérer lors de l'analyse d'une situation concrète, ou avant de se lancer dans la résolution d'un système d'équations non linéaires couplées monstrueux. Nous supposons que la simplification de la relation constitutive (I.B-8) a déjà été effectuée au moyen des propriétés de symétrie exposées au §I.B.2.

a. Exaltation résonnante des non-linéarités

Le phénomène d'exaltation résonnante des non-linéarités est souvent très sélectif en fréquence. Le nombre de composantes des tenseurs de susceptibilité non linéaire ayant une valeur non négligeable peut ainsi être très restreint, réduisant significativement le nombre d'équations non linéaires couplées.

b. La condition d'accord de phase

Comme nous l'avons déjà mentionné, l'intensité du champ rayonné par la composante de polarisation $\mathcal{P}_i^{(p)}(\omega_m)$ dépend crucialement de la relation de phase entre les N_{dip} dipôles du matériau. Le champ total rayonné par le milieu non linéaire est en effet égal à la somme des champs émis par chacun de ses dipôles, qui oscillent avec une phase dépendant du champ électrique auquel ils sont soumis. Comme nous l'avons vu, la variation spatiale de cette phase est décrite par le vecteur d'onde $\mathbf{k}_m$ associé à la composante de polarisation $\mathcal{P}_i^{(p)}(\omega_m)$ (voir §I.B.2). Parallèlement, la relation de dispersion du matériau $k(\omega)$ (incluant la modification d'indice *non linéaire* due aux champs présents dans le milieu) impose une relation univoque entre fréquence ω et module du vecteur d'onde $\mathbf{k}$ de tout champ se propageant dans le matériau. Ainsi, le champ de fréquence ω_m , émis par la composante de polarisation $\mathcal{P}_i^{(p)}(\omega_m)$, subira nécessairement un déphasage à la propagation caractérisé par un vecteur d'onde $\mathbf{k}_m$ de module $k(\omega_m)$ (de même, le module du vecteur d'onde $\mathbf{k}_m$, en tant que somme de vecteurs d'onde des lasers incidents [Eq. (I.B-9.b)], dépend de façon indirecte de la relation de dispersion).

La condition pour que les champs rayonnés par les N_{dip} dipôles du matériau interfèrent de façon constructive est donc que le déphasage à la propagation décrit par le vecteur d'onde $\mathbf{k}_m$ compense exactement la différence de phase entre les dipôles liée à la propagation des ondes lasers incidentes, décrite par le vecteur d'onde $\mathbf{k}_m$. En d'autres termes, il faut que ces vecteurs d'onde vérifient :

$$\mathbf{k}_m = \mathbf{k}_m = \sum_{j=1}^p \mathbf{k}_{n_j} \quad (\text{I.B-22})$$

Lorsque cette condition, appelée *condition d'accord de phase*, est réalisée, l'amplitude du champ électrique émis est N_{dip} fois plus grande, et son intensité N_{dip}^2 fois plus grande, que celle correspondant à chaque dipôle. Lorsque la condition d'accord de phase n'est pas réalisée, les dipôles rayonnent de façon incohérente, de sorte que l'intensité du champ émis par le matériau est seulement N_{dip} fois celle d'un dipôle individuel. Dans la pratique, et compte tenu de la faible contribution de chaque dipôle (voir §I.A), cette différence d'un facteur N_{dip} (qui peut prendre des valeurs considérables dans un matériau de taille macroscopique) entre les deux situations fera qu'un processus non linéaire ne sera efficace que si la condition d'accord de phase est vérifiée⁽¹⁾.

Il sera ainsi possible d'éliminer du système d'équations non linéaires couplées toutes les composantes de polarisation ne satisfaisant pas de façon évidente la condition d'accord de phase. En particulier, toutes les composantes de polarisation associées à un vecteur d'onde $\mathbf{k}_m$ ayant un module très différent de $n(\omega_m)\omega_m/c$ (la valeur attendue en l'absence de processus non linéaire pour un champ de fréquence ω_m , et qui diffère peu lorsque les effets d'indice non linéaire sont pris en compte) seront toujours négligés.

(1) Plus précisément, on considérera que la condition d'accord de phase est vérifiée dès lors que l'Eq. (I.B-22) le sera à des termes d'ordre $1/L$ près (où L désigne la taille de la zone d'interaction entre champ et matériau non linéaire).

c. Limite d'une interaction non linéaire faible

Lorsque l'on est dans une situation où les processus non linéaires sont suffisamment faibles, il est souvent possible de négliger la modification de l'amplitude des champs incidents de forte intensité lors de leur propagation dans le matériau non linéaire. En conséquence, les équations d'évolution des champs incidents peuvent être négligées, tandis que celles des nouveaux champs générés deviennent généralement linéaires (on néglige les termes proportionnels aux produits de deux ou plusieurs champs nouvellement générés, d'amplitudes faibles).

d. L'approximation de l'enveloppe lentement variable

Dans la plupart des situations physiques, l'équation des ondes (I.B-21) peut être ramenée d'une équation différentielle d'ordre 2 à une équation différentielle d'ordre 1. Ceci s'effectue en cherchant sa solution par une méthode de type "variation de la constante". Les ondes lasers incidentes, ainsi que la polarisation non linéaire, ayant une structure de type onde plane, il est en effet naturel de chercher à décrire les champs⁽¹⁾ $\mathbf{E}(\omega_m)$ sous la forme d'un produit d'une fonction enveloppe $\mathcal{E}(\omega_m)$ et d'une onde plane solution de l'équation homogène associée à (I.B-21) :

$$\mathbf{E}(\omega_m) = \mathcal{E}(\omega_m) \mathbf{e} \exp[i\mathbf{k}_m \cdot \mathbf{r}] \quad (\text{I.B-23})$$

où le vecteur d'onde $\mathbf{k}_m$ a pour module :

$$|\mathbf{k}_m| = n(\omega_m) \frac{\omega_m}{c} \quad (\text{I.B-24})$$

et est orienté selon la direction de propagation du champ $\mathbf{E}(\omega_m)$. Avec cette convention, la dépendance spatiale rapide (à l'échelle de la longueur d'onde optique) du champ $\mathbf{E}(\omega_m)$ est entièrement contenue dans l'exponentielle complexe de l'Eq. (I.B-23), tandis que la fonction enveloppe décrit l'évolution à grande échelle du champ sous l'effet du couplage non linéaire. Il est donc possible de négliger dans l'Eq. (I.B-21) la dérivée seconde de l'enveloppe $\mathcal{E}(\omega_m)$:

$$|\nabla^2 \mathcal{E}(\omega_m)| \ll |[\mathbf{k}_m \cdot \nabla] \mathcal{E}(\omega_m)| \quad (\text{I.B-25})$$

Cette procédure porte le nom d'*approximation de l'enveloppe lentement variable*. Elle conduit à substituer à l'Eq. (I.B-21) une équation portant sur la fonction enveloppe :

$$[\mathbf{k}_m \cdot \nabla] \mathcal{E}(\omega_m) \mathbf{e} = \frac{i\omega_m^2}{2\epsilon_0 c^2} \mathbf{P}^{NL}(\omega = \omega_m) \exp[-i\mathbf{k}_m \cdot \mathbf{r}] \quad (\text{I.B-26})$$

L'équation différentielle de second ordre (I.B-21) est ainsi ramenée à une équation différentielle d'ordre 1.

En optique, l'approximation (I.B-25) est presque toujours vérifiée. La plupart des auteurs la justifient, comme nous l'avons fait ici, en se basant sur le fait que le membre de droite de l'Eq. (I.B-26), et donc la fonction enveloppe $\mathcal{E}(\omega_m)$, varient très lentement à l'échelle de la longueur d'onde optique. Toutefois, une telle interprétation ne permet pas d'identifier clairement les phénomènes physiques éventuels que l'approximation de l'enveloppe lentement variable fait disparaître du système. Comme l'a montré [Shen 84], celle-ci conduit en fait à négliger la composante du champ électrique rayonné par la polarisation dans la direction opposée au vecteur d'onde $\mathbf{k}_m$, champ qui est presque toujours négligeable (car il ne satisfait pas la condition d'accord de phase). Dans la pratique, et dans la suite de ce cours, nous utiliserons toujours l'Eq. (I.B-26) plutôt que l'Eq. (I.B-21) pour décrire les processus non linéaires.

C. Interprétation quantique des processus non linéaires

La description des processus non linéaires au moyen du couple tenseurs de susceptibilité - équations des ondes non linéaires présente le double avantage d'être générale et raisonnablement simple à manipuler techniquement. Le revers de son caractère très formel est qu'elle masque bien souvent le contenu physique des processus, et permet ainsi difficilement (si ce n'est par une exploration mathématique ou numérique) de déterminer les paramètres ou les conditions expérimentales permettant d'en optimiser l'efficacité. Dans la pratique, la

(1) Nous employons la notation générique $\mathbf{E}(\omega_m)$ pour désigner globalement les champs lasers incidents et les nouveaux champs générés à partir de ceux-ci par interaction non linéaire.

description physique d'un processus non linéaire intervient généralement lors du calcul de la polarisation non linéaire du milieu. Un tel calcul requiert souvent la quantification des degrés de liberté internes des constituants élémentaires du matériau (atomes, molécules), responsables de sa réponse non linéaire. La quantification du rayonnement électromagnétique est quant à elle beaucoup moins systématique. En effet, l'optique non linéaire repose essentiellement sur l'emploi de sources lasers de puissances moyennes ou élevées, et donc sur des flux de photons très importants (un laser infra-rouge continu de 1 W correspond à un flux de près de 10^{19} photons par seconde), de sorte que le caractère quantique du rayonnement électromagnétique n'y est généralement pas apparent. Pour cette raison, les processus non linéaires sont presque toujours décrits en considérant le champ comme une quantité classique.

Il apparaît néanmoins que la représentation des effets non linéaires en termes d'échanges élémentaires de photons entre ondes (processus de diffusion) *via* le matériau, ou de transferts d'énergie entre ondes et matériau (processus d'absorption et d'émission de photons) est toujours extrêmement suggestive, et permet généralement de parfaire sa connaissance et son intuition de l'effet étudié. L'intérêt d'une telle représentation est renforcé par le fait qu'elle ne nécessite pas nécessairement un recours explicite à l'électrodynamique quantique ou à la théorie de la diffusion⁽¹⁾, mais qu'elle s'obtient souvent par simple inspection du calcul de la polarisation non linéaire effectué dans le cadre de l'électrodynamique classique. Notre but sera ici simplement de donner quelques règles pratiques permettant de relier à vue les descriptions classique et quantique des processus étudiés.

1. Quand peut-on obtenir simplement une description quantique d'un processus non linéaire ?

La description entièrement quantique d'un processus non linéaire est *en principe* toujours possible, quel que soit le système étudié. Néanmoins, d'un point de vue *pratique*, certaines situations se prêtent mieux à une telle description que d'autres. La question posée dans ce paragraphe n'a bien entendu pas de réponse très nette, et l'on rencontre aussi bien des situations d'apparence complexe se représentant commodément du point de vue quantique (par exemple, certains processus non linéaires assistés par collisions entre deux espèces gazeuses), que des situations simples à première vue, et dont la représentation diagrammatique quantique est très complexe (par exemple, la diffusion Rayleigh stimulée).

On peut distinguer notamment trois raisons pour lesquelles une description quantique peut s'avérer délicate, *sans toutefois que cela soit systématique ou rédhibitoire* :

- ◆ **Le nombre ou la complexité des éléments intervenant dans la réponse non linéaire du matériau est très important.** C'est notamment le cas lorsque le processus non linéaire fait explicitement intervenir un *mécanisme de relaxation* lié au couplage du système avec un grand réservoir, et dont la description quantique peut être délicate, ou conduire à des calculs complexes. A cet égard, la relaxation due au couplage des atomes ou molécules avec le champ électromagnétique du vide (émission spontanée) occupe une place à part, puisqu'elle fait également intervenir des processus d'émission de photons, et peut donc être traitée simultanément et sans grosses difficultés avec l'interaction du milieu et des ondes incidentes.
- ◆ **Les champs impliqués dans le processus non linéaire sont très nombreux.** La difficulté provient alors du nombre considérable de diagrammes à prendre en compte pour le calcul des amplitudes de transition associées au processus non linéaire.
- ◆ **Le champ électrique possède une structure spatiale complexe,** qui rend inadéquate la notion de photons pour décrire l'effet non linéaire. C'est par exemple le cas du processus d'autofocalisation ou de filamentation d'un faisceau laser gaussien.

Afin d'éviter une discussion détaillée des nombreuses situations pouvant se produire, nous nous limiterons ici à la représentation diagrammatique des processus non linéaires faisant intervenir *exclusivement* les champs présents dans le milieu (ondes incidentes ou générées par interaction non linéaire), et les niveaux d'énergie des constituants élémentaires (atomes, molécules) du milieu non linéaire. Nous ne considérerons également que les situations où les champs lasers peuvent être assimilés en bonne approximation à des ondes planes. De tels processus pourront donc être décrits au niveau quantique au moyen d'un *Hamiltonien* faisant uniquement

(1) Pour un exposé complet de ces théories, voir par exemple [Cohen-Tannoudji 88].

intervenir les degrés de liberté internes des atomes ou molécules, ainsi que les modes quantiques du champ électromagnétique correspondant aux lasers incidents et aux champs générés par interaction non linéaire.

2. Quelques rappels sur les processus d'interaction entre photons et atomes⁽¹⁾

Afin de préciser le vocabulaire, nous considérerons ici le cas où les constituants élémentaires du matériau responsables de la réponse non linéaire sont des atomes, dont la structure des niveaux d'énergie est connue, et décrite au moyen d'un Hamiltonien atomique H_{int} agissant sur les degrés de liberté internes de l'atome (le cas des molécules se décrit de façon similaire). A l'approximation dipolaire électrique, le Hamiltonien H décrivant la dynamique du système formé par les atomes et le champ $\mathbf{E}$ a pour expression⁽²⁾ :

$$H = \frac{\mathbf{P}^2}{2M} + H_{int} + H_R - \mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}) \quad (\text{I.C-1})$$

où $\mathbf{P}$ et $\mathbf{R}$ sont les opérateurs impulsion et position de l'atome de masse M , et $\mathbf{d}$ l'opérateur moment dipolaire électrique. Le champ électromagnétique étant quantifié en jauge de Coulomb, le Hamiltonien du rayonnement H_R et l'opérateur champ électrique $\mathbf{E}$ s'expriment en fonction des opérateurs $a_n^\dagger$ et a_n décrivant la création et l'annihilation de photons dans le mode n du champ électromagnétique, caractérisé par la fréquence ω_n , le vecteur d'onde $\mathbf{k}_n$, et la polarisation $\mathbf{e}_n$:

$$H_R = \sum_n \hbar \omega_n \left(a_n^\dagger a_n + \frac{1}{2} \right) \quad (\text{I.C-2})$$

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \sum_n i \sqrt{\frac{\hbar \omega_n}{2\epsilon_0 V}} \left[a_n \mathbf{e}_n \exp(i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}) - a_n^\dagger \mathbf{e}_n \exp(-i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}) \right] \quad (\text{I.C-3})$$

où V est le volume de quantification du champ, et où la somme ne porte que sur les modes du champ électromagnétique des lasers incidents et des champs générés par interaction non linéaire. La comparaison des Eqs (I.C-3), (I.B-2) et (I.B-3) fait alors apparaître une correspondance entre représentations classique et quantique du champ électrique : à l'amplitude complexe E_n du champ classique correspond l'opérateur d'annihilation a_n , tandis que l'opérateur création $a_n^\dagger$ est associé au complexe conjugué E_n^* du champ classique.

On retient généralement comme base des états du système {atome + champ} l'ensemble des kets de la forme :

$$|\mathbf{p}; a; n_1, n_2, \dots\rangle \quad (\text{I.C-4})$$

décrivant un atome d'impulsion $\mathbf{p}$ dans l'état interne $|a\rangle$, et un champ quantique caractérisé par n_1 photons dans le mode 1, n_2 photons dans le mode 2, etc... Il apparaît clairement sur l'expression (I.C-1) du Hamiltonien du système {atome + champ} que ces états sont couplés entre eux par le terme $-\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R})$ décrivant l'interaction entre le dipôle atomique et le champ électrique. Plus précisément, l'Eq. (I.C-3) montre que seuls les états différant par un seul photon sont couplés directement par le Hamiltonien d'interaction $-\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R})$. Une autre propriété importante de l'interaction atome-rayonnement est qu'elle conserve l'énergie et l'impulsion totale du système {atome + champ}, qui sont définies par :

$$H_{tot} = \frac{\mathbf{P}^2}{2M} + H_{int} + H_R \quad (\text{I.C-5})$$

$$\mathbf{P}_{tot} = \mathbf{P} + \sum_n \hbar \mathbf{k}_n a_n^\dagger a_n \quad (\text{I.C-6})$$

On reconnaît sur (I.C-6) l'expression $\hbar \mathbf{k}_n$ correspondant à l'impulsion d'un photon de vecteur d'onde $\mathbf{k}_n$. Un processus d'absorption d'un photon du mode n par un atome fera ainsi passer son impulsion de $\mathbf{p}$ à $\mathbf{p} + \hbar \mathbf{k}_n$, tandis qu'un processus d'émission la fera passer de $\mathbf{p}$ à $\mathbf{p} - \hbar \mathbf{k}_n$.

Tout effet non linéaire correspond à un processus d'interaction entre photons et atomes. L'électrodynamique quantique permet de calculer l'amplitude de probabilité associée à de tels processus. Plus précisément, elle décrit

(1) Pour plus de détails, voir [Cohen-Tannoudji 88].

(2) Le champ considéré ici étant une somme discrète d'ondes planes, champs purement transverses, nous confonderons ici le champ total et sa partie transverse.

l'évolution du système {atome + champ} sous l'effet du Hamiltonien de couplage $-\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R})$, en traitant ce dernier comme une petite perturbation vis-à-vis du Hamiltonien (I.C-5). L'amplitude de probabilité est ainsi calculée sous la forme d'une série de perturbation dont chaque terme peut être représenté au moyen d'un diagramme. Ces diagrammes sont constitués d'une part des niveaux atomiques, et d'autre part de flèches décrivant la succession d'absorptions et d'émissions de photons (la longueur des flèches étant proportionnelle à l'énergie des photons), tels qu'ils figurent dans le terme considéré. Illustrons cette méthode de représentation sur un exemple, en considérant l'amplitude de probabilité T_{fi} pour un système d'effectuer une transition d'un état initial $|i\rangle = |a; n_1, n_2\rangle$ à un état final $|f\rangle = |b; n_1 - 1, n_2 + 1\rangle$ (pour simplifier, nous ne prendrons pas ici en compte l'impulsion atomique). Ces deux états diffèrent par deux photons, et l'action du Hamiltonien d'interaction $-\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R})$ sur un état changeant le nombre de photons d'une seule unité, une telle amplitude de probabilité n'apparaîtra à l'ordre le plus bas qu'au deuxième ordre de perturbation. On obtiendra ainsi un terme de la forme :

$$T_{fi} \propto \langle b; n_1 - 1, n_2 + 1 | a_2^\dagger \mathbf{d} \cdot \mathbf{e}_2 \exp(-i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}) | c; n_1 - 1, n_2 \rangle \langle c; n_1 - 1, n_2 | a_1 \mathbf{d} \cdot \mathbf{e}_1 \exp(i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}) | a; n_1, n_2 \rangle \quad (\text{I.C-7})$$

où $\mathbf{r}$ désigne la position du centre de masse atomique. En lisant ce terme de droite à gauche, on voit qu'il correspond à l'absorption d'un photon dans le mode 1 avec passage de l'atome dans le niveau intermédiaire $|c\rangle$, suivie de l'émission stimulée d'un photon dans le mode 2 avec passage de l'atome dans le niveau interne $|b\rangle$. On représentera ainsi un tel processus par le diagramme de la Fig. I.C-1.

FIG. I.C-1 : Représentation diagrammatique de l'amplitude de probabilité (I.C-7). L'absorption d'un photon dans le mode 1 est suivie de l'émission stimulée d'un photon dans le mode 2. L'énergie totale du système {atome + champ} est conservée au cours de ce processus, le champ transférant une partie de son énergie à l'atome.

Il est toutefois très important de noter que de tels diagrammes quantiques ne reflètent que *partiellement* la réalité d'un processus non linéaire. Premièrement, ces diagrammes changent selon la jauge choisie pour la quantification du champ électromagnétique (ici la jauge de Coulomb), et n'ont donc pas *individuellement* de véritable signification physique (par contre, la probabilité *totale* du processus est invariante de jauge). Deuxièmement, la représentation diagrammatique des amplitudes de transition quantiques en termes d'absorptions et d'émissions successives de photons privilégie la notion d'échange d'énergie entre le champ et le milieu diffuseur, et ne tient pas compte de façon explicite de la *phase* des ondes impliquées [contenue par exemple dans les facteurs exponentiels de l'Eq. (I.C-7)]. Or, la phase des différents termes du développement en série d'une *amplitude* de transition a une influence fondamentale sur la valeur de la *probabilité* de transition : il s'agit du phénomène bien connu d'interférence quantique entre amplitudes de transition pour des processus associés aux mêmes états initial et final. Dans le cadre de l'optique non linéaire, on peut distinguer deux types d'interférences quantiques, selon le niveau auquel elles se produisent :

- ◆ **Au niveau microscopique :** L'étude de la réponse non linéaire d'un constituant élémentaire unique du matériau peut faire apparaître l'amplitude de probabilité comme une somme de plusieurs termes, associés chacun à un diagramme du type de celui de la Fig. I.C-1. Il faut alors considérer que le processus non linéaire est décrit de façon *globale* par l'ensemble de ces diagrammes, auxquels il faut obligatoirement associer leur phase pour obtenir une description complète du processus. Dans la pratique, la présence de plusieurs diagrammes interférant entre eux est souvent associée à l'ordre dans lequel s'enchaînent les processus d'absorption et d'émission des photons, au nombre de ces processus, ainsi qu'aux différents états d'énergie intermédiaires du type de $|c\rangle$ dans l'Eq. (I.C-7). Néanmoins, l'exaltation résonnante des amplitudes de probabilité permet souvent de négliger la contribution d'un grand nombre de diagrammes.
- ◆ **Au niveau macroscopique :** Un processus non linéaire se produit lors de la propagation des champs lasers à travers un matériau de taille macroscopique. Il résulte donc de la somme des contributions d'un nombre considérable de constituants élémentaires du matériau. Au niveau quantique, la façon dont ces contributions s'ajoutent est décrite par les amplitudes de transitions associées à chacun des constituants élémentaires. Deux phénomènes peuvent influencer l'interférence entre ces amplitudes. Le premier, et le plus évident, est que la phase des différentes amplitudes de probabilité peut varier d'un constituant à l'autre (par exemple si la réponse non linéaire est due à deux types de constituants). Le second est que les états initial et final des processus quantiques contribuant à la réponse non linéaire du milieu peuvent être différents, de sorte que les amplitudes de probabilité associées ne peuvent interférer (ni constructivement, ni destructivement). Nous verrons au §I.C.4 que ce dernier effet est lié à la condition d'accord de phase.

3. Règles de correspondance classique → quantique

Le sens des représentations diagrammatiques et leur lien avec le calcul quantique des amplitudes de probabilité étant rappelés, il convient à présent de définir une procédure permettant de construire ces diagrammes à partir de la description classique des processus non linéaires. Les règles de correspondance classique → quantique que nous allons exposer ici ne sont pas le résultat d'une démonstration mathématique rigoureuse, mais plutôt le bilan de quelques années de pratique, et doivent donc être seulement considérées comme telles. Nous les formulerons uniquement dans le cas d'un processus non linéaire conduisant à la *génération d'un nouveau champ* à partir de ceux initialement présents dans le milieu.

Notre point de départ est l'expression de la polarisation non linéaire telle qu'elle est calculée ou donnée dans le cadre de l'électrodynamique classique. Nous nous intéressons à une composante de Fourier de cette polarisation (de fréquence non nulle pour donner un sens à la notion de photon), et plus particulièrement à l'un des termes de son développement en puissances du champ électrique. Nous cherchons alors à attribuer à ce terme un diagramme quantique, en se basant sur les amplitudes complexes des champs intervenant dans son expression. La règle à suivre est la suivante :

- ◆ L'amplitude d'un champ correspond à l'absorption d'un photon dans le mode associé, conformément à la correspondance $E_n \leftrightarrow a_n$ précédemment mentionnée.
- ◆ Le complexe conjugué de l'amplitude d'un champ correspond à l'émission d'un photon dans le mode associé, conformément à la correspondance $E_n^* \leftrightarrow a_n^\dagger$ précédemment mentionnée.
- ◆ La composante de polarisation dans son ensemble correspond à l'émission d'un photon dans le mode associé.
- ◆ L'ordre dans lequel interviennent ces absorptions et émissions n'est pas déterminé. Toutefois, parmi toutes les possibilités à considérer *a priori*, les diagrammes contribuent d'autant plus qu'ils sont résonnants. De plus, il arrive couramment que l'ordre dans lequel interviennent les composantes du champ dans la polarisation ait un sens physique précis. Il faut alors se restreindre aux diagrammes respectant cet ordre (pour un exemple, voir §III.C.1).
- ◆ A titre de vérification, on peut contrôler que l'intensité du champ rayonné par la composante de polarisation, calculée à partir de l'équation des ondes non linéaire, est cohérente avec les échanges d'énergie entre champ et matériau décrits par le diagramme quantique.
- ◆ Il faut enfin garder à l'esprit que *tous* les diagrammes susceptibles de contribuer (après avoir négligé les diagrammes non résonnants devant les diagrammes résonnants), ainsi que leurs phases, rendent seuls compte de façon complète du processus non linéaire.

Dans le cas d'un processus non linéaire conduisant à l'absorption d'une onde initialement présente dans le milieu, les règles énoncées ici s'appliquent généralement, à condition d'échanger les rôles de l'absorption et de l'émission. Dans le cas des effets non linéaires de *modification d'indice de réfraction* et d'*amplification d'un champ initialement présent* dans le milieu, elles doivent par contre être manipulées avec précautions, et tout spécialement lorsque le module carré de l'amplitude d'un champ figure dans la composante de polarisation. En effet, selon les cas, et en particulier selon que la composante de polarisation est en phase ou en quadrature avec un champ déjà présent dans le milieu, le module carré doit être représenté par *un seul* processus d'absorption ou d'émission (les autres amplitudes de champ figurant dans l'expression de la composante de polarisation dérogent alors également à la règle générale), ou par une succession absorption-émission (conformément à la règle générale). Enfin, et dans toutes les situations, il ne faut jamais oublier que l'intuition physique est toujours un guide d'une qualité irremplaçable.

La suite de ce cours sera largement illustrée d'exemples d'application de ces règles.

4. Interprétation quantique de la condition d'accord de phase

La condition d'accord de phase (I.B-22) discutée au §I.B.4.b, qui conditionne l'efficacité d'un processus non linéaire, possède une interprétation quantique très suggestive que nous présentons ici. Nous considérons à nouveau la génération d'un champ de fréquence ω_m et de vecteur d'onde $\mathbf{k}_m$ par la composante de polarisation $\mathcal{P}_i^{(p)}(\omega_m)$. Cette génération peut être considérée comme un processus de diffusion avec absorption⁽¹⁾ de p photons de fréquences ω_{n_i} et de vecteurs d'onde $\mathbf{k}_{n_i}$, et émission d'un photon de fréquence ω_m et de vecteur d'onde $\mathbf{k}_m$, la conservation de l'énergie imposant la condition (I.B-9.a).

Analysons maintenant les contributions de deux atomes A et B à un tel processus. Nous supposons que ces atomes sont initialement dans l'état fondamental $|a\rangle$, et que leurs centres de masse ont respectivement pour impulsion $\hbar\mathbf{K}_A$ et $\hbar\mathbf{K}_B$. L'état initial du rayonnement correspond à N_{n_i} photons dans les modes $\omega_{n_i}, \mathbf{k}_{n_i}$, et 0 photon dans le mode $\omega_m, \mathbf{k}_m$, de sorte que pour le système global {atome + champ}, l'état initial est :

$$|i\rangle = |a; \mathbf{K}_A\rangle \otimes |b; \mathbf{K}_B\rangle \otimes |N_{n_i}, \mathbf{k}_{n_i}, \omega_{n_i}; 0, \mathbf{k}_m, \omega_m\rangle \quad (\text{I.C-8})$$

Si la création du photon $\omega_m, \mathbf{k}_m$ résulte de l'interaction avec l'atome A , l'état final du processus est :

$$|f\rangle = |a; \mathbf{K}_A + \Delta\mathbf{k}\rangle \otimes |b; \mathbf{K}_B\rangle \otimes \left| \left(N_{n_i} - \frac{n_i}{|n_i|} \right) \mathbf{k}_{n_i}, \omega_{n_i}; 1, \mathbf{k}_m, \omega_m \right\rangle \quad (\text{I.C-9})$$

où l'atome A a encaissé l'impulsion $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_m - \mathbf{k}_{n_i}$ (voir Eq. (I.B-9.b)) en raison de la conservation de l'impulsion totale (I.C-6) du système {atome + champ} au cours du processus. Si en revanche l'émission du photon $\omega_m, \mathbf{k}_m$ résulte de l'interaction avec l'atome B , c'est ce dernier qui subit l'effet de recul, et l'état final du processus est :

$$|f'\rangle = |a; \mathbf{K}_A\rangle \otimes |b; \mathbf{K}_B + \Delta\mathbf{k}\rangle \otimes \left| \left(N_{n_i} - \frac{n_i}{|n_i|} \right) \mathbf{k}_{n_i}, \omega_{n_i}; 1, \mathbf{k}_m, \omega_m \right\rangle \quad (\text{I.C-10})$$

Lorsque $\Delta\mathbf{k} \neq 0$, les deux états finaux $|f\rangle$ et $|f'\rangle$ sont *différents*, de sorte que la probabilité d'émission d'un photon $\omega_m, \mathbf{k}_m$ est la *somme des probabilités* obtenues pour chaque atome. En revanche, lorsque $\Delta\mathbf{k} = 0$, l'état final du processus de diffusion est le *même* que l'atome diffuseur soit A ou B . Il n'est pas possible alors de préciser quel atome a émis le photon $\omega_m, \mathbf{k}_m$. Pour trouver la probabilité d'émission, il faut donc *additionner les amplitudes* de diffusion par chaque atome avant de prendre le module carré. Si les amplitudes de diffusion sont en phase, il en résulte une probabilité d'émission double dans la direction pour laquelle $\Delta\mathbf{k} = 0$, direction qui n'est autre que $\mathbf{k}_m = \mathbf{k}_{n_i}$.

Le raisonnement précédent peut être étendu à un nombre quelconque N_{at} d'atomes. L'émission de l'onde $\omega_m, \mathbf{k}_m$ dans la direction $\mathbf{k}_m = \mathbf{k}_{n_i}$ résulte de la contribution *cohérente* des divers atomes et croît comme N_{at}^2 alors que l'émission dans les autres directions augmente linéairement avec N_{at} . On retrouve ainsi dans le formalisme

(1) Avec la convention que l'absorption d'un photon de fréquence négative correspond en fait à l'émission d'un photon de fréquence positive correspondante.

quantique toutes les caractéristiques précédemment mentionnées de la condition d'accord de phase (I.B-22), bien que son interprétation physique soit ici différente : elle apparaît en effet comme une condition de *conservation de l'impulsion des atomes* au cours du processus de diffusion, qui garantit leur indiscernabilité et la cohérence de leurs contributions au processus non linéaire. Notons toutefois que cette condition ne doit pas obligatoirement être remplie pour que le processus non linéaire ait lieu. Elle garantit simplement son *efficacité maximale*.

D. Résumé des points importants

- ◆ Aux fortes intensités lasers, la réponse des matériaux au champ électrique n'est plus linéaire. Cette réponse non linéaire se traduit par l'apparition dans le milieu d'une polarisation fonction non linéaire des composantes cartésiennes de l'amplitude du champ électrique.
- ◆ Les tenseurs de susceptibilité non linéaire expriment le lien entre champ électrique et polarisation non linéaire d'un matériau donné. Ils décrivent de façon globale les propriétés non linéaires du matériau, dont l'origine est généralement microscopique, se situant au niveau des atomes ou molécules le constituant. Ils sont définis par la relation constitutive (I.B-8). Bien que possédant *a priori* un très grand nombre de composantes, ces tenseurs sont généralement caractérisés par un petit nombre de paramètres indépendants en raison de propriétés de symétrie (discutées au §I.B.2). Notamment, tout milieu possédant la symétrie d'inversion ne possède pas de non-linéarités d'ordre pair.
- ◆ La description de la propagation du champ électrique dans un milieu non linéaire s'effectue au moyen d'un système d'équations différentielles couplées ayant la forme d'une équation des ondes avec terme source proportionnel à une composante de polarisation non linéaire. Ce système d'équations peut être réduit dans la pratique à l'aide d'approximations, dont la plus courante est l'approximation de l'enveloppe lentement variable. La génération efficace d'un champ à partir d'une composante de polarisation est soumise à une condition d'accord de phase, dont la non satisfaction permet également de réduire le nombre d'équations couplées.
- ◆ La représentation des processus non linéaires dans le cadre de l'électrodynamique quantique permet souvent d'affiner la compréhension physique des phénomènes mis en jeu dans la réponse non linéaire d'un matériau. Quelques règles simples permettent de déterminer les diagrammes quantiques associés aux différentes composantes de la polarisation non linéaire calculées ou données dans le cadre de l'électrodynamique classique. Dans le formalisme quantique, la condition d'accord de phase s'interprète comme une condition de conservation de l'impulsion des constituants élémentaires du matériau au cours du processus non linéaire.

II. Effets non linéaires du second ordre

Nous nous proposons tout d'abord d'étudier un certain nombre de processus associés à l'existence d'une susceptibilité non linéaire du second ordre $\chi^{(2)}$ ou, de façon équivalente, d'une polarisation proportionnelle au produit de deux champs lasers. Les effets non linéaires du second ordre consistent essentiellement en des phénomènes de *mélange d'ondes*, incluant l'addition et la différence de fréquences, mais peuvent prendre des formes très variées. Afin de clarifier la présentation, nous distinguerons les effets impliquant une seule onde, ou deux ondes lasers différentes.

A. Effets impliquant une seule onde laser

Le système étudié est schématisé sur la Fig. II.A-1 : il consiste en un cristal non linéaire de longueur L , caractérisé par une susceptibilité du second ordre $\chi^{(2)}$ supposée purement réelle, qui est illuminé par une onde plane intense (dite onde *pompe*) de fréquence ω et d'amplitude $\mathcal{E}(\omega)$ se propageant le long de l'axe Oz (on ne tiendra pas compte ici de la polarisation des champs). Le champ électrique initialement présent dans le cristal a donc la forme :

$$E(z, t) = \mathcal{E}(\omega) \exp[-i\omega t + ik_{\omega}z] + c.c. \quad (\text{II.A-1})$$

où $k_\omega = n(\omega)\omega/c$ est le vecteur d'onde du champ pompe dans le cristal, proportionnel à l'indice de réfraction $n(\omega)$ du cristal à la fréquence ω .

FIG. II.A-1 : Schéma de principe d'une expérience de doublage de fréquence dans un cristal de longueur L . Les champs impliqués sont supposés être de même polarisation (non représentée sur la figure), et se propager le long de l'axe Oz .

Comme l'exprime la relation constitutive (I.B-8) dans le cas d'une susceptibilité non linéaire d'ordre 2, le cristal peut acquérir sous l'action du champ incident une polarisation non linéaire contenant deux composantes de Fourier :

◆ **L'une à la fréquence 2ω :**

$$\mathcal{P}^{(2)}(2\omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) E(\omega)^2 \quad (\text{II.A-2})$$

qui va rayonner une onde lumineuse à la fréquence double de celle du faisceau pompe, fréquence dite "seconde harmonique" par analogie avec l'acoustique. Cette composante de la polarisation est à l'origine du processus de *doublage de fréquence*, ou *génération de seconde harmonique*.

◆ **L'autre à fréquence nulle⁽¹⁾ :**

$$\mathcal{P}^{(2)}(0) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(0; \omega, -\omega) |E(\omega)|^2 \quad (\text{II.A-3})$$

qui est associée au phénomène de *rectification optique*, se traduisant par la création d'un champ électrique *statique* à partir d'une onde lumineuse.

Nous allons étudier ici ces deux effets, en débutant par celui qui donna lieu à la première observation expérimentale d'un effet optique non linéaire : le doublage de fréquence.

1. Le doublage de fréquence

Considérons le système de la Fig. II.A-1 et, afin de ne pas alourdir inutilement les calculs, supposons l'onde pompe suffisamment intense, ou le processus de doublage de fréquence suffisamment peu efficace, pour que l'on puisse négliger la variation de $E(\omega)$ [Eq. (II.A-1)] au cours de la traversée du milieu non linéaire (voir §I.B.4.c). En utilisant l'expression (II.A-2) de la polarisation, il est alors immédiat de résoudre l'Eq. (I.B-26) décrivant la propagation du champ à la fréquence double $E(2\omega)$, en prenant pour condition aux limites un champ nul à l'entrée du cristal ($E(2\omega)[z=0] = 0$). On obtient ainsi l'expression du champ à la sortie :

$$E(2\omega)[z=L] = \left(\frac{2\omega}{c}\right)^2 \frac{\chi^{(2)} E(\omega)^2}{2k_{2\omega}(\kappa_{2\omega} - k_{2\omega})} \left\{ \exp[i(\kappa_{2\omega} - k_{2\omega})L] - 1 \right\} \quad (\text{II.A-4})$$

avec $\kappa_{2\omega} = 2k_\omega = 2n(\omega)\omega/c$ [voir Eq. (I.B-9.b)], et $k_{2\omega} = n(2\omega)2\omega/c$ (où $n(2\omega)$ désigne l'indice de réfraction du cristal à la fréquence 2ω). En utilisant la relation $\Pi = 2n\epsilon_0 c |E|^2 S$ exprimant la puissance moyenne Π comme le flux du vecteur de Poynting à travers la surface S éclairée par le faisceau laser, on trouve l'expression de la puissance de sortie de l'onde de fréquence 2ω , $\Pi(2\omega)$, en fonction de la puissance de l'onde pompe incidente $\Pi(\omega)$ et de sa surface S de focalisation sur le milieu non linéaire :

$$\Pi(2\omega) = \frac{4 \left(\chi^{(2)}\right)^2 \omega^5}{\epsilon_0 c^6 S \kappa_{2\omega}^2 k_{2\omega}} \frac{\sin^2[(\kappa_{2\omega} - k_{2\omega})L/2]}{[(\kappa_{2\omega} - k_{2\omega})L/2]^2} \Pi(\omega)^2 L^2 \quad (\text{II.A-5})$$

(1) En fait, la composante de polarisation de fréquence nulle donnée par l'Eq. (I.B-8) contient un facteur 2 supplémentaire dû à la symétrie intrinsèque de permutation des susceptibilités (voir §I.B.2). Il est toutefois plus satisfaisant physiquement de réinclure ce facteur de dégénérescence dans la définition de la susceptibilité.

Cette relation appelle un certain nombre de commentaires :

- ◆ **L'effet est proportionnel au carré de la puissance pompe**, comme cela est attendu pour un effet non linéaire de second ordre. Il varie également en raison *inverse de la surface illuminée*. On pourrait *a priori* en conclure que l'on a intérêt à focaliser au maximum le faisceau incident. Cela est inexact : une forte focalisation s'accompagne nécessairement d'une rapide divergence du faisceau, qui fait diminuer son intensité lorsque l'on s'éloigne du foyer. *Le gain sur l'efficacité du doublage dans la zone focale est alors compensé par des pertes ailleurs*. En pratique, on s'arrangera pour que l'aire de la section du faisceau ne s'accroisse pas d'un facteur supérieur à 2 sur la longueur L du milieu non linéaire, ce qui correspond à une section de faisceau de l'ordre de $\lambda_0 L$ (λ_0 : longueur d'onde du faisceau pompe dans la vide).
- ◆ **La variation de l'efficacité du doublage de fréquence avec la longueur L du cristal** dépend de manière cruciale de la valeur respective des indices de réfraction aux deux fréquences concernées. Si la condition d'accord de phase (I.B-22) :

$$k_{2\omega} = \kappa_{2\omega} \quad (\text{II.A-6})$$

est remplie, le transfert énergétique de l'onde pompe vers l'onde doublée est maximal et croît comme L^2 . Si la condition (II.A-6), qui s'écrit également :

$$n(\omega) = n(2\omega) \quad (\text{II.A-7})$$

n'est pas remplie, la puissance du faisceau doublé présente un comportement oscillant en fonction de L , allant même jusqu'à s'annuler pour des longueurs de cristal multiples de $2\pi / (\kappa_{2\omega} - k_{2\omega})$ (voir Fig. II.A-2).

FIG. II.A-2 : Variation de l'efficacité du doublage de fréquence en fonction de la longueur L du cristal lorsque la condition d'accord de phase (II.A-7) n'est pas vérifiée.

Comme nous l'avons vu au §I.B, cet effet est dû à une *interférence destructive* entre les champs rayonnés à la fréquence 2ω par les différents points du cristal. La condition (II.A-7) exprime que dans le milieu non linéaire, la longueur d'onde à la fréquence 2ω est exactement la moitié de la longueur d'onde à la fréquence ω . La variation de l'indice de réfraction avec la fréquence étant monotone lorsque l'on se trouve loin des fréquences de résonance du milieu, cette condition apparaît de prime abord difficile à réaliser. Une façon commode et courante de contourner cette difficulté est d'utiliser un cristal biréfringent, où l'on peut rendre égaux, par exemple, l'indice ordinaire à la fréquence ω et l'indice extraordinaire à la fréquence 2ω ⁽¹⁾ (voir Fig. II.A-3). Comme ce dernier indice dépend de l'angle d'incidence de la lumière, il suffit de tourner le cristal par rapport au faisceau incident pour remplir la condition d'accord de phase, et ainsi obtenir l'efficacité de doublage maximale.

(1) Le faisceau de fréquence 2ω ayant une polarisation linéaire orthogonale à celle de l'onde pompe.

FIG. II.A-3 : Variation typique de la valeur des indices ordinaire et extraordinaire avec la fréquence laser.

En utilisant les règles de correspondance classique $\rightarrow$ quantique énoncées au §I.C.3, il est possible de décrire le phénomène de doublage de fréquence dans le cadre de la théorie quantique du rayonnement électromagnétique, en termes d'absorption et d'émission de photons par le milieu non linéaire. La composante de polarisation (II.A-2) impliquée dans ce phénomène étant proportionnelle au *carré* de l'amplitude du champ pompe, le processus de génération de seconde harmonique correspond à l'absorption de *deux* photons de l'onde pompe, et à la création d'un photon de fréquence double (voir Fig. II.A-4).

FIG. II.A-4 : Interprétation quantique du processus de doublage de fréquence. L'absorption de deux photons pompes de fréquence ω est suivie de l'émission d'un photon de fréquence 2ω .

Donnons pour finir un ordre de grandeur de l'effet de doublage dans des conditions expérimentales réalistes. Considérons un cristal de phosphate de titanyle et de potassium (KTP ou KTiOPO_4), l'un des plus efficaces actuellement sur le marché, de longueur 1 cm, éclairé par un laser Nd:YAG continu de 1 W (longueur d'onde $1.06 \mu\text{m}$) focalisé de manière optimale. Le cristal possédant une susceptibilité non linéaire $\chi^{(2)}$ de l'ordre de $5 \cdot 10^{-12} \text{ m/V}$, et une valeur commune des indices de réfraction $n(\omega)$ et $n(2\omega)$ de 1.7, l'Eq. (II.A-5) conduit à une puissance de faisceau doublé (longueur d'onde $0.53 \mu\text{m}$) de l'ordre de 1 mW, ce qui est relativement modeste. Pour augmenter le rendement de conversion, il faut soit enfermer le cristal non linéaire dans une cavité optique résonnante avec le champ pompe, soit utiliser des lasers impulsionnels de puissance crête bien plus importante. Dans les deux cas, on atteint couramment des *rendements de conversion de l'ordre de 50%*. La technique du doublage de fréquence est aujourd'hui largement utilisée, soit pour atteindre des domaines spectraux dans lesquels il y a peu de lasers disponibles (c'est la cas de l'ultra-violet), soit pour produire des faisceaux cohérents dans le visible à partir de lasers infra-rouges de grand rendement.

2. La rectification optique

Le dispositif expérimental du paragraphe précédent (Fig. II.A-1) peut également être le siège d'un deuxième phénomène non linéaire : la rectification optique. Comme nous l'avons vu (Eq. II.A-3), la polarisation induite dans le cristal par l'onde pompe incidente peut comporter une composante de fréquence nulle. Il apparaît donc une polarisation permanente dans le milieu, c'est-à-dire des charges électriques sur les faces du cristal perpendiculaires à la direction de polarisation de l'onde pompe, et par conséquent une différence de potentiel qui peut être mesurée.

Donnons simplement un ordre de grandeur de l'effet. Supposons pour simplifier un éclairement uniforme de toute la section droite du cristal par le faisceau incident. La tension V entre les deux faces du cristal distantes de L est égale à la circulation du champ électrostatique induit $\mathcal{P}^{(2)}(0)/\epsilon_0$, soit :

$$V = \chi^{(2)} L |\mathcal{E}(\omega)|^2 \quad (\text{II.A-8})$$

Pour le cristal de KTP du paragraphe précédent, supposé de section carrée de côté 1 mm, cette tension est de l'ordre du mV pour un faisceau incident de 250 W.

B. Effets impliquant deux ondes lasers

Considérons à nouveau le cas du cristal non linéaire du paragraphe précédent, mais éclairé à présent par deux faisceaux lasers monochromatiques de fréquences ω_1 et ω_2 . Supposons de plus, pour simplifier, que ces faisceaux sont colinéaires et de même polarisation. Le champ électrique total dans le cristal est alors du type :

$$E(z, t) = \mathcal{E}_1 \exp[-i\omega_1 t + ik_1 z] + \mathcal{E}_2 \exp[-i\omega_2 t + ik_2 z] + c.c. \quad (\text{II.B-1})$$

où $k_1 = n_1 \omega_1 / c$ et $k_2 = n_2 \omega_2 / c$ sont les vecteurs d'onde des faisceaux lumineux (avec n_1 et n_2 les indices de réfraction du cristal aux fréquences ω_1 et ω_2). Comme l'exprime la relation constitutive (I.B-8), le cristal peut alors acquérir une polarisation non linéaire contenant plusieurs composantes de Fourier spatiales (vecteur d'onde κ) et temporelles (fréquence ω) associées aux processus non linéaires suivants :

- ◆ $\omega = 2\omega_1$ et $\kappa = 2k_1$ ou $\omega = 2\omega_2$ et $\kappa = 2k_2$ [susceptibilité non linéaire de la forme $\chi^{(2)}(2\omega_i; \omega_i, \omega_i)$]. Il s'agit du doublage de fréquence étudié au paragraphe précédent.
- ◆ $\omega = \omega_1 + \omega_2$ et $\kappa = k_1 + k_2$ [susceptibilité $\chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2)$] : il s'agit du processus d'addition de fréquences, qui généralise à des fréquences différentes le doublage de fréquence déjà considéré.
- ◆ $\omega = 0$ et $\kappa = 0$ [susceptibilité $\chi^{(2)}(0; \omega_1, -\omega_1)$] : c'est le phénomène de rectification optique décrit au §II.A.2.
- ◆ $\omega = \omega_1 - \omega_2$ et $\kappa = k_1 - k_2$ [susceptibilité $\chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2)$] : c'est le processus de mélange paramétrique entre les deux ondes incidentes, que nous allons maintenant étudier.

1. Le mélange paramétrique

Plaçons-nous dans le cas où l'onde E_1 qui a la plus grande fréquence est également la plus intense (on l'appellera l'onde *pompe*), de sorte que l'on pourra négliger la variation de son amplitude lors de l'interaction non linéaire. La composante de polarisation impliquée dans l'effet paramétrique s'écrit :

$$\mathcal{P}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* \quad (\text{II.B-2})$$

et donne naissance à un champ de fréquence $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ dont l'enveloppe lentement variable $\mathcal{E}_3(z)$ obéit à l'Eq. (I.B-26) qui prend ici la forme :

$$\partial_z \mathcal{E}_3(z) = \frac{i\omega_3 \chi^{(2)}}{2n_3 c} \mathcal{E}_1(z) \mathcal{E}_2^*(z) \exp[i\Delta k z] \quad (\text{II.B-3})$$

où n_3 est l'indice de réfraction du milieu à la fréquence ω_3 , et $\Delta k = \kappa_3 - k_3 = k_1 - k_2 - k_3$. Remarquons que dès lors que $\mathcal{E}_3(z)$ est non nul, il y a possibilité de mélange paramétrique entre l'onde intense E_1 et E_3 , engendrant une polarisation à la fréquence $\omega_1 - \omega_3 = \omega_2$, qui va donc servir de terme source pour la variation de l'enveloppe $\mathcal{E}_2$, selon l'équation :

$$\partial_z \mathcal{E}_2(z) = \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{2n_2 c} \mathcal{E}_1(z) \mathcal{E}_3^*(z) \exp[i\Delta k z] \quad (\text{II.B-4})$$

Chacun des champs E_2 et E_3 varie donc d'une manière proportionnelle à l'amplitude de l'autre⁽¹⁾. Selon le signe des seconds membres des Eqs (II.B-3) et (II.B-4), en d'autres termes selon la *phase relative* des différents champs présents, cette interaction peut conduire à une amplification de E_2 et E_3 , ou à leur atténuation (simultanément, le champ E_1 est atténué dans le premier cas, et amplifié dans le second). La réduction de l'efficacité du processus d'amplification lorsque la condition d'accord de phase (I.B-22), c'est-à-dire ici $\Delta k = 0$, n'est pas vérifiée, apparaît très clairement sur les Eqs (II.B-3) et (II.B-4). Celles-ci montrent en effet que si Δk n'est pas nul, le facteur $\exp[i\Delta k z]$ contribue à la phase relative des champs d'une manière qui dépend du point du cristal z . Après propagation des ondes sur une longueur L donnée, l'effet cumulatif sera donc maximum lorsque $\Delta k = 0$, cas où il y a interférence constructive parfaite entre les champs rayonnés par les différents points du cristal.

La condition d'accord de phase est réalisée pour :

$$n_1\omega_1 = n_2\omega_2 + n_3\omega_3 \quad (\text{II.B-5})$$

Dans ce cas, les gains en intensité pour les deux ondes faibles sont maximaux. De surcroît, les équations couplées (II.B-3) et (II.B-4) se résolvent facilement et conduisent aux expressions des amplitudes $\mathcal{E}_2$ et $\mathcal{E}_3$ à la sortie du cristal :

$$\mathcal{E}_2(L) = \mathcal{E}_2(0) \cosh(g_{\text{par}} L) + i \sqrt{\frac{n_3\omega_3}{n_2\omega_2}} \mathcal{E}_3^*(0) \sinh(g_{\text{par}} L) \quad (\text{II.B-6.a})$$

$$\mathcal{E}_3(L) = \mathcal{E}_3(0) \cosh(g_{\text{par}} L) + i \sqrt{\frac{n_2\omega_2}{n_3\omega_3}} \mathcal{E}_2^*(0) \sinh(g_{\text{par}} L) \quad (\text{II.B-6.b})$$

avec :

$$g_{\text{par}} = \sqrt{\frac{\omega_2\omega_3}{n_2n_3}} \frac{|\chi^{(2)} E_1|}{2c} \quad (\text{II.B-7})$$

FIG. II.B-1 : Interprétation quantique du processus de mélange paramétrique. L'absorption d'un photon pompe de fréquence ω_1 est suivie de l'émission stimulée d'un photon signal de fréquence ω_2 . Conformément à la condition de conservation de l'énergie du système {champ + matériau}, ce processus s'accompagne de l'émission d'un photon complémentaire de fréquence ω_3 .

Dans la configuration où le champ E_3 est initialement nul ($\mathcal{E}_3(0)=0$), on obtient donc un effet de *gain paramétrique* sur l'onde E_2 , appelée onde *signal*, égal à $\cosh(g_{\text{par}} L)$, avec de plus génération d'une nouvelle onde E_3 dans le milieu, appelée onde *complémentaire*⁽²⁾. Comme dans le cas du doublage de fréquence, le processus de gain paramétrique peut s'interpréter quantiquement en termes d'absorption et d'émission de photons. On le représente, en appliquant les règles de correspondance du §I.C.3 à la composante de polarisation

- (1) De même, les champs E_2 et E_3 , par phénomène d'addition de fréquence, créent un terme source pour la variation du champ E_1 . Toutefois, cet effet fait intervenir le produit des amplitudes de deux champs supposés peu intenses, et est donc négligeable devant les deux processus considérés ici.
- (2) Ces ondes sont appelées en anglais *signal* et *idler*, dont la traduction littérale est "oisive" (qui est parfois employée).

(II.B-2), par le diagramme de la Fig. II.B-1, où l'amplification du champ E_2 apparaît comme résultant de l'absorption d'un photon de l'onde pompe à la fréquence ω_1 , suivie de l'émission stimulée d'un photon de fréquence ω_2 , et création d'un photon complémentaire à la fréquence ω_3 (garantissant la conservation de l'énergie totale du système {champ + matériau}). Ce diagramme montre clairement pourquoi le phénomène d'amplification à la fréquence ω_2 s'accompagne de la création d'une nouvelle onde à la fréquence ω_3 .

Donnons enfin un ordre de grandeur du gain réalisable expérimentalement. Le coefficient $g_{par} L$ dans un cristal de KTP de longueur 1 cm, éclairé par un laser continu de 1 W, de longueur d'onde 0.53 μm , et focalisé de manière optimale (comme pour le cas du doublage de fréquence) vaut 0.02. Ici encore, l'effet est faible, et il est nécessaire de recourir à des lasers impulsionnels pour atteindre un régime où les effets d'amplification sont facilement observables en un seul passage dans le milieu non linéaire.

2. L'oscillateur paramétrique optique

Nous avons montré au paragraphe précédent qu'un cristal non linéaire soumis à une onde intense de fréquence ω_1 peut se comporter comme un *amplificateur optique* à une fréquence inférieure ω_2 , et que cette amplification est inséparable de la génération dans le milieu d'une troisième onde de fréquence $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$. Un tel cristal peut donc être utilisé, au même titre qu'un amplificateur à inversion de population, pour réaliser un oscillateur optique. Le dispositif correspondant, dont nous allons à présent décrire les propriétés essentielles, porte le nom d'*oscillateur paramétrique optique* (ou OPO).

Nous supposons ici que la condition d'accord de phase (II.B-5) est remplie, et nous nous plaçons dans le cas où l'interaction paramétrique est peu efficace, de sorte que le facteur $g_{par} L$ est petit devant 1. En négligeant la variation spatiale de l'amplitude E_1 du champ pompe, les Eqs (I.B-6) prennent alors la forme simplifiée :

$$\begin{cases} E_2(L) = E_2(0) + i\xi_2 E_1(0) E_3^*(0) \\ E_3(L) = E_3(0) + i\xi_3 E_1(0) E_2^*(0) \end{cases} \quad (\text{II.B-8})$$

avec :

$$\xi_i = \frac{\omega_i L}{2n_i c} \chi^{(2)} \quad (i = 2, 3) \quad (\text{II.B-9})$$

Les amplitudes E_2 et E_3 jouent dans ces équations des rôles totalement symétriques. Il y a en fait *amplification croisée* des deux champs E_1 et E_2 , chacun servant de terme source pour la variation de l'autre. Dans la mesure où ne nous les distinguerons pas, nous les qualifierons collectivement de champs *signaux*.

FIG. II.B-2 : Schéma de principe d'un oscillateur paramétrique optique en anneau.

L'OPO est schématisé sur la Fig. II.B-2 : il est constitué d'un cristal non linéaire de longueur L dans lequel se produit l'interaction paramétrique, inséré dans une cavité optique de longueur L' délimitée par des miroirs totalement réfléchissants pour les fréquences ω_2 et ω_3 , et un miroir de sortie de coefficient de réflexion R peu différent de 1 (c'est-à-dire de coefficient de transmission $T = 1 - R \ll 1$). Nous supposons pour simplifier que cette cavité est en anneau. L'ensemble est pompé par un champ laser intense à la fréquence ω_1 (les miroirs sont supposés transmettre parfaitement cette onde, qui atteint donc l'entrée du cristal sans être perturbée).

Discutons à présent les conditions d'oscillation de l'OPO, en écrivant que le champ se retrouve identique à lui-même, en phase et en amplitude, au bout d'un tour de la cavité :

- ◆ **Condition d'oscillation sur la phase** : En écrivant que la phase des champs signaux reste inchangée (modulo 2π) après un tour de cavité, on obtient les relations :

$$\begin{cases} \frac{\omega_2}{c} [(n_2 - 1)L + L'] = p_2 2\pi \\ \frac{\omega_3}{c} [(n_3 - 1)L + L'] = p_3 2\pi \end{cases} \quad (\text{II.B-10})$$

où p_2 et p_3 sont des entiers. L'Eq. (II.B-10) indique que la cavité optique doit être *doublement résonnante* pour les deux ondes qui vont osciller dans l'OPO. Elle impose (avec la relation supplémentaire $\omega_1 = \omega_2 + \omega_3$) les fréquences auxquelles il peut y avoir émission paramétrique. Elle détermine également la longueur de cavité, qui doit satisfaire :

$$\frac{\omega_1}{2\pi c} = \frac{p_2}{(n_2 - 1)L + L'} + \frac{p_3}{(n_3 - 1)L + L'} \quad (\text{II.B-11})$$

On voit donc que l'OPO n'oscille que pour un ensemble discret de longueurs de la cavité, à la différence d'un laser où l'oscillation est possible pour toute longueur. En fait, un calcul plus détaillé montre que l'oscillation a lieu pour des longueurs pouvant s'écarter légèrement des valeurs obtenues par la formule (II.B-11). Pratiquement, cette condition implique que l'OPO est beaucoup plus sensible qu'un laser aux fluctuations de longueur de la cavité (vibrations, dilatation).

- ◆ **Condition d'oscillation sur l'amplitude** : Les amplitudes des champs signaux à la sortie et à l'entrée du cristal doivent être liées par :

$$\mathcal{E}_i(0) = \sqrt{R} \mathcal{E}_i(L) = (1 - T/2) \mathcal{E}_i(L) \quad (i = 2, 3) \quad (\text{II.B-12})$$

ce qui, combiné aux relations (II.B-8), conduit au système d'équations suivant pour les champs à l'entrée du cristal (on ne retient que les termes d'ordre 1 en T) :

$$\begin{cases} T \mathcal{E}_2(0) = 2i \xi_2 \mathcal{E}_1(0) \mathcal{E}_3^*(0) \\ T \mathcal{E}_3(0) = 2i \xi_3 \mathcal{E}_1(0) \mathcal{E}_2^*(0) \end{cases} \quad (\text{II.B-13})$$

Ce système linéaire homogène n'admet une solution non nulle en $\mathcal{E}_2, \mathcal{E}_3^*$ qu'à la condition que son déterminant soit nul, c'est-à-dire :

$$T^2 = 4 \xi_2 \xi_3 |\mathcal{E}_1(0)|^2 \quad (\text{II.B-14})$$

Cette relation fixe une valeur pour le champ pompe qui dépend du coefficient de réflexion de la cavité. Elle signifie qu'il existe une puissance pompe minimum, ou puissance seuil, correspondant à l'égalité entre gains et pertes au cours d'un tour de cavité, pour que l'émission de l'OPO puisse avoir lieu. Cette *condition de seuil* d'oscillation est équivalente à celle d'un laser, mais fait intervenir le *carré de la transmission* T au lieu de T simplement. Cette différence est encore à mettre sur le compte du caractère doublement résonnant de l'OPO. Donnons un ordre de grandeur du seuil d'oscillation dans les conditions expérimentales considérées au paragraphe précédent : cristal de KTP de longueur 1 cm pompé par un laser continu de $0.53 \mu\text{m}$ focalisé de manière optimale, avec un miroir de couplage de coefficient de transmission $T = 1\%$: il n'est que de 50 mW. Cette faible valeur du seuil d'oscillation montre bien tout l'intérêt des cavités résonnantes pour augmenter l'efficacité des effets optiques non linéaires.

Lorsque la condition (II.B-14) est satisfaite, l'Eq. (II.B-13) conduit à la relation suivante entre les amplitudes des deux champs signaux :

$$\sqrt{\xi_3} |\mathcal{E}_2(0)| = \sqrt{\xi_2} |\mathcal{E}_3(0)| \quad (\text{II.B-15})$$

L'interprétation physique de cette relation simple, appelée *relation de Manley-Rowe*, semble peu évidente au premier abord. En fait, en utilisant l'Eq. (II.B-9), il est possible de la récrire sous la forme équivalente suivante :

$$\frac{2\varepsilon_0 n_2 c |\mathcal{E}_2(0)|^2}{\hbar \omega_2} = \frac{2\varepsilon_0 n_3 c |\mathcal{E}_3(0)|^2}{\hbar \omega_3} \quad (\text{II.B-16})$$

Son interprétation apparaît alors plus transparente : elle indique que les flux numériques de photons (flux énergétique divisé par l'énergie d'un photon) dans les deux champs signaux émis par l'OPO sont égaux. La relation (II.B-15) corrobore ainsi l'interprétation quantique du mélange paramétrique donnée au paragraphe précédent (Fig. II.B-1) : les photons étant créés par paires (ω_2, ω_3), il y en a nécessairement toujours le même

nombre dans chacun des deux modes. Ceci illustre clairement l'intérêt de la description quantique des processus non linéaires : un calcul semi-classique effectué sans faire appel à la notion de photon ne trouve d'interprétation simple et naturelle que dans le cadre de la théorie quantique du rayonnement.

En conclusion, on retrouve pour l'OPO des conditions de fonctionnement très proches de celles d'un laser : existence d'un seuil d'oscillation, fréquences d'émission déterminées. Les équations sont légèrement plus compliquées que dans le cas d'un laser du fait de la présence simultanée de deux champs aux fréquences ω_2 et ω_3 , qui sont recyclés par la cavité optique et couplés par interaction non linéaire. Malgré des puissances maximales relativement basses (moins de 100 mW continus), liées essentiellement à des problèmes de dommages optiques dans le cristal non linéaire dus aux fortes densités de puissance optiques requises, l'OPO est une source de grand intérêt en raison de certaines caractéristiques originales :

- ◆ L'OPO émet deux faisceaux possédant les mêmes propriétés de cohérence qu'un faisceau laser habituel.
- ◆ Il présente d'autre part l'intérêt d'être facilement accordable, puisque ses fréquences d'émission ne sont pas liées à des niveaux d'énergie bien définis d'un atome ou d'une molécule. Très étudié pour cette raison dans les années 65-70, il a été progressivement supplanté par les lasers à colorants, plus faciles à manipuler, à stabiliser, ayant une meilleure qualité de faisceau, et de puissance maximale plus importante. Sa grande compacité, ainsi que la mise au point ces dernières années de cristaux non linéaires plus efficaces et résistant mieux aux fortes puissances, lui vaut toutefois aujourd'hui un regain d'intérêt, en particulier dans le domaine des applications militaires.
- ◆ Il a été démontré que le rayonnement produit par génération paramétrique a des propriétés quantiques particulières en ce qui concerne les fluctuations d'intensité relative des deux faisceaux signaux, apparaissant comme de véritables "jumeaux" quantiques. L'OPO permet également de produire des états "comprimés" du rayonnement (en anglais : *squeezed states*) [Fabre 90].

C. Résumé des points importants

- ◆ La non-linéarité d'ordre 2 se manifeste uniquement dans les milieux ne possédant pas la symétrie d'inversion.
- ◆ Elle donne lieu à tous les processus de mélange d'ondes, incluant la somme et la différence de fréquences, ainsi qu'au phénomène de rectification optique.
- ◆ La polarisation non linéaire oscillant à la fréquence double de celle du champ incident donne naissance au processus de génération de seconde harmonique qui, lorsque la condition d'accord de phase est vérifiée, peut atteindre une efficacité dépassant 50% à des puissances lasers modérées. Elle a ouvert la voie à la réalisation de sources lumineuses cohérentes dans de nouvelles gammes de longueurs d'onde.
- ◆ Un des processus non linéaires d'ordre 2 les plus intéressants est le phénomène d'amplification paramétrique. Ce processus se produit lorsqu'une onde signal de faible puissance et de fréquence ω_2 se propage dans un milieu non linéaire en présence d'une onde pompe intense de fréquence plus élevée ω_1 . Le battement entre les ondes pompe et signal donne alors lieu à la génération d'un champ complémentaire de fréquence $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$, proportionnel au produit des champs pompe et signal. Le battement entre l'onde complémentaire et l'onde pompe donne alors naissance à une polarisation de fréquence $\omega_1 - \omega_3 = \omega_2$ proportionnelle au produit des ondes pompe et complémentaire, c'est-à-dire au carré de l'onde pompe multiplié par le champ signal. Cette composante de polarisation peut donner lieu à un phénomène d'amplification de l'onde signal très efficace lorsque la condition d'accord de phase est vérifiée (d'où également un phénomène d'amplification de l'onde complémentaire). L'oscillateur paramétrique optique est une source cohérente, compacte et accordable sur une large gamme spectrale, basée sur ce mécanisme d'amplification.

III. Effets non linéaires du troisième ordre

Nous considérons à présent le cas des effets non linéaires associés à l'existence d'une susceptibilité du troisième ordre $\chi^{(3)}$ qui, comme nous l'avons vu, est la susceptibilité non linéaire d'ordre le plus bas apparaissant dans les milieux possédant la symétrie d'inversion. L'existence d'une polarisation cubique en amplitude du champ électrique donne lieu à une très grande variété de phénomènes optiques non linéaires. Une des conséquences de cette diversité est la difficulté d'interprétation de certaines expériences où plusieurs effets se manifestent simultanément, en étant par nature même couplés de façon non linéaire. Or dans la pratique, un dispositif expérimental (par exemple un laser à gain Raman) est généralement basé sur un seul processus optique non linéaire, et il convient avant tout de lutter contre tout autre effet susceptible d'en affecter les caractéristiques ou les performances. Il est donc indispensable d'acquiescer une bonne connaissance des processus non linéaires élémentaires susceptibles d'apparaître, de leurs conditions d'apparition et de leurs caractéristiques, afin de pouvoir les identifier, mais aussi les favoriser ou les éliminer. Comme au chapitre précédent, nous distinguerons les effets impliquant une seule, deux, ou trois ondes lasers différentes.

A. Effets impliquant une seule onde laser

Parmi les processus non linéaires de troisième ordre impliquant une seule onde laser, nous avons choisi de discuter ici plus particulièrement l'effet Kerr optique⁽¹⁾. Cet effet, certainement l'un des plus importants de toute l'optique non linéaire pour ses implications et ses applications, correspond à la propriété de certains matériaux de posséder un indice de réfraction dépendant linéairement de l'intensité du laser les traversant. L'effet Kerr intervient dans une très grande variété de phénomènes tels que l'auto-focalisation, l'auto-modulation de phase et de fréquence, la propagation d'impulsions solitons, les dispositifs de commutation et de traitement du signal optiques, etc... Notre but ici sera simplement de donner deux exemples parmi tant d'autres de systèmes donnant lieu à un effet Kerr optique, puis d'illustrer l'intérêt d'un tel effet pour la conception de dispositifs qui permettront peut-être un jour de réaliser un ordinateur entièrement optique.

1. L'effet Kerr optique

Dans le formalisme de l'optique non linéaire, l'effet Kerr optique correspond à l'existence dans un matériau d'une susceptibilité non linéaire de troisième ordre *purement réelle* de la forme $\chi^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega)$. Eclairé par une onde laser d'amplitude $\mathcal{E}$, de fréquence ω , et de vecteur d'onde $\mathbf{k}$, le matériau acquiert donc une polarisation non linéaire de la forme⁽²⁾ :

(III.A-1)
$$P_{NL}^{(3)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega) |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$$

qui se traduit par une modification de l'indice de réfraction du matériau du type :

(III.A-2)
$$n = n_0 + n_2 |\mathcal{E}|^2$$

Le premier terme n_0 est l'indice de réfraction linéaire "habituel" à la fréquence laser, tandis que le second terme $n_2 |\mathcal{E}|^2$ corrige l'indice d'une quantité proportionnelle à l'intensité du champ. Ce phénomène est appelé effet Kerr optique, car il est l'analogue pour des champs électriques oscillant aux fréquences optiques de l'effet Kerr habituel (à savoir la modification de l'indice d'un milieu sous l'effet d'un champ électrostatique, utilisé par exemple pour le déclenchement des lasers impulsifs⁽³⁾). n_2 est relié à la susceptibilité non linéaire par :

(III.A-3)
$$n_2 = \chi^{(3)}(\omega; \omega, \omega, -\omega) / 2n_0$$

(1) Un autre effet important, la génération de troisième harmonique, est en fait très semblable au doublement de fréquence présent au chapitre précédent.
(2) Comme dans le cas de la rectification optique, nous avons réinclus le facteur de dégénérescence lié à la symétrie intrinsèque de permutation dans la définition de la susceptibilité.
(3) L'effet Pockels, processus non linéaire de second ordre se traduisant par une modification de l'indice de réfraction du milieu sous l'effet d'un champ électrique statique, est également utilisé pour le déclenchement de tels lasers.

FIG. III.A-1 : Diagramme quantique associé à l'effet Kerr optique. Deux photons lasers sont absorbés et deux autres émis, laissant l'énergie du milieu non linéaire inchangée.

La description quantique de l'effet Kerr optique, représentée sur la Fig. III.A-1, n'est pas d'une très grande suggestivité. On peut toutefois remarquer qu'elle correspond à l'absorption et à l'émission de deux photons de même fréquence (celle du laser incident), de sorte que l'énergie du milieu reste inchangée au cours du processus.

Mécanisme physique		
n_2 (cm ² /W)	τ (s)	
10 ⁻¹⁶	10 ⁻¹⁵	Polarisation électronique
10 ⁻¹⁴	10 ⁻¹²	Orientation moléculaire
10 ⁻¹⁴	10 ⁻⁹	Electrostriction
10 ⁻¹⁰	10 ⁻⁸	Saturation d'une transition atomique
10 ⁻⁶	10 ⁻³	Effets thermiques

Tableau III.A-1 : Caractéristiques typiques des non-linéarités Kerr selon leur origine.

De nombreux phénomènes physiques peuvent être à l'origine d'un effet Kerr. Le Tableau III.A-1 en indique un certain nombre, avec la valeur typique de n_2 associée, ainsi que le temps de réponse τ du processus non linéaire (c'est-à-dire la durée caractéristique d'interaction laser-matériau nécessaire à l'instauration de la réponse non linéaire du milieu). Nous allons ici considérer plus particulièrement deux phénomènes choisis pour leur simplicité. Nous débiterons par le cas des atomes à deux niveaux où la saturation de la transition atomique conduit à un effet Kerr.

a. Réponse non linéaire d'atomes à deux niveaux

Le modèle de l'atome à deux niveaux occupe une place privilégiée dans les manuels d'optique non linéaire. Bien que surprenante à première vue (il n'y a pas de véritables atomes à deux niveaux, la plupart des applications pratiques de l'optique non linéaire n'utilisent pas de vapeurs atomiques), l'importance donnée à ce modèle repose en fait sur de solides bases physiques. D'une part, la réponse non linéaire d'un atome à deux niveaux, qui peut aisément être calculée dans le cadre de la mécanique quantique, possède des caractéristiques communes à de nombreux matériaux. D'autre part, les détails de la structure du spectre d'énergie d'un milieu ne jouent souvent pas un rôle fondamental dans sa réponse non linéaire. Du fait du comportement résonnant des non-linéarités au voisinage de transitions particulièrement énergétiques, il apparaît en effet que les processus non linéaires impliquent fréquemment un nombre très réduit de niveaux, qu'il est même souvent possible de ramener à une seule paire. Le modèle de l'atome à deux niveaux suffit alors à décrire la réponse non linéaire du milieu étudié.

L'interaction entre un atome à deux niveaux et un champ laser est décrite au moyen de l'équation de Bloch optique décrivant l'évolution de la matrice densité du système atomique. Cette équation, ainsi que la détermination de son état stationnaire, sont très connues et ne présentent pas de difficulté. Notre but n'est pas ici de rappeler cette approche (que l'on pourra par exemple trouver dans [Cohen-Tannoudji 88]), mais simplement d'en utiliser les résultats. Nous ferons plus particulièrement usage de l'expression du dipôle atomique moyen induit par un champ laser :

$$E(\mathbf{r},t) = E \exp(-i\omega t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + c.c. \quad (\text{III.A-4})$$

supposé quasi-résonnant avec la transition atomique, et qui prend la forme :

$$\langle d \rangle = \varepsilon_0 \chi \mathcal{E} \exp(-i\omega t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + c.c. \quad (\text{III.A-5})$$

où la susceptibilité atomique $\chi = \chi' + i\chi''$ est donnée par :

$$\chi' = -\frac{N d^2}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{\Delta}{\Delta^2 + \Gamma^2/4 + \Omega^2/2} \quad (\text{III.A-6.a})$$

$$\chi'' = \frac{N d^2}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{\Gamma/2}{\Delta^2 + \Gamma^2/4 + \Omega^2/2} \quad (\text{III.A-6.b})$$

avec N la densité atomique, Γ la largeur naturelle du niveau excité de l'atome, $\Delta = \omega - \omega_A$ le désaccord entre la fréquence laser (ω) et la fréquence de transition atomique (ω_A), et $\Omega = -2d|\mathcal{E}|/\hbar$ la fréquence de Rabi résonnante décrivant le couplage entre le champ laser d'amplitude $\mathcal{E}$ et le dipôle atomique d . Comme le montre l'Eq. (III.A-6), la susceptibilité atomique présente au dénominateur un terme proportionnel au carré de la fréquence de Rabi, c'est-à-dire proportionnel à l'intensité du champ électrique. Ce terme traduit l'existence d'un phénomène de *saturation de la transition atomique à forte intensité laser*. On constate également que les effets dispersifs (décrits par χ') et d'absorption (décrits par χ'') sont dans un rapport $-2\Delta/\Gamma$. Ainsi, à la limite des grands désaccords à résonance :

$$|\Delta| \gg \Gamma \quad (\text{III.A-7})$$

un ensemble d'atomes à deux niveaux se comportera comme un milieu purement dispersif (milieu sans perte). Enfin, on notera qu'à la limite des faibles intensités lasers où la fréquence de Rabi Ω peut être négligée au dénominateur de l'Eq. (III.A-6), la susceptibilité (linéaire) d'un ensemble d'atomes à deux niveaux est exactement de la forme (I.A-7) obtenue dans le cadre du modèle simple de l'oscillateur harmonique (voir §I.A).

Lorsque la condition (III.A-7) est vérifiée, et que la fréquence de Rabi Ω reste petite devant $|\Delta|$, ce que nous supposons par la suite, il est possible d'effectuer un développement perturbatif de l'Eq. (III.A-6) en puissances du petit paramètre Ω/Δ . En se limitant aux deux premiers termes non nuls du développement, et à l'ordre 0 en Γ/Δ , nous trouvons ainsi :

$$\chi = \chi^{(1)} + \chi^{(3)} |E|^2 \quad (\text{III.A-8})$$

où :

$$\chi^{(1)} = -\frac{N d^2}{\varepsilon_0 \hbar \Delta} \quad (\text{III.A-9})$$

est la susceptibilité linéaire, et où :

$$\chi^{(3)} = +\frac{2N d^4}{\varepsilon_0 \hbar^3 \Delta^3} \quad (\text{III.A-10})$$

est la susceptibilité non linéaire d'ordre 3 (l'absence de susceptibilité non linéaire du second ordre résultant de la symétrie d'inversion des atomes). On constate alors d'une part que les susceptibilités $\chi^{(1)}$ et $\chi^{(3)}$ sont toutes deux réelles (limite dispersive), et d'autre part que leurs signes sont opposés, comme cela est naturel pour un effet de saturation. Notons de plus que $\chi^{(1)}$ et $\chi^{(3)}$ changent de signe de part et d'autre de la résonance atomique (changement de signe de Δ).

L'indice de réfraction du milieu $n = \sqrt{1 + \chi}$ peut dans ces conditions s'écrire sous la forme (III.A-2) avec, à la limite des milieux dilués où $|\chi| \ll 1$:

$$\begin{cases} n_0 = 1 + \chi^{(1)}/2 \\ n_2 = \chi^{(3)}/2 \end{cases} \quad (\text{III.A-11})$$

Un ensemble d'atomes à deux niveaux (comme par exemple une vapeur atomique) peut donc effectivement conduire à un effet Kerr optique. Il offre l'avantage de pouvoir faire varier à volonté le signe de n_2 en changeant le signe du désaccord à résonance. L'ordre de grandeur de l'effet réalisable dans un tel milieu est indiqué dans le Tableau III.A-1. Ce tableau montre également que les milieux atomiques réalisent l'un des meilleurs compromis entre importance (n_2) et temps de réponse (qui correspond à la durée de vie du niveau excité de la transition atomique) de la non-linéarité.

b. Non-linéarité Kerr liée à l'orientation de molécules

Une dépendance linéaire de l'indice de réfraction avec l'intensité du champ incident se rencontre également pour des molécules anisotropes telles que CS_2 , benzène, acétone, etc... De telles molécules ont en effet tendance à s'orienter le long de la direction du champ électrique d'une onde laser, entraînant ainsi une modification de l'indice de réfraction du milieu. Cet effet peut aisément se comprendre sur le cas d'une molécule ayant la forme d'un cigare (comme CS_2), et pour laquelle la polarisabilité $\alpha_{\parallel}$ vue par une onde laser polarisée le long du grand axe de symétrie de cette molécule est plus grande que celle $\alpha_{\perp}$ vue par un champ polarisé orthogonalement à cet axe (Fig. III.A-2).

Du fait de cette anisotropie de polarisabilité, le dipôle $\mathbf{d}$ induit dans une telle molécule par le champ laser $\mathbf{E}$ (polarisé linéairement) n'est généralement pas parallèle à ce champ, si bien que la molécule est soumise à un couple :

$$\mathbf{C} = \mathbf{d} \times \mathbf{E} \quad (\text{III.A-12})$$

dont l'effet est de l'orienter le long du champ électrique. Cette tendance des molécules à s'aligner le long d'une direction privilégiée est toutefois atténuée par l'agitation thermique, qui tend à rendre l'orientation des molécules totalement aléatoire. L'état stationnaire du milieu, résultant d'un équilibre entre ces deux effets, peut être caractérisé au moyen de la fonction de distribution de Maxwell-Boltzmann $f(\theta, \varphi)$ pour les angles θ et φ des coordonnées sphériques, repérant la position du grand axe de la molécule par rapport au champ laser (Fig. III.A-2). On peut montrer que cette fonction de distribution est de la forme [Boyd 92] :

$$f(\theta, \varphi) \propto \exp \left[\frac{1}{6} (\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) (3 \cos^2 \theta - 1) \overline{E^2} / k_B T \right] \quad (\text{III.A-13})$$

où k_B est la constante de Boltzmann, T la température du milieu, la barre représentant la moyenne temporelle sur un temps long devant la période optique (le temps typique d'orientation des molécules étant de l'ordre de la picoseconde, c'est-à-dire beaucoup plus long que la période optique, le milieu n'est sensible qu'à l'intensité moyenne du champ laser).

FIG. III.A-2 : Molécule en forme de cigare présentant une anisotropie de polarisabilité responsable du phénomène d'orientation de la molécule le long du champ laser.

La connaissance de la distribution d'orientation des molécules (III.A-13) permet alors de déterminer la valeur de la polarisabilité moyenne $\langle \alpha \rangle$ du milieu, et donc la susceptibilité et l'indice. On trouve ainsi que l'indice de réfraction du milieu est de la forme (III.A-2), avec :

$$\begin{cases} n_0 = 1 + \frac{N}{6\epsilon_0} (\alpha_{\parallel} + 2\alpha_{\perp}) \\ n_2 = \frac{N(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp})^2}{90\epsilon_0 k_B T} \end{cases} \quad (\text{III.A-14})$$

où N est le nombre de molécules par unité de volume. L'ordre de grandeur de la non-linéarité Kerr associée est donnée dans le Tableau III.A-1. Elle est typiquement de quatre ordres de grandeur plus faible que celle des atomes à deux niveaux, mais son temps de réponse (temps d'orientation des molécules) est également de quatre

ordres de grandeur plus faible (ce qui peut être intéressant pour l'utilisation de lasers impulsionnels). Une autre différence importante avec le cas des atomes à deux niveaux réside dans le fait que n_2 est ici *toujours positif*, quelles que soient les valeurs des polarisabilités $\alpha_{\parallel}$ et $\alpha_{\perp}$. Ceci est dû au fait que le couple orientant les molécules est toujours dirigé de manière que le champ laser voie la plus grande valeur de la polarisabilité.

2. La bistabilité optique

Nous illustrons à présent l'intérêt de l'effet Kerr optique pour la réalisation de dispositifs entièrement optiques ayant des fonctionnalités analogues aux circuits électroniques.

a. Milieu Kerr dans une cavité

Considérons un milieu Kerr placé dans une cavité Fabry-Perot, et étudions la transmission de ce système sous l'action d'un champ laser incident d'intensité I_i (voir Fig. III.A-3).

Il est bien connu que la transmission T d'une telle cavité est maximum lorsque la distance L entre les deux miroirs est un multiple entier de la demi-longueur d'onde laser $\lambda/2$, et qu'elle décroît lorsque $2L/\lambda$ s'écarte de cette valeur entière p (Fig. III.A-4). La longueur d'onde λ de la lumière dans la cavité est égale à :

$$\lambda = \lambda_0 / n \quad (\text{III.A-15})$$

où n est l'indice du milieu Kerr donné par l'Eq. (III.A-2), et où λ_0 est la longueur d'onde de la lumière dans le vide. Le rapport $2L/\lambda$, qui détermine la transmission de la cavité, s'écrit donc :

$$2L/\lambda = n 2L/\lambda_0 \quad (\text{III.A-16})$$

et dépend de l'intensité du champ électrique se propageant dans le milieu par l'intermédiaire de l'indice n . Remplaçons dans l'expression donnant l'indice du milieu :

$$n = n_0 + n_2 I_c \quad (\text{III.A-17})$$

l'intensité *dans la cavité* I_c par l'intensité *transmise* I_t qui lui est reliée par la formule :

$$I_t = T_2 I_c \quad (\text{III.A-18})$$

où T_2 est la transmission du miroir de sortie. Nous pouvons alors récrire l'Eq. (III.A-16) sous la forme :

$$2L/\lambda = \left(n_0 + n_2 \frac{I_t}{T_2} \right) 2L/\lambda_0 \quad (\text{III.A-19})$$

La transmission T du Fabry-Perot étant égale à I_t/I_i , nous trouvons finalement :

$$2L/\lambda = \left(n_0 + n_2 \frac{I_i}{T_2} T \right) 2L/\lambda_0 \quad (\text{III.A-20})$$

FIG. III.A-3 : Cavité Fabry-Perot remplie par un milieu Kerr. Le milieu non linéaire, de longueur L , est supposé remplir toute la cavité qui est fermée par deux miroirs de coefficients de transmission T_1 et T_2 .

Il apparaît ainsi que pour un milieu Kerr, $2L/\lambda$ est une fonction linéaire de la transmission T de la cavité, qui dépend elle-même du facteur $2L/\lambda$ (voir Fig. III.A-4). Les *points de fonctionnement* du système sont donc obtenus en cherchant l'intersection de la courbe de réponse du Fabry-Perot présentée sur la Fig. III.A-4, avec la courbe décrivant la variation de $2L/\lambda$ avec T [Eq. (III.A-20)]. Selon les valeurs des paramètres $2L/\lambda_0$ et $n_2 I_i/T_2$, plusieurs comportements sont possibles. Ceux-ci peuvent être analysés de façon purement graphique, mais il est également possible dans certains cas d'en obtenir une description analytique simple, en utilisant une expression approchée du pic de transmission du Fabry-Perot représenté sur la Fig. III.A-4. Nous considérerons ici le cas d'une cavité Fabry-Perot de grande finesse, pour laquelle les pics de transmission sont donnés en bonne approximation par la lorentzienne :

$$T = \frac{T_{\max}}{1 + 4F^2 (2L/\lambda - p)^2} \quad (L = p\lambda/2) \quad (\text{III.A-21})$$

où $T_{\max}$ est la transmission maximum de la cavité :

$$T_{\max} = \frac{T_1 T_2}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2} \quad (\text{III.A-22})$$

qui est égale à 1 lorsque ses deux miroirs ont mêmes coefficients de réflexion ($R_1 = R_2$), et F est la finesse de la cavité :

$$F = \pi \frac{(R_1 R_2)^{1/4}}{1 - \sqrt{R_1 R_2}} \quad (\text{III.A-23})$$

qui caractérise la largeur de la courbe représentée sur la Fig. III.A-4. En utilisant les Eqs (III.A-19) et (III.A-21), nous trouvons ainsi l'équation implicite suivante pour l'intensité transmise I_t :

$$I_t = \frac{T_{\max} I_i}{1 + \left[2F \left(n_0 \frac{2L}{\lambda_0} - p \right) + 2F \frac{n_2}{T_2} \frac{2L}{\lambda_0} I_t \right]^2} \quad (\text{III.A-24})$$

FIG. III.A-4 : Transmission de la cavité Fabry-Perot en fonction du rapport $2L/\lambda$. Afin de simplifier les développements ultérieurs, nous utiliserons les quantités sans dimension :

$$x = 2F \left(n_0 \frac{2L}{\lambda_0} - p \right) \quad (\text{III.A-25.a})$$

$$\tilde{I}_r = 2F \frac{n_2}{T_2} \frac{2L}{\lambda_0} I_i \quad (\text{III.A-25.b})$$

$$\tilde{I}_i = 2F \frac{n_2}{T_2} \frac{2L}{\lambda_0} T_{\max} I_i \quad (\text{III.A-25.c})$$

x caractérise l'écart à résonance de la cavité ; $\bar{I}_i$ et $\bar{I}_t$ sont respectivement proportionnelles aux intensités incidente et transmise. L'Eq. (III.A-24) s'écrit avec ces notations :

$$\bar{I}_t = \frac{\bar{I}_i}{1 + (x + \bar{I}_i)^2} \quad (\text{III.A-26})$$

Il est alors plus commode d'étudier les variations de l'intensité incidente $\bar{I}_i$ en fonction de l'intensité transmise $\bar{I}_t$, et d'en déduire la variation graphique de $\bar{I}_t$ en fonction de $\bar{I}_i$. L'étude de la fonction $\bar{I}_t = f(\bar{I}_i)$ montre que celle-ci est monotone pour $|x| < \sqrt{3}$. Dans ce cas, il est facile de trouver la fonction inverse $\bar{I}_i = f^{-1}(\bar{I}_t)$. C'est ce cas que nous étudierons d'abord. Pour simplifier la discussion, nous supposons en outre $n_2 > 0$, ce qui permettra de se restreindre au quart de plan où $\bar{I}_i$ et $\bar{I}_t$ sont positifs (voir Eqs (III.A-25)).

b. Le transistor optique

Considérons une valeur de x comprise entre $-\sqrt{3}$ et 0. La variation de $\bar{I}_t$ en fonction de $\bar{I}_i$ est représentée sur la Fig. III.A-5. Pour de faibles valeurs de l'intensité incidente, les effets non linéaires sont négligeables et $\bar{I}_t$ varie linéairement en fonction de $\bar{I}_i$. Quand l'intensité incidente croît, la pente $\partial \bar{I}_t / \partial \bar{I}_i$ croît également, passe par une valeur maximum pour $\bar{I}_i = \bar{I}_0$, puis décroît.

Des applications intéressantes d'un tel système peuvent être obtenues pour des valeurs de $\bar{I}_i$ proches de $\bar{I}_0$. Supposons que l'intensité $\bar{I}_i$ soit soumise à de petites variations autour de sa valeur moyenne égale à $\bar{I}_0$:

$$\bar{I}_i = \bar{I}_0 + \Delta \bar{I}_i \quad (\text{III.A-27})$$

Ces variations vont se répercuter sur $\bar{I}_t$, qui va lui aussi présenter des variations autour de sa valeur moyenne $\bar{I}_t$:

$$\bar{I}_t = \bar{I}_t + \Delta \bar{I}_t \quad (\text{III.A-28})$$

En revenant aux intensités I_i et I_t [voir Eqs (III.A-25)], nous obtenons, en supposant $T_{\max} = 1$:

$$\Delta I_t = g \Delta I_i \quad (\text{III.A-29})$$

où g est un nombre qui peut être *grand devant 1* (g tend vers $+\infty$ lorsque x tend vers $-\sqrt{3}$). Au voisinage de ce point, les variations d'intensité incidente sont considérablement amplifiées. Ce fonctionnement en régime d'amplification différentielle est très analogue à celui obtenu en électronique pour un transistor. C'est pourquoi ce dispositif est appelé *transistor optique*.

FIG. III.A-5 : Variation de l'intensité transmise en fonction de l'intensité incidente pour un désaccord $x = -1.7$

En théorie, la caractéristique représentée sur la Fig. III.A-5 a un caractère universel et peut être obtenue avec n'importe quel milieu Kerr. En pratique, pour atteindre la même valeur de $\bar{I}_0$ (qui est une quantité sans dimension), il faudra des intensités incidentes I_i très différentes selon les milieux, puisque le coefficient non linéaire n_2 varie de façon considérable selon les matériaux (voir Tableau III.A-1). Cherchons quelle relation doit vérifier l'intensité incidente pour que la courbe de la Fig. III.A-5 soit décrite jusqu'au point d'inflexion. Dans le cas où $x = -\sqrt{3}$, la courbe $\bar{I}_t = f^{-1}(\bar{I}_t)$ possède une tangente verticale pour $\bar{I}_i = \bar{I}_0 = 8/3\sqrt{3}$. Pour observer un phénomène d'amplification différentielle au voisinage du point d'inflexion, il faut donc avoir :

$$\bar{I}_i \geq \frac{8}{3\sqrt{3}} \quad (\text{III.A-30})$$

Plaçons-nous, pour simplifier, dans la situation où les deux miroirs de la cavité ont même transmission ($T_1 = T_2$), ce qui entraîne $T_{\max} = 1$. Dans ce cas, nous pouvons, à l'aide de l'Eq. (III.A-25.c), récrire la relation (III.A-30) sous la forme :

$$n_2 \frac{I_i}{T_2} \frac{L}{\lambda_0} \geq \frac{2}{3\sqrt{3} F} \quad (\text{III.A-31})$$

L'intensité dans la cavité est au maximum égale à I_i/T_2 . Le premier membre de l'Eq. (III.A-31) décrit donc le déphasage de la lumière dû à la modification non linéaire d'indice lors de sa propagation dans le milieu. Le second membre est de l'ordre de grandeur de la largeur relative des pics de transmission de la cavité. Pour observer les effets non linéaires considérés dans ce paragraphe, il faut donc que la *contribution de l'indice non linéaire au déphasage lors de la propagation dans le milieu soit supérieure à la largeur relative de la courbe de transmission de la cavité*. Ces effets seront d'autant plus facilement observables que le *coefficient non linéaire n_2 sera plus grand et que la finesse F de la cavité sera plus élevée*.

Notons une autre application possible de la courbe de transmission de la Fig. III.A-5 : il s'agit de la *mise en forme d'impulsions lumineuses*. Considérons une impulsion incidente sur la cavité Fabry-Perot [voir Fig. III.A-6(a)]. A la sortie, et dans les conditions de la Fig. III.A-5, nous obtiendrons l'impulsion décrite par la Fig. III.A-6(b). Aux pentes douces de la Fig. III.A-6(a) succèdent ainsi les flancs raides de la Fig. III.A-6(b). Une telle forme est associée à la faible transmission de la cavité à basse intensité, à laquelle succède une plage de variation brutale de l'intensité transmise au voisinage de $\bar{I}_i = \bar{I}_0$. Ceci est une méthode pour obtenir une impulsion lumineuse se rapprochant d'une *fonction créneau* (encore appelée impulsion carrée).

FIG. III.A-6 : Transformation d'une impulsion incidente (a) par un Fabry-Perot rempli d'un milieu Kerr. Les paramètres correspondent à ceux de la Fig. III.A-5. L'impulsion à la sortie de la cavité (b) se rapproche d'une fonction créneau.

c. Les conditions de la bistabilité optique

Nous étudions ici la bistabilité optique due à la modification non linéaire de l'indice de réfraction⁽¹⁾. Considérons à nouveau la fonction $\bar{I}_t$ donnée par l'Eq. (III.A-26), mais supposons à présent que x est inférieur à $-\sqrt{3}$. Dans une telle situation, la courbe représentant les variations de $\bar{I}_t$ en fonction de $\bar{I}_i$ est *multivaluée* (voir Fig. III.A-7). Il existe en effet une plage de valeurs de l'intensité incidente (comprise entre $\bar{I}_{inf}$ et $\bar{I}_{sup}$ sur la Fig. III.A-7) pour laquelle $\bar{I}_t$ peut prendre trois valeurs différentes.

Tant que $\bar{I}_i$ est inférieur à $\bar{I}_{inf}$ ou supérieure à $\bar{I}_{sup}$, la solution pour $\bar{I}_t$ est unique. En revanche, lorsque $\bar{I}_i$ est compris entre $\bar{I}_{inf}$ et $\bar{I}_{sup}$, il y a trois solutions mathématiques possibles pour $\bar{I}_t$. Une étude dynamique de la stabilité de ces solutions (en étudiant, par exemple, l'évolution temporelle du système à partir d'une valeur proche de ces solutions) prouve qu'il existe *deux solutions stables et une solution instable*. Cette solution instable correspond à la partie tracée en pointillés sur la courbe de la Fig. III.A-7. L'existence de deux solutions stables pour l'intensité transmise (pour la même valeur de l'intensité incidente) est à l'origine de la dénomination "bistabilité optique" donnée à ce phénomène.

FIG. III.A-7 : Variation de l'intensité transmise en fonction de l'intensité incidente pour un désaccord $x = -3$. Pour toutes les valeurs de $\bar{I}_i$ comprises entre $\bar{I}_{inf}$ et $\bar{I}_{sup}$, il y a trois solutions possibles pour $\bar{I}_t$. En fait, une de ces solutions (correspondant à la branche tracée en pointillés) est instable vis-à-vis d'une petite perturbation. Les deux autres solutions sont par contre stables.

Du point de vue de la physique et des applications, il est important de comprendre laquelle de ces deux solutions stables sera effectivement choisie par le système. En pratique, la solution observée dépendra de l'*histoire antérieure du système*. Supposons qu'initialement, l'intensité incidente soit très faible et qu'elle croisse progressivement, le système évoluera continûment sur la *branche inférieure de la courbe de bistabilité* jusqu'au moment où l'intensité $\bar{I}_i$ dépassera la valeur $\bar{I}_{sup}$, auquel cas le système sera obligé de sauter sur la *branche supérieure*, le point de fonctionnement passant ainsi brutalement de B à C (voir Fig. III.A-8). Lorsque l'intensité incidente décroît à partir du point de fonctionnement C, l'intensité transmise évolue continûment sur la *branche supérieure de la courbe de bistabilité* jusqu'au moment où $\bar{I}_i$ ayant atteint la valeur $\bar{I}_{inf}$, le système n'a plus d'autres solutions que de sauter du point de fonctionnement D au point A (Fig. III.A-8).

Ainsi, pour une intensité incidente comprise entre $\bar{I}_{inf}$ et $\bar{I}_{sup}$, le système possède deux points de fonctionnement stables (par exemple P et P' sur la Fig. III.A-8), et le choix du point de fonctionnement dépend des valeurs antérieures prises par le système. Celui-ci se comporte donc comme une *mémoire optique*. Pour faire basculer la mémoire de P en P', il faut appliquer un créneau positif d'intensité, c'est-à-dire faire passer transitoirement l'intensité par une valeur supérieure à $\bar{I}_{sup}$. Inversement, pour faire basculer la mémoire de P' à P, il faut diminuer transitoirement l'intensité en-deçà de $\bar{I}_{inf}$.

(1) La bistabilité optique peut également être due à la saturation de l'absorption. Nous renvoyons le lecteur intéressé par une telle situation à [Lugiato 84].

FIG. IIIA-8 : Evolution de l'intensité transmise lorsque l'intensité incidente croît, puis décroît.

d. Vers un ordinateur optique

Les systèmes décrits précédemment (transistor optique, bistable optique) ont fait l'objet de nombreuses démonstrations expérimentales de principe⁽¹⁾. Il semble donc possible à partir de tels éléments de construire un ordinateur où des ondes lumineuses, se propageant dans des structures guidées comme les fibres optiques, remplaceraient les courants électriques. Quels seraient les avantages d'un tel ordinateur ?

Il est tout d'abord relativement facile d'obtenir et de faire se propager des impulsions lumineuses de durées très courtes (inférieures à la picoseconde). Cette propriété, jointe à la possibilité d'avoir des bistables optiques dont le temps de commutation serait du même ordre de grandeur, pourrait se révéler intéressante pour réaliser des systèmes rapides. Ensuite, les ondes lumineuses ne sont pas sensibles aux champs électromagnétiques extérieurs, produits par exemple par les courants électriques. Dans un *environnement électromagnétique perturbé*⁽²⁾, un système optique serait donc plus digne de confiance qu'un système électronique. Notons également que l'optique permet un *stockage très dense de l'information* : en effet, une unité de logique optique doit occuper une surface de l'ordre de la longueur d'onde au carré, ce qui dans le domaine visible ou du proche infrarouge, permet d'envisager des densités de l'ordre de 100 Mo par cm^2 .

En dépit des avantages mentionnés ci-dessus, et malgré les démonstrations de principe déjà réalisées, il ne semble pas que l'ordinateur optique soit promis à un développement imminent. Il y a d'abord un problème de matériaux à résoudre : il faut en effet trouver des milieux ayant un temps de réponse très rapide, une grande non-linéarité Kerr, et pouvant être facilement miniaturisés. Même lorsque ce problème sera résolu, la comparaison avec d'autres systèmes (comme ceux utilisant des jonctions Josephson) n'est pas toujours favorable à l'ordinateur tout optique. En fait, il paraît raisonnable de penser qu'à moyen terme, les systèmes optiques se développeront essentiellement sur *quelques créneaux bien définis*, comme le transport de l'information au sein de l'ordinateur, le traitement parallèle de l'information, ou le traitement des images.

B. Effets impliquant deux ondes lasers

L'un des développements les plus importants pour la physique fondamentale et appliquée auxquels ait donné lieu l'optique non linéaire est sans aucun doute la spectroscopie non linéaire. Le champ d'application de ces techniques spectroscopiques est aujourd'hui considérable, et ne peut être ici qu'effleuré. Nous nous concentrerons dans ce cours sur les principaux processus de diffusion stimulée impliqués dans les expériences de spectroscopie non linéaire de type pompe-sonde.

1. Généralités sur la diffusion stimulée

Le concept d'émission stimulée a été introduit pour la première fois par Einstein en 1917. Celui-ci, étudiant l'équilibre entre le rayonnement électromagnétique et un ensemble d'atomes à la température T , montra que

(1) Pour plus de détails, voir [Gibbs 85].

(2) Dont un exemple extrême, mais préoccupant les militaires, est celui d'un territoire soumis au flux de radiations consécutif à une explosion nucléaire en haute atmosphère.

pour retrouver la formule de Planck pour le corps noir, il fallait introduire, outre l'absorption et l'émission spontanée, un nouveau terme : l'émission stimulée. Après les articles d'Einstein⁽¹⁾, de nombreux physiciens s'intéressèrent à ce problème tant du point de vue théorique qu'expérimental. Cet intérêt fut renforcé par la mise en évidence d'une inversion de population dans une décharge de néon par Ladenburg et Kopferman en 1928⁽²⁾. Assez curieusement, l'intérêt pour l'émission induite décrût ensuite. En fait, les physiciens ne voyaient aucune application possible à l'émission stimulée, parce qu'ils ne croyaient pas qu'un système puisse s'éloigner suffisamment de l'équilibre thermodynamique pour qu'un gain notable puisse être obtenu. En d'autres termes, on n'imaginait possibles des applications de l'émission stimulée que dans des conditions où $gL \gg 1$ (g étant le gain par unité de longueur, et L la longueur du milieu amplificateur), conditions qui paraissaient impossibles à remplir.

On doit à Townes le renouveau de l'émission stimulée. Aidé de ses collaborateurs, il observa pour la première fois en 1954 une oscillation maser dans une vapeur d'ammoniac (NH_3) en exploitant l'idée fondamentale selon laquelle, en plaçant le milieu amplificateur dans une cavité résonnante, une oscillation peut se produire même pour $gL \ll 1$, dès lors que le gain par émission stimulée excède les pertes (très faibles) de la cavité. Cette découverte fut suivie quelques années plus tard par la mise au point par Maiman du premier laser (1960), qui allait à son tour conduire au développement de l'optique non linéaire et à la mise en évidence d'une nouvelle classe d'effets stimulés : les processus de *diffusion stimulée*.

FIG. III.B-1 : Schéma d'une expérience de spectroscopie non linéaire. (a) Le spectre de diffusion spontanée est obtenu en enregistrant le spectre de la lumière diffusée par un milieu non linéaire éclairé par un faisceau laser de fréquence fixe ω . (b) Les processus de diffusion stimulée se manifestent par exemple sur le spectre de transmission d'une onde sonde de fréquence variable interagissant avec un milieu diffuseur pompé par une onde laser intense de fréquence fixe ω . Le spectre de transmission est obtenu en enregistrant au moyen d'une photodiode (Ph) l'intensité de l'onde sonde transmise en fonction de la différence de fréquence δ entre sonde et pompe.

A chaque processus de diffusion spontanée est en effet associé un processus stimulé. Considérons l'expérience de diffusion *spontanée* représentée sur la Fig. III.B-1(a) où l'on observe la diffusion d'un faisceau

(1) Voir, par exemple, [Einstein 17].

(2) Ces auteurs n'ont pas observé l'amplification du champ incident, mais le renversement de la courbe d'indice, qui est une autre indication d'un milieu inversé.

laser incident de fréquence ω par un milieu (on suppose ici l'intensité laser suffisamment faible pour ne pas affecter les propriétés optiques du milieu). De façon générale, l'allure du spectre de la lumière diffusée est du type représenté sur la Fig. III.B-2(a). On y distingue trois types de résonances se distinguant par leurs positions ainsi que par leurs largeurs : Raman, Brillouin et Rayleigh. Ces trois types de structures se retrouvent dans l'expérience de diffusion *stimulée* schématisée sur la Fig. III.B-1(b), où l'intensité d'une onde laser sonde (de faible intensité) est mesurée après sa traversée à travers un milieu diffuseur pompé par une onde laser intense (dite onde pompe) de fréquence ω . En enregistrant cette intensité en fonction de la différence de fréquence δ entre sonde (fréquence ω_s) et pompe (fréquence ω), on obtient le spectre de transmission représenté sur la Fig. III.B-2(b), où l'on distingue à nouveau trois types de résonances ayant des formes différentes, mais de mêmes positions et largeurs que leurs analogues spontanés de la Fig. III.B-2(a). On constate ainsi sur la Fig. III.B-2(b) que selon les valeurs de la différence de fréquence δ , l'onde sonde subit un processus d'amplification ou d'absorption *dû à la présence de l'onde pompe* dans le milieu, ce qui est la signature d'un effet non linéaire. L'importance considérable des processus de diffusion stimulée réside dans le fait que leur efficacité est beaucoup plus importante que celle de leurs analogues spontanés. Par exemple, la fraction de lumière diffusée spontanément lors de la propagation d'un laser à travers 1 cm d'eau est d'environ 10^{-5} , tandis que pour une même longueur d'interaction, des gains de l'ordre de 10 à 100% seront typiquement observés par diffusion stimulée, permettant par exemple de réaliser une oscillation laser à une fréquence *décalée* par rapport à une fréquence pompe par ailleurs disponible.

FIG. III.B-2 : Allure caractéristique d'un spectre de diffusion spontanée (a) et stimulée (b). Dans les deux cas, on observe des structures résonnantes de type Raman, Brillouin, et Rayleigh (les échelles tant horizontales que verticales sont fantaisistes, bien que respectant la *hiérarchie* de position et d'amplitude des résonances habituellement observée dans une expérience). On notera qu'en l'absence du champ pompe, les résonances du spectre de transmission disparaissent.

Quelle est l'origine du transfert de puissance entre pompe et sonde *via* le matériau ? Tout d'abord, nous savons que la modification de l'intensité de l'onde sonde lors de son interaction avec le milieu non linéaire provient de l'existence dans celui-ci d'une polarisation induite ayant mêmes fréquence et vecteur d'onde que l'onde sonde, mais possédant *une composante en quadrature avec elle* (comme le montre l'Eq. (I.A-8) décrivant le transfert de puissance entre champ et matériau). Deuxièmement, une caractéristique essentielle d'une expérience pompe-sonde est que l'onde sonde a une intensité beaucoup plus faible que l'onde pompe, et modifie donc peu l'état du système {champ pompe + milieu non linéaire} en interaction. Ceci entraîne que les résonances apparaissant sur le spectre de transmission sont le résultat de la réponse *linéaire* de la polarisation du milieu à l'excitation de l'onde sonde. Ces deux remarques, combinées au fait que le champ pompe considéré ici n'est constitué que d'une seule onde plane, permettent d'affirmer que du point de vue du formalisme de l'optique non linéaire, les résonances apparaissant sur le spectre de transmission de l'onde sonde sont associées à l'existence dans le matériau d'une susceptibilité non linéaire de la forme $\chi^{(3)}(\omega_s; \omega_s, -\omega, \omega)$ ayant une *partie imaginaire* $\chi''^{(3)}$ non nulle ($\chi''^{(3)} < 0$ pour les résonances en amplification, $\chi''^{(3)} > 0$ pour les résonances en absorption) *présentant un caractère résonnant* pour certaines valeurs de la différence de fréquence $\delta = \omega_s - \omega$ entre pompe et sonde. On notera en particulier que le vecteur d'onde de la composante de polarisation associée à la susceptibilité $\chi^{(3)}(\omega_s; \omega_s, -\omega, \omega)$ est égal à $\mathbf{k} = \mathbf{k}_s - \mathbf{k} + \mathbf{k} = \mathbf{k}_s$, de sorte que les processus non linéaires impliqués dans le spectre de transmission de l'onde sonde *satisfont automatiquement la condition d'accord de phase*.

Deux phénomènes physiques peuvent être associés à une susceptibilité non linéaire de la forme $\chi^{(3)}(\omega_s; \omega_s, -\omega, \omega)$. Le premier correspond à la modification de l'indice (complexe) du milieu non linéaire par le champ pompe. Cette modification d'indice fait intervenir uniquement l'onde pompe, et affecte généralement la propagation du faisceau sonde de façon identique quelle que soit sa fréquence (dans la mesure toutefois où elle reste suffisamment proche de celle du champ pompe). Elle se traduit habituellement par une translation verticale globale du spectre de transmission de la sonde, et n'est donc pas impliquée dans les structures résonnantes. Le deuxième phénomène correspond à l'interaction du milieu non linéaire avec le champ résultant de l'interférence entre les ondes pompe et sonde, et possédant une composante modulée temporellement à la fréquence de battement δ entre ces deux ondes, et spatialement avec un vecteur d'onde égal à la différence des vecteurs d'onde pompe et sonde. Lorsque δ est petit devant les fréquences optiques, cette composante peut varier suffisamment lentement pour induire dans le matériau non linéaire la modulation d'une certaine observable à la fréquence δ (par exemple la vibration, l'orientation ou la densité des molécules du milieu). Selon les caractéristiques propres du matériau, l'amplitude de cette modulation pourra varier de façon résonnante autour de certaines valeurs de la fréquence δ . La diffraction de l'onde pompe sur ce réseau d'observable modulé temporellement et spatialement va alors donner naissance à une onde ayant les mêmes caractéristiques (fréquence et vecteur d'onde) que l'onde sonde, et pouvant donc interférer avec elle (voir Fig. III.B-3). C'est ce phénomène qui est responsable de la modification résonnante d'intensité de l'onde sonde, c'est-à-dire des résonances du spectre de transmission. Dans cette image, le fait que seule la partie imaginaire de la susceptibilité $\chi^{(3)}(\omega_s; \omega_s, -\omega, \omega)$ contribue au spectre de transmission est lié au fait que seule la composante du champ diffracté qui est *en phase* avec l'onde sonde modifie réellement l'intensité de celle-ci (la composante en quadrature modifiant son indice). Or, l'existence d'une telle composante n'est pas *a priori* évidente. Elle provient généralement du fait que les processus de relaxation se produisant dans le milieu non linéaire, et tendant à le ramener constamment vers son état initial, se traduisent par un *retard* de la modulation des observables par rapport à l'excitation liée à la sonde. C'est ce retard qui induit une composante en quadrature de la polarisation, et par suite un champ diffracté en phase⁽¹⁾. On voit ainsi que les processus de relaxation jouent un rôle essentiel dans l'émergence des structures résonnantes du spectre de transmission de l'onde sonde.

Une autre caractéristique de la composante de polarisation associée à la susceptibilité non linéaire $\chi^{(3)}(\omega_s; \omega_s, -\omega, \omega)$ est qu'elle est proportionnelle à l'amplitude de l'onde sonde et au module carré du champ pompe, c'est-à-dire à l'intensité pompe. En conséquence, l'amplitude des résonances du spectre de transmission sera généralement directement proportionnelle au produit des nombres de photons pompes et sondes présents dans le milieu non linéaire, comme attendu pour un processus stimulé. Dans un langage plus classique, cette

(1) Comme le montre l'Eq. (I.B-26), une composante de polarisation rayonne en effet un champ en quadrature avec elle-même [facteur i au second membre de l'Eq. (I.B-26)].

propriété peut s'interpréter de la façon suivante. Comme nous l'avons vu, le battement entre les ondes pompe et sonde conduit à la modulation d'une observable à la fréquence δ , dont l'amplitude est proportionnelle au produit des champs pompe et sonde. L'interaction de l'onde pompe et de cette observable donne alors naissance à une composante de polarisation de même fréquence que l'onde sonde, et d'amplitude proportionnelle au produit du champ pompe et de l'amplitude de modulation de l'observable, c'est-à-dire au produit du champ sonde et de l'intensité pompe. Ainsi, le battement entre l'onde pompe et l'observable modulée tend à amplifier l'onde sonde, tandis que le battement entre les ondes pompe et sonde tend à amplifier la modulation de l'observable. Le lecteur attentif aura reconnu ici tous les ingrédients du mélange paramétrique étudié au §II.B, l'onde sonde jouant le rôle du champ signal, et l'observable modulée celui du champ complémentaire. L'analogie entre les processus de diffusion stimulée et le mélange paramétrique peut en fait être poussée très loin. On peut en effet associer à l'observable modulée un champ de bosons : à la vibration de molécules sera associée un champ de phonons optiques, à une excitation électronique un champ d'excitons, à l'orientation de molécules une onde d'orientation, etc... Le transfert de puissance entre pompe et sonde s'interprète alors comme un processus de couplage paramétrique entre les champs pompe et sonde avec émission (ou absorption) d'un boson associé à l'observable modulée dans le milieu non linéaire (voir Fig. III.B-4).

FIG. III.B-3 : L'interférence de l'onde pompe $E(\omega, \mathbf{k})$ et de l'onde sonde $E_s(\omega + \delta, \mathbf{k}_s)$ induit dans le milieu non linéaire un réseau d'observable modulé temporellement (fréquence δ) et spatialement (vecteur d'onde $\mathbf{k}_s - \mathbf{k}$) (a). La diffraction du champ E sur ce réseau conduit à une onde ayant les mêmes caractéristiques que l'onde sonde (b). Selon sa phase, l'onde diffractée peut interférer avec l'onde E_s , et conduire à son atténuation ou à son amplification.

En fait, la description du processus de transfert de puissance entre pompe et sonde *via* le matériau que nous venons de décrire n'est pas la seule possible. Il existe en effet un autre point de vue, complémentaire du précédent (chacun apportant des éclairages sur des aspects différents du processus étudié), basé sur une description entièrement quantique du système {champ + matériau}. Dans cette approche (qui est *a priori* non triviale car la susceptibilité non linéaire $\chi^{(3)}(\omega_s; \omega_s, -\omega, \omega)$ ne rentre pas dans le cadre général des règles de correspondance classique $\rightarrow$ quantique du §I.C.3), les effets non linéaires responsables des résonances du spectre de transmission de l'onde sonde sont interprétés comme des processus de diffusion des photons par le matériau, celui-ci étant décrit par l'ensemble de ses niveaux quantiques (qui peuvent être des niveaux d'énergie électroniques, de vibration, de rotation, ou un produit tensoriel de ceux-ci avec les quanta de vibration du matériau dans son ensemble (phonons acoustiques et optiques), voire avec des plasmons, des excitons ou des polaritons). Comme nous l'avons déjà mentionné, l'approche quantique est commode lorsque le processus non linéaire peut être décrit au moyen d'un petit nombre de diagrammes quantiques. Elle permet généralement d'obtenir une interprétation naturelle de la position des résonances (liée à l'énergie des états quantiques du matériau), et de leur dépendance avec la population des niveaux d'énergie. De plus, les conditions de conservation de l'énergie et de l'impulsion du système {champ + matériau} au cours du processus non linéaire apparaissent de façon beaucoup plus naturelle que dans l'approche classique. Par contre, l'approche quantique n'apporte pas toujours d'image claire concernant le rôle exact des processus de relaxation se produisant dans le milieu, et fait mal ressortir les modifications du milieu induites par les champs (vibrations, rotations, modulation de la densité, etc...).

FIG. III.B-4 : Interprétation du processus de gain (a) et d'absorption (b) de l'onde sonde en termes de mélange paramétrique entre pompe (ω), sonde ($\omega + \delta$), et champ de boson (δ) lié à l'observable modulée. (a) L'absorption d'un photon pompe et d'un boson est suivie de l'émission stimulée d'un photon sonde. (b) Processus inverse avec absorption d'un photon sonde suivie de l'émission stimulée d'un photon pompe, qui s'accompagne de la génération d'un boson complémentaire. Noter que l'énergie et l'impulsion du système {photons+ bosons} sont conservées au cours des processus.

Nous allons ici illustrer ces différents points de vue en étudiant successivement les processus de diffusion Raman, Brillouin et Rayleigh stimulée tels qu'ils se manifestent sur le spectre de transmission de l'onde sonde [expérience de la Fig. III.B-1(b)]. Nous dégagerons pour chacun d'eux les phénomènes physiques qui les sous-tendent, ainsi que les principales caractéristiques des résonances associées. Nous aurons ainsi une vision des informations qu'il est possible de tirer d'une expérience de spectroscopie non linéaire de type pompe-sonde.

2. La diffusion Raman stimulée

Le processus de diffusion Raman résulte généralement (mais pas toujours) de l'interaction de la lumière avec les modes de vibration (fréquence Ω_v) des molécules constituant le milieu diffuseur. Il se manifeste sur le spectre de transmission sous la forme de résonances ayant une forme de lorentzienne, centrées en $\pm \Omega_v$, et d'amplitudes

proportionnelles à la différence de population entre les niveaux de vibration impliqués. Il fournit donc des informations sur la *position et la population* des niveaux quantiques du système diffuseur étudié.

Bien que la diffusion Raman stimulée puisse s'interpréter classiquement en termes de couplage paramétrique entre champs lasers et champ de phonons optiques décrivant la vibration des molécules⁽¹⁾, nous la présentons ici dans le cadre de l'approche quantique, qui est dans ce cas précis particulièrement simple et suggestive.

a. Bref historique⁽²⁾

Si le phénomène de diffusion *élastique* de la lumière était bien connu dès le début du siècle, grâce aux travaux de Lord Rayleigh [Rayleigh 71] et de J. J. Thomson⁽³⁾, il fallut attendre les premiers développements de la théorie quantique, et en particulier les idées de Bohr sur les propriétés de l'absorption et de l'émission de la lumière par les atomes, pour que naisse l'idée d'une diffusion associée à un changement de longueur d'onde du rayonnement. L'existence du processus de diffusion *inélastique* de la lumière fut ainsi prédite pour la première fois en 1923 par Smekal [Smekal 23] à partir d'arguments de conservation de l'énergie. Cette idée fut reprise et développée par Kramers et Heisenberg [Kramers 25] qui, en utilisant le principe de correspondance, parvinrent à l'expression quantique exacte pour la section efficace de diffusion inélastique. Klein [Klein 27] ébaucha une approche semi-classique et calcula, en utilisant la théorie des perturbations en représentation de Schrödinger, l'élément de matrice de l'opérateur dipôle électrique oscillant à la fréquence Stokes, qu'il porta ensuite dans la formule classique donnant l'énergie rayonnée par un dipôle pour obtenir l'intensité diffusée. La quantification du champ électromagnétique par Dirac [Dirac 27] et sa démonstration rigoureuse de la formule de Kramers-Heisenberg, furent suivies de la découverte théorique par Göppert-Mayer [Göppert-Mayer 31] des processus stimulés à deux photons. Il est intéressant de noter que ce travail fut le premier à reconnaître la possibilité d'un effet Raman *stimulé*. Placzek [Placzek 34] résuma ces théories dans son traité sur la diffusion Raman, en présentant également pour la première fois une discussion du processus Raman en termes de polarisabilité non linéaire de la molécule. Toutefois, bien que mentionnant le travail de Göppert-Mayer, Placzek y considéra la diffusion inélastique comme étant incohérente, ignorant la possibilité d'une diffusion stimulée.

Raman et Krishnan [Raman 28] observèrent pour la première fois le phénomène de "rayonnement modifié", ou diffusion Raman spontanée⁽⁴⁾. Bien entendu, la source de pompage (la lumière du soleil) était bien trop faible pour produire le moindre gain à la fréquence Stokes. Ils interprétèrent ce phénomène comme étant dû à "l'effet des fluctuations (des atomes) autour de leur état normal". Presque simultanément, Landsberg et Mandel'stam [Landsberg 28] découvrirent une diffusion similaire dans des solides. Au cours des deux années qui suivirent, cet effet fut catalogué dans de nombreux liquides et gaz différents. En leur temps, ces expériences furent considérées comme des preuves de la théorie quantique qui sert de base à la démonstration de la formule de Kramers-Heisenberg. Par exemple, R. W. Wood, cité par Jayaraman et Ramdas [Jayaraman 88], déclara : "Il me semble que cette très belle découverte... est l'une des preuves les plus convaincantes de la théorie quantique que l'on ait à ce jour".

Entre 1927 et la fin des années 50, la diffusion Raman se développa en tant qu'outil spectroscopique important, mais on n'accorda que peu d'attention à la possibilité d'une diffusion stimulée. Cette situation fut profondément modifiée par l'avènement des lasers et la découverte de l'optique non linéaire dans les années 60. Le développement de sources lumineuses cohérentes de forte puissance impliqua la possibilité d'obtenir des champs diffusés de manière stimulée et contenant un grand nombre de photons par mode, renforçant ainsi l'utilité de l'effet Raman en tant qu'outil spectroscopique. La diffusion stimulée fut observée pour la première fois assez fortuitement dans le nitrobenzène par Woodbury et Ng [Woodbury 62], et fut identifiée comme telle par Eckhardt *et al.* [Eckhardt 63].

Parmi les diverses approches théoriques qui furent alors développées pour rendre compte de ce résultat, nous utiliserons dans ce paragraphe celle d'Hellwarth [Hellwarth 63] afin de discuter plus en détails les liens entre effets Raman spontané et stimulé.

(1) Voir par exemple [Bloembergen 67], [Shen 84].

(2) Pour plus de détails, on pourra consulter [Raymer 90].

(3) Les travaux de J. J. Thomson sur la diffusion élastique des rayons X par des particules libres datent des années 1900.

(4) L'effet fut observé dans une soixantaine de liquides, ainsi que dans des vapeurs denses d'éther ou d'amylène (diéthyléther et 2-méthyl-2-butène selon la nomenclature officielle).

b. La diffusion Raman spontanée⁽¹⁾

Le principe du processus Raman spontané est schématisé sur la Fig. III.B-5. Un photon incident ω est diffusé en un photon ω_S , la différence d'énergie $\hbar(\omega - \omega_S) = \hbar\omega_{ba}$ étant absorbée par le centre diffuseur du matériau [Fig. III.B-5(a)]. L'excitation du milieu peut se traduire par un changement d'état électronique, ou plus fréquemment dans le cas des molécules, par une modification de niveau vibrationnel ou rotationnel (la fréquence ω_{ba} correspond alors à la fréquence de vibration de la molécule). La fréquence ω_S est appelée *fréquence Stokes*. Elle est *inférieure à la fréquence incidente* d'une quantité correspondant à la fréquence d'excitation du matériau. Si toutefois le système diffuseur est initialement dans un état excité, il peut effectuer une transition vers un niveau d'énergie inférieur lors de la diffusion [Fig. III.B-5(b)]. Dans ce cas, la lumière diffusée contient des *fréquences anti-Stokes*⁽²⁾ supérieures à la fréquence incidente : $\omega_{AS} = \omega + \omega_{ba}$. Dans les milieux moléculaires, l'intensité de la lumière diffusée à la fréquence anti-Stokes est généralement de plusieurs ordres de grandeur plus faible que celle à la fréquence Stokes, car l'intensité des raies Raman est proportionnelle à la population du niveau initial du processus de diffusion, et qu'à l'équilibre thermique la population du niveau $|b\rangle$ est plus faible que celle du niveau $|a\rangle$ d'une quantité égale au facteur de Boltzmann $\exp(-\hbar\omega_{ba}/k_B T)$.

FIG. III.B-5 : Processus de diffusion Raman spontanée d'un photon incident ω . (a) Processus Stokes. (b) Processus anti-Stokes.

L'efficacité du processus de diffusion Raman spontanée est caractérisée par la section efficace différentielle de diffusion d'un photon de fréquence ω et de polarisation $\mathbf{e}$ en un photon de fréquence ω_S et de polarisation $\mathbf{e}_S$. Cette section efficace est donnée par la formule de Kramers-Heisenberg, dont une démonstration est proposée en annexe :

(1) Pour plus de détails, voir [Bloembergen 67].

(2) La dénomination Stokes et anti-Stokes a une origine purement historique et n'a aucune signification physique particulière.

$$\frac{d\sigma_{sp}^R}{d\Omega} = \frac{\omega \omega_s^3 n_s^3}{16\pi^2 \epsilon_0^2 c^4 \hbar^2} \left| \sum_c \frac{\langle b | \mathbf{d} \cdot \mathbf{e}_s | c \rangle \langle c | \mathbf{d} \cdot \mathbf{e} | a \rangle}{\omega_{ca} - \omega} + \frac{\langle b | \mathbf{d} \cdot \mathbf{e} | c \rangle \langle c | \mathbf{d} \cdot \mathbf{e}_s | a \rangle}{\omega_{cb} + \omega} \right|^2 \quad (\text{III.B-1})$$

où Ω représente l'angle solide de diffusion, n_s l'indice de réfraction du milieu à la fréquence Stokes, $\mathbf{d}$ l'opérateur moment dipolaire électrique, et $|c\rangle$ un état d'énergie du système diffuseur distinct de $|a\rangle$ et $|b\rangle$. Pour conclure, signalons que le processus de diffusion Raman spontanée est un processus peu efficace : même pour les milieux assez denses, la section efficace totale de diffusion à la fréquence Stokes par unité de volume est typiquement égale à 10^{-6} cm^{-1} . Ainsi, après propagation à travers 1 cm de milieu diffuseur, seul un millionième de l'énergie incidente aura été diffusé ! Cependant, comme nous allons le voir dans le prochain paragraphe, stimulé par la présence d'une onde laser suffisamment intense, le processus de diffusion Raman peut devenir beaucoup plus efficace.

c. La diffusion Raman stimulée

FIG. III.B-6 : Processus de diffusion Raman stimulée de l'onde sonde, résultant d'une compétition entre amplification (a) et absorption (b).

Le principe du processus Raman stimulé est schématisé sur la Fig. III.B-6(a). Dans ce cas, le matériau est simultanément éclairé par une onde (sonde) à la fréquence ω_s et une onde (pompe) à la fréquence ω . Un photon ω_s est émis de façon stimulée dans le mode de l'onde sonde, conduisant à une amplification de la sonde aux dépens de l'onde pompe. Ici encore, la différence d'énergie $\hbar(\omega - \omega_s) = \hbar\omega_{ba}$ est absorbée par le matériau

diffuseur. L'efficacité de ce processus peut être assez grande, et la puissance transférée à la fréquence Stokes atteint couramment plus de 10% de la puissance pompe incidente.

La relation entre les processus d'émission stimulée et spontanée s'exprime par le fait que la probabilité qu'un oscillateur de fréquence ω_s d'effectuer une transition d'un état à n_s quanta d'excitation vers un état à n_s+1 quanta est proportionnelle à $n_s + 1$ ($n_s = 0$ pour le processus spontané). Comme nous l'avons vu, le nombre de quanta $(dn_s)_{sp}$ diffusés spontanément par élément de longueur dz et par unité d'angle solide $d\Omega$ s'exprime au moyen de la section efficace différentielle de diffusion Raman spontanée :

$$(dn_s)_{sp} = N \pi_a n \left(d\sigma_{sp}^R / d\Omega \right) d\Omega dz \quad (\text{III.B-2})$$

où N est le nombre de centres diffuseurs (généralement des molécules) par unité de volume, π_a la probabilité qu'un tel centre soit dans le niveau d'énergie le plus bas $|a\rangle$, et n le nombre de photons lasers pompes incidents.

Un second facteur différencie les processus spontanés et les processus stimulés. Les premiers sont en effet proportionnels à la population du niveau initial, tandis que les seconds dépendent de la *différence* entre les populations des niveaux initial et final. En effet, au processus d'amplification stimulé partant du niveau $|a\rangle$ et aboutissant au niveau $|b\rangle$ [Fig. III.B-6(a)] s'oppose, lorsque le niveau $|b\rangle$ est peuplé, le processus d'absorption stimulée partant de $|b\rangle$ et aboutissant à $|a\rangle$ [Fig. III.B-6(b)]. Une autre différence entre processus Raman spontané et stimulé tient au continuum d'états finaux à considérer. Dans le cas du processus spontané, la direction et la polarisation du photon émis sont des quantités partiellement indéterminées et le continuum d'états est relatif au rayonnement, alors que pour le processus stimulé, le photon émis a des caractéristiques parfaitement définies et le continuum d'états est relatif au système matériel. La variation du nombre de photons Stokes par émission et absorption Raman stimulées peut s'exprimer selon :

$$\frac{dn_s}{dz} = N(\pi_a - \pi_b) \frac{d\sigma_{sp}^R}{d\Omega} n_s n \left(\frac{c^3}{V v_s^2 n_s^3} \Lambda(v_s) \right) \quad (\text{III.B-3})$$

où V est le volume de quantification du rayonnement, et $v_s = \omega_s / 2\pi$. Le dernier facteur exprime le fait que la densité d'états finaux est différente pour les processus spontané et stimulé. Dans le cas des processus spontanés, la quantité qui intervient est le nombre de modes du vide par unité d'angle solide, et par unité de fréquence $V v_s^2 n_s^3 / c^3$. Pour l'absorption et l'émission stimulée de photons Stokes dans une onde électromagnétique, c'est la densité d'états du *matériau* qui compte. Cette quantité peut être décrite en termes d'une fonction de forme normalisée $\Lambda(v_s)$, qui peut souvent être représentée par une Lorentzienne présentant une résonance pour $\omega_s = \omega - \omega_{ba}$, de demi-largeur à mi-hauteur Γ_{ab} :

$$\Lambda(v_s) = \frac{2\Gamma_{ab}}{(\omega - \omega_s - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ab}^2} \quad (\text{III.B-4})$$

C'est cette lorentzienne qui donne leurs formes caractéristiques aux résonances Raman stimulées représentées sur le spectre de la Fig. III.B-2(b). Comme à résonance $\Lambda = 2/\Gamma_{ab}$, l'expression (III.B-3) montre que le phénomène de diffusion stimulée dépasse celui de diffusion spontanée à condition que le nombre de photons sondes n_s soit bien supérieur au nombre de modes du vide électromagnétique contenu dans l'intervalle de fréquence correspondant à la largeur Γ_{ab} . C'est cette propriété qui a rendu l'observation de l'effet Raman stimulé impossible avant l'avènement de sources lasers de forte puissance, et ce n'est pas un hasard si la première observation a été effectuée dans le laboratoire où le laser à rubis fut mis au point !

En intégrant l'équation différentielle (III.B-3), on trouve que le nombre de photons n_s , ou de manière équivalente l'intensité de l'onde sonde I_s qui lui est proportionnelle, croît de façon exponentielle au cours de sa propagation à travers le milieu Raman :

$$I_s(L) = I_s(0) \exp(g_s L) \quad (\text{III.B-5})$$

où L est la longueur de la zone d'interaction entre champs et milieu diffuseur. Le coefficient de gain g_s se déduit sans difficulté de l'Eq. (III.B-3) :

$$g_s = N(\pi_a - \pi_b) \left(d\sigma_{sp}^R / d\Omega \right) \left(c^3 n^2 \epsilon_0 \Lambda(v_s) / 2 v_s^2 n_s^3 \hbar \omega \right) I \quad (\text{III.B-6})$$

I étant l'intensité de l'onde pompe (le nombre de photons pompes est bien entendu proportionnel à l'intensité de l'onde laser pompe), et n est l'indice du milieu à la fréquence ω .

Donnons un ordre de grandeur de ce gain dans le cas du nitrobenzène (liquide) qui donna lieu à la première observation de l'effet Raman stimulé : $\omega_{ba}/2\pi c \approx 1345 \text{ cm}^{-1}$, $\sigma_{sp}^R \approx 6 \cdot 10^{-30} \text{ cm}^2$ (section efficace totale de diffusion), $\Gamma_{ba}/2\pi c \approx 4 \text{ cm}^{-1}$, $\pi_a \approx 1$, et $g_s \approx 0.3 \text{ cm}^{-1}$ pour une intensité laser de 10^8 W/cm^2 . Un tel gain permet de réaliser un *laser Raman* en plaçant le milieu non linéaire à l'intérieur d'une cavité fermée par deux miroirs de coefficients de réflexion à la fréquence Stokes R_1 et R_2 . La condition d'oscillation s'écrit alors :

$$\exp(2g_s L) = R_1 R_2 \exp(-2\alpha L) \quad (\text{III.B-7})$$

où le terme de gauche représente le gain au cours d'un aller-retour dans la cavité, et où les pertes liées aux phénomènes de diffusion, absorption, diffraction... sont incorporées dans le coefficient de pertes α . Bien entendu, la condition (III.B-7) est identique à la condition d'oscillation d'un laser conventionnel.

3. La diffusion Brillouin stimulée

La diffusion Brillouin est la diffusion de la lumière par une onde acoustique, c'est-à-dire par une onde de pression (et donc de densité) se propageant dans le milieu. Elle se manifeste généralement sur le spectre de transmission de l'onde sonde sous la forme de deux résonances de forme lorentzienne [voir Fig. III.B-2(b)] centrées en $\delta = \pm \Omega_B$ (Ω_B : fréquence de l'onde acoustique), et dont l'amplitude est d'autant plus importante que l'angle entre pompe et sonde est proche de π (ondes se propageant en sens opposés). Son interprétation est particulièrement commode dans le cadre d'une approche classique, en termes de couplage paramétrique entre les champs lasers et l'onde de densité, considérée comme un champ de phonons acoustiques. C'est cette approche que nous présentons ici, en décrivant plus particulièrement le cas où le milieu non linéaire est un fluide moléculaire.

a. L'électrostriction

L'interprétation d'un processus de diffusion stimulée dans un formalisme classique passe par la description du mécanisme d'excitation d'une observable à partir des ondes pompe et sonde. Dans le cas de l'effet Brillouin stimulé, le processus à considérer est celui de la génération d'une onde acoustique à partir d'un champ électrique. Le mécanisme habituellement impliqué est l'électrostriction, c'est-à-dire la tendance d'un système à devenir plus dense en présence d'un champ électrique. On peut l'interpréter d'un point de vue microscopique en considérant la force agissant sur une molécule individuelle en présence d'un champ électrique $\mathbf{E}$. La molécule acquiert en effet un moment dipolaire électrique $\mathbf{d} = \alpha \mathbf{E}$ (où α désigne la polarisabilité, supposée isotrope, de la molécule), et stocke ainsi une énergie :

$$U = - \int_0^{\mathbf{E}} \mathbf{d} \cdot d\mathbf{E}' = - \alpha \int_0^{\mathbf{E}} \mathbf{E}' \cdot d\mathbf{E}' = - \frac{1}{2} \alpha \mathbf{E}^2 \quad (\text{III.B-8})$$

En présence d'un champ électrique, la molécule subit donc la force :

$$\mathbf{F} = -\nabla U = \frac{1}{2} \alpha \nabla (\mathbf{E}^2) \quad (\text{III.B-9})$$

qui est proportionnelle au gradient de l'intensité du champ électrique, moyennée en temps à l'échelle d'une période optique (les molécules ne pouvant "suivre" les variations de l'intensité laser aux fréquences optiques). Dans le cas le plus courant où α est positive, cette force tend donc à augmenter la densité moléculaire dans les zones de plus grande intensité de champ électrique.

b. La diffusion Brillouin stimulée induite par électrostriction

Nous considérons une expérience pompe-sonde dans la géométrie la plus favorable pour l'effet Brillouin stimulé, où les ondes pompe et sonde se propagent en sens opposés⁽¹⁾ : un milieu interagit avec un champ pompe E de fréquence ω et de vecteur d'onde $k > 0$, et un champ sonde E_s de fréquence $\omega_s = \omega + \delta$, et de vecteur d'onde $-k$ (voir Fig. III.B-7). Le champ électrique total prend donc la forme :

$$\begin{aligned} E_{tot} &= [E \exp(ikz) + E_s \exp(-i\delta t - ikz)] \exp(-i\omega t) + c.c. \\ &= \xi(z, t) \exp(-i\omega t) + c.c. \end{aligned} \quad (\text{III.B-10})$$

(1) C'est en effet la situation où le recouvrement entre ondes pompe et sonde, et donc le gain Brillouin, est maximal.

Nous supposons que la densité massique ρ du milieu moléculaire est régie par l'équation des ondes de l'acoustique⁽¹⁾ :

$$\frac{\partial^2 \rho}{\partial t^2} - \zeta \nabla^2 \frac{\partial \rho}{\partial t} - v^2 \nabla^2 \rho = \nabla \cdot \mathbf{f} \quad (\text{III.B-11})$$

où v est la vitesse du son, et ζ est un paramètre d'amortissement⁽²⁾. Le terme source de l'Eq. (III.B-11) correspond à la divergence de la densité volumique de force $\mathbf{f}$ qui, d'après les Eqs (III.B-9) et (III.B-10), est de la forme :

$$\mathbf{f} = -A \nabla |\xi(z, t)|^2 \quad (\text{III.B-12})$$

En ne retenant que les termes présentant une dépendance spatiale, seuls susceptibles d'induire une onde acoustique, on obtient pour le terme source :

$$\nabla \cdot \mathbf{f} = A q^2 [\mathcal{E}^* \mathcal{E}_s \exp(-i\delta t - i q z) + c.c.] \mathbf{e}_z \quad (\text{III.B-13})$$

où l'on a posé $q = 2k$. Il est alors naturel de chercher la solution stationnaire forcée de l'Eq. (III.B-11) sous la forme :

$$\rho = \rho_0 + \Delta \rho \exp(-i\delta t - i q z) \quad (\text{III.B-14})$$

où ρ_0 est la densité massique du milieu en l'absence de champ. En portant (III.B-13) et (III.B-14) dans l'Eq. (III.B-11), et en supposant que $\Delta \rho$ varie lentement avec z et t ⁽³⁾, on obtient alors :

$$(\Omega_B^2 - \delta^2 - i\delta \Gamma_B) \Delta \rho + 2i\Omega_B v \frac{\partial \Delta \rho}{\partial z} = A q^2 \mathcal{E}^* \mathcal{E}_s \quad (\text{III.B-15})$$

où l'on a introduit la largeur Brillouin :

$$\Gamma_B = q^2 \zeta \quad (\text{III.B-16})$$

ainsi que la fréquence Brillouin :

$$\Omega_B = q v \quad (\text{III.B-17})$$

FIG. III.B-7 : Représentation schématique d'une expérience de diffusion Brillouin stimulée. L'action combinée des champs pompe et sonde donne naissance à une onde acoustique (onde de densité) de fréquence δ .

La polarisation du milieu étant proportionnelle au produit de la densité de molécules par l'amplitude du champ laser total, il apparaît clairement d'après l'Eq. (III.B-14) que le milieu va acquérir, du fait de la présence de l'onde acoustique, une composante de polarisation ayant les mêmes caractéristiques (fréquence et direction de propagation) que l'onde sonde. Cette composante, qui décrit le processus de diffraction de l'onde pompe sur le réseau de densité associé à l'onde acoustique, est de la forme :

$$P^{NL}(\omega_s) = B \Delta \rho \mathcal{E} \exp(-ikz) \quad (\text{III.B-18})$$

Le système formé par les champs pompe et sonde et la modulation de densité massique $\Delta \rho$ associée à l'onde acoustique est donc entièrement décrit au moyen du système de deux équations couplées constitué de l'Eq. (III.B-15), et de l'équation des ondes (I.B-26), qui prend ici la forme :

(1) Voir par exemple [Fabelinskii 68], §34.9.

(2) L'amortissement de l'onde acoustique résulte de transferts de quantité de mouvement (viscosité) et de chaleur à l'intérieur du milieu. Voir par exemple [Boyd 92], p. 303.

(3) Ceci est analogue à l'approximation de l'enveloppe lentement variable considérée au §I.B.4.d.

$$\frac{\partial \mathcal{E}_s}{\partial z} = -\frac{ik}{2\epsilon_0} B \Delta \rho \mathcal{E} \quad (\text{III.B-19})$$

Ce système d'équations a une structure analogue à celui régissant le processus de mélange paramétrique [voir Eqs (II.B-3) et (II.B-4)]. Comme annoncé, on peut donc interpréter l'interaction entre les ondes pompe et sonde et l'onde acoustique qu'elles génèrent comme un processus de couplage paramétrique entre champs lasers et champ de phonons acoustiques.

L'Eq. (III.B-15) peut en fait souvent être simplifiée significativement en omettant le dernier terme du membre de gauche. Ce terme décrit la propagation des phonons. Or, les phonons hypersoniques sont très fortement amortis et se propagent sur des distances très courtes, typiquement de l'ordre de 10 fois la longueur d'onde optique. Dans la mesure où le terme de droite de (III.B-15) varie significativement sur une échelle spatiale beaucoup plus grande, il est possible de négliger le terme de dérivée spatiale. On obtient dans ce cas sans difficulté l'amplitude de l'onde acoustique induite par la présence des ondes lasers :

$$\Delta \rho = \frac{A q^2 \mathcal{E}^* \mathcal{E}_s}{\Omega_B^2 - \delta^2 - i \delta \Gamma_B} \quad (\text{III.B-20})$$

d'où l'on déduit immédiatement :

$$P^{NL}(\omega_s) \propto \frac{A q^2 |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E}_s}{\Omega_B^2 - \delta^2 - i \delta \Gamma_B} \exp(-ikz) \quad (\text{III.B-21})$$

La densité de puissance Π transférée du milieu diffuseur vers l'onde sonde, qui donne accès au spectre de transmission de l'onde sonde, est alors donnée en bonne approximation au voisinage des résonances ($\delta = \pm \Omega_B$) par :

$$\Pi = -E_s \frac{dP_s}{dt} \propto \text{sgn}(\delta) \frac{\Gamma_B^2/4}{(\Omega_B - |\delta|)^2 + \Gamma_B^2/4} I I_s \quad (\text{III.B-22})$$

où sgn désigne la fonction signe ($\text{sgn}(x>0) = 1$; $\text{sgn}(x<0) = -1$), et où I et I_s sont les intensités des ondes pompe et sonde. Comme annoncé, le spectre de transmission présente donc deux résonances centrées en $\delta = \pm \Omega_B$, ayant une forme de lorentzienne, proportionnelles à l'intensité de l'onde pompe, et de largeur Γ_B . Plus précisément, la sonde subit un phénomène d'amplification pour $\delta = -\Omega_B$, et d'absorption pour $\delta = +\Omega_B$. Nous constatons clairement sur l'Eq. (III.B-22) que le transfert de puissance entre pompe et sonde est, comme attendu, lié au fait que la polarisation non linéaire $P^{NL}(\omega_s)$ contient une composante en quadrature avec l'onde sonde [voir Eq. (III.B-23)]. Or cette composante, qui implique la largeur Brillouin Γ_B , est déjà apparente sur l'expression (III.B-22) décrivant la modulation de densité associée à l'onde acoustique. C'est parce que cette modulation de densité n'est pas en phase avec l'excitation induite par l'action conjuguée des ondes pompe et sonde (en raison du processus d'amortissement de l'onde acoustique décrit par le taux Γ_B) qu'il y a transfert de puissance entre pompe et sonde, et apparition de résonances sur le spectre de transmission.

Nous concluons en donnant un ordre de grandeur des paramètres caractéristiques de l'effet Brillouin stimulé dans le cas d'un milieu constitué de molécules d'acétone : $\Omega_B/2\pi = 4.6$ GHz, $\Gamma_B/2\pi = 200$ MHz, et un gain linéique de l'ordre de 2 cm^{-1} pour un laser de 10^8 W/cm^2 (à comparer à 0.3 cm^{-1} avec le même laser pour le gain Raman).

4. La diffusion Rayleigh stimulée ou mélange à deux ondes

La diffusion Rayleigh spontanée est un processus de diffusion élastique de la lumière à basse énergie, schématisé sur la Fig. III.B-8. Un photon incident de fréquence ω (petite devant les fréquences de résonance du système diffuseur) et de polarisation $\mathbf{e}$, est diffusé en un photon de même fréquence et de polarisation $\mathbf{e}_R$, le centre diffuseur restant dans le même état d'énergie à l'issue du processus. De même que dans le cas de la diffusion Raman spontanée, on caractérise ce processus par une section efficace différentielle de diffusion, de la forme [Cohen-Tannoudji 88] :

$$\frac{d\sigma_{sp}^{Ray}}{d\Omega} = \frac{\omega^4}{16\pi^2 \epsilon_0^2 c^4 \hbar^2} \left| \sum_b \frac{\langle a | \mathbf{d} \cdot \mathbf{e}_R | b \rangle \langle b | \mathbf{d} \cdot \mathbf{e} | a \rangle}{\omega_{ba} - \omega} + \frac{\langle a | \mathbf{d} \cdot \mathbf{e} | b \rangle \langle b | \mathbf{d} \cdot \mathbf{e}_R | a \rangle}{\omega_{ba} + \omega} \right|^2 \quad (\text{III.B-23})$$

où les notations sont identiques à celles du §III.B.2

Partant du principe qu'à tout processus spontané est associé un processus stimulé, il semble naturel de chercher à relier les effets Rayleigh spontané et stimulé par une procédure analogue à celle employée au § III.B.2.c dans le cas de la diffusion Raman. Ce faisant, on se heurte immédiatement à une difficulté liée au caractère élastique de la diffusion Rayleigh, dont le corollaire est que les niveaux initial et final du processus de diffusion sont identiques (donc de même population), et qui conduit à une compensation exacte entre amplification et absorption stimulées de l'onde sonde ! Ce résultat ne signifie toutefois pas qu'il n'existe pas de diffusion Rayleigh stimulée, mais plus simplement qu'à l'ordre 2 de la théorie des perturbations utilisé pour l'établissement de l'expression (III.B-23) (voir annexe), les diagrammes associés à l'amplification et à l'absorption de la sonde se compensent exactement. Comme nous allons le voir, il est en fait généralement nécessaire de faire intervenir les processus dissipatifs se produisant dans le milieu afin de mettre en évidence l'effet Rayleigh stimulé. En conséquence, la description de cet effet dans le cadre de la mécanique quantique est très souvent délicate⁽¹⁾.

FIG. III.B-8 : Processus de diffusion Rayleigh spontanée d'un photon incident de fréquence ω .

Nous lui préférons ici une approche classique, en termes de création sous l'effet combiné du champ pompe et de l'onde sonde d'une observable macroscopique modulée temporellement à la différence de fréquence $\delta = \omega_s - \omega$ entre sonde (ω_s) et pompe (ω), mais *ne se propagant pas* (à la différence des ondes acoustiques considérées au paragraphe précédent), et sur laquelle l'onde pompe vient se diffractionner, rayonnant un champ pouvant interférer avec l'onde sonde. Comme nous l'avons vu précédemment, l'origine du transfert de puissance entre pompe et sonde se situe dans l'existence dans le milieu non linéaire d'une composante de polarisation ayant *mêmes* fréquence et vecteur d'onde que la sonde, mais oscillant *en quadrature* avec elle. Or l'existence d'une telle composante de polarisation signifie généralement que le milieu diffuseur n'est pas capable de suivre instantanément la modulation temporelle imposée par la sonde à la fréquence de batttement δ entre pompe et sonde (le milieu diffuseur est totalement insensible aux modulations à fréquence optique). L'aptitude du milieu à suivre l'excitation étant caractérisée par un taux de réponse⁽²⁾ γ , il convient de distinguer plusieurs cas limites selon la grandeur relative de δ et γ . Ainsi, si $\delta \ll \gamma$, le milieu est capable de s'adapter à chaque instant à l'excitation de la sonde, la polarisation du milieu est en phase à tout instant avec la sonde, et l'intensité de la sonde demeure inchangée en cours de propagation à travers le milieu. De même, lorsque $\delta \gg \gamma$, la modulation temporelle imposée par la sonde est trop rapide pour que le milieu puisse y répondre, de telle sorte qu'*aucune* polarisation (tant en phase qu'en quadrature) n'est induite dans le milieu. Finalement, la condition à satisfaire pour qu'apparaisse une résonance Rayleigh stimulée sur le spectre de transmission de la sonde, est que $\delta = \gamma$. Ceci signifie en particulier que la largeur des résonances Rayleigh stimulées, d'allure généralement dispersive [voir Fig. III.B.2(b)], sera de l'ordre de grandeur d'un taux caractéristique de relaxation du milieu. Ainsi, alors que les processus Raman stimulés donnent essentiellement accès aux caractéristiques *statiques* du milieu (positions et populations des niveaux d'énergie), l'effet Rayleigh stimulé fournit des informations sur la

(1) Pour un exemple d'une telle approche, voir [Grynberg 93].
 (2) Le taux de réponse d'un milieu n'est autre que le taux d'évolution intervenant dans la relaxation vers son état stationnaire, de telle sorte que nous emploierons par la suite indifféremment le terme de taux de réponse ou de taux de relaxation.

dynamique du milieu diffuseur. Enfin, les taux de réponse typiques d'un milieu étant généralement très inférieurs à ses fréquences de résonance ou aux fréquences acoustiques, les structures Rayleigh stimulées s'observeront au *centre des spectres* ($\delta \approx 0$), pour des fréquences de l'onde sonde beaucoup plus proches de la fréquence du champ pompe que dans les cas Raman ou Brillouin.

Mentionnons pour mémoire que de telles résonances induites par la relaxation peuvent également se produire entre états d'énergies et de populations différentes. On peut alors montrer que contrairement aux résonances Raman qui font intervenir la *différence* de population entre de tels niveaux et ont une allure lorentzienne, les résonances induites par la relaxation (parfois appelées en anglais "two-wave mixing" ou "two-beam coupling resonances") font intervenir la *somme* des populations des niveaux et ont une forme dispersive. L'existence de telles résonances a été considérée pour la première fois par Bogdan, Downer et Bloembergen [Bogdan 81]. Les structures Raman et Rayleigh, de même position et de même largeur, coexistent donc en principe toujours, mais les résonances induites par relaxation ont généralement une amplitude sensiblement plus faible, et peuvent souvent être négligées lors de l'interprétation des structures latérales des spectres.

a. L'effet Rayleigh stimulé induit par relaxation

Nous considérons ici le cas d'une expérience pompe-sonde dans un milieu diffuseur simple où existe un seul processus de relaxation⁽¹⁾ de taux γ , et nous montrons que ce processus se manifeste généralement sur le spectre de transmission de la sonde sous la forme d'une résonance dispersive de demi-largeur γ . Le milieu est supposé interagir avec un champ pompe E de fréquence optique ω et de vecteur d'onde $\mathbf{k}$, ainsi qu'avec une onde sonde E_s de fréquence $\omega_s = \omega + \delta$ très proche de ω , et de vecteur d'onde $\mathbf{k}_s$. Le champ laser total est donc de la forme :

$$\begin{aligned} E_{\text{tot}} &= [E \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + E_s \exp(-i\delta t + i\mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r})] \exp(-i\omega t) + c.c. \\ &= \xi(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega t) + c.c. \end{aligned} \quad (\text{III.B-24})$$

L'interaction simultanée avec ces champs induit dans le milieu diffuseur une polarisation P :

$$P = \epsilon_0 \chi \xi(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega t) + c.c. \quad (\text{III.B-25})$$

qui possède une composante ayant les mêmes caractéristiques (fréquence et vecteur d'onde) que l'onde sonde. Elle est associée à une susceptibilité χ , solution de l'équation d'évolution :

$$\dot{\chi} + \gamma(\chi - \chi_{st}^{(0)}) = \beta E^* E_s \exp[-i\delta t + i(\mathbf{k}_s - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r}] \quad (\text{III.B-26})$$

où $\chi_{st}^{(0)}$ est la valeur stationnaire de la susceptibilité en l'absence de sonde, et γ le taux caractéristique du processus de relaxation. Le second membre de l'Eq. (III.B-26) décrit la modification de la susceptibilité du milieu sous l'influence de l'onde sonde (il s'agit donc d'un processus non linéaire). La valeur stationnaire de cette susceptibilité non linéaire se déduit immédiatement de l'Eq. (III.B-26) :

$$\chi_{st} = \frac{\beta E^* E_s}{\gamma - i\delta} \exp[-i\delta t + i(\mathbf{k}_s - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r}] \quad (\text{III.B-27})$$

La composante de la polarisation du milieu ayant les mêmes fréquence et vecteur d'onde que le faisceau sonde s'écrit alors :

$$P_s = \frac{\epsilon_0 \beta}{\gamma - i\delta} |E|^2 E_s \quad (\text{III.B-28})$$

d'où l'on déduit l'expression de la densité de puissance Π transférée du milieu diffuseur vers l'onde sonde :

$$\Pi = -E_s \frac{dP_s}{dt} = -2\epsilon_0 \omega \beta I_s \frac{\delta}{\delta^2 + \gamma^2} \quad (\text{III.B-29})$$

avec I et I_s les intensités des ondes pompe et sonde, et où l'on a supposé β réel (ce qui est généralement une bonne approximation). Comme annoncé, le spectre de transmission de la sonde présente donc une résonance centrée en $\delta = 0$, d'allure dispersive et de demi-largeur γ ⁽²⁾. La sonde subit donc un phénomène d'extra-amplification et d'extra-absorption de part et d'autre de $\delta = 0$, sans qu'il soit *a priori* possible de déterminer si

(1) L'existence d'un tel processus de relaxation est une condition *nécessaire* à l'établissement d'un régime *stationnaire* dans le milieu diffuseur, et est donc implicitement présent dans tous les systèmes à l'équilibre.

(2) Dans le cas d'un milieu optiquement mince, le transfert de puissance de l'onde pompe vers l'onde sonde est en effet directement proportionnel à Π .

l'amplification correspond aux fréquences Stokes ou anti-Stokes. On s'assure en outre que pour $\delta \approx 0$ (le milieu suit parfaitement la modulation de la sonde), et pour $\delta \gg \gamma$ (le milieu est incapable de suivre la modulation temporelle trop rapide imposée par la sonde), le transfert de puissance vers l'onde sonde tend bien vers zéro.

Nous allons à présent illustrer le processus de diffusion Rayleigh stimulée sur deux exemples tirés de la physique des milieux moléculaires, qui permettront d'entrevoir la diversité des phénomènes physiques pouvant donner naissance à une résonance Rayleigh sur le spectre de transmission de l'onde sonde.

b. L'effet "Rayleigh-wing" stimulé

L'effet "Rayleigh-wing" stimulé fut observé expérimentalement pour la première fois en 1965 par Mash *et al.* [Mash 65], puis par Cho *et al.* en 1967 [Cho 67], et décrit théoriquement par Bloembergen et Lallemand [Bloembergen 66], ainsi que par Chiao *et al.* [Chiao 66]. L'origine de ce processus de diffusion Rayleigh stimulée réside dans la tendance qu'ont les molécules anisotropes (CS_2 , benzène, acétone...) à s'orienter le long de la direction du champ électrique d'une onde laser, entraînant une modification de l'indice de réfraction du milieu (voir §III.A.1.b). Comme nous l'avons mentionné au §III.A.1.b, cette tendance est partiellement contrebalancée par l'agitation thermique qui tend à rendre isotrope la distribution d'orientation des molécules. L'évolution dynamique de l'orientation moléculaire est caractérisée par un temps de désorientation τ . Il est donné par la théorie de Debye des molécules polaires [Debye 29] :

$$\tau = \frac{4\pi a^3}{k_B T} \eta \quad (\text{III.B-30})$$

où η est la viscosité du fluide, et a le rayon moyen de la molécule. Ce temps varie sensiblement d'un fluide à un autre, son ordre de grandeur typique étant la picoseconde.

FIG. III.B-9 : Schéma expérimental pour l'observation de l'effet "Rayleigh-wing" stimulé. Deux faisceaux pompe (ω) et sonde (ω_s) ayant des polarisations linéaires orthogonales se propagent à travers un milieu contenant des molécules anisotropes de type CS_2 . A la sortie de la cellule, l'intensité du faisceau sonde est mesurée en fonction de ω , au moyen d'une photodiode Ph, et présente une résonance "Rayleigh-wing" au voisinage de $\omega_s = \omega$, de largeur de l'ordre de 10 à 100 GHz.

La mise en évidence de l'effet "Rayleigh-wing" s'effectue de la manière suivante. On éclaire le milieu moléculaire à l'aide d'une onde pompe de fréquence ω polarisée linéairement le long de la direction x . Cette onde a pour effet d'aligner les molécules le long de l'axe x par le processus que nous venons de discuter. On fait également interagir ce milieu orienté avec une onde sonde de fréquence $\omega_s = \omega + \delta$ polarisée linéairement le long de la direction y (voir Fig. III.B-9). Au premier ordre en l'amplitude de la sonde, on peut distinguer deux effets de celle-ci sur les molécules. D'une part, le champ électrique de la sonde va induire un dipôle dans la molécule (proportionnel à la polarisabilité $\alpha_{\perp}$, voir Fig. III.A-2) ayant une direction différente de celle du champ pompe, et créant ainsi un couple modulé à la fréquence δ [voir Eq. (III.A-12)]. D'autre part, le dipôle induit dans les molécules par l'onde pompe (proportionnel à la polarisabilité $\alpha_{\parallel}$, voir Fig. III.A-2) n'étant pas dirigé selon la direction du champ sonde, les molécules vont également subir de la part de l'onde sonde un couple, lui aussi modulé à la fréquence δ . La somme de ces deux contributions étant non nulle du fait de l'anisotropie de polarisabilité de la molécule, l'effet global de la sonde va être une modulation temporelle à la fréquence δ de l'orientation moyenne des molécules autour de la direction du champ pompe.

Une autre façon d'interpréter la dynamique d'orientation des molécules est de remarquer que le champ laser total (pompe + sonde) a une direction variant dans l'espace à la fréquence δ , le long de laquelle les molécules

cherchent constamment à s'aligner. Comme nous l'avons déjà mentionné, le passage entre la situation où les molécules suivent adiabatiquement le champ électrique, et le cas où elles restent insensibles aux variations de champ, se produit pour $|\delta| \approx 1/\tau$. Comme le temps caractéristique de réorientation des molécules τ est de l'ordre de la picoseconde, on s'attend à ce que la résonance "Rayleigh-wing" stimulée ait une largeur de l'ordre de 10 à 100 GHz, proportionnelle à la température et inversement proportionnelle à la viscosité du milieu [d'après l'Eq. (III.B-30)]. L'origine physique du gain de la sonde est ici très simple : en créant une modification de l'orientation moyenne des molécules, l'onde sonde induit une biréfringence modulée à la fréquence δ dans le milieu. La transmission du champ pompe de fréquence ω et polarisé linéairement selon x dans ce milieu dont la biréfringence varie temporellement, conduit à un champ de fréquence $\omega_s = \omega + \delta$ de polarisation elliptique, dont la composante selon y interfère avec l'onde sonde et modifie son intensité. Les principales caractéristiques de l'effet "Rayleigh-wing" stimulé sont résumées dans le Tableau III.B-1.

MILIEU DIFFUSEUR		
Caractéristiques physiques		Centres diffuseurs
Milieu liquide, $T \approx 300$ K		Molécules anisotropes
LARGEUR DE RÉSONANCE		
Taux de relaxation		Origine de la relaxation
Taux de désorientation de Debye 10-100 GHz		Viscosité, agitation thermique
FORME DE RÉSONANCE		
Excitation par la sonde	Caractéristiques sonde	Mécanisme de diffraction
Couple réorientant les molécules	Polarisation orthogonale à celle de la pompe	Biréfringence

Tableau III.B-1 : Caractéristiques typiques de l'effet "Rayleigh-wing" stimulé.

Mentionnons pour finir que l'effet "Rayleigh-wing" peut également être considéré comme un effet Raman stimulé entre états *rotationnels* de la molécule. Toutefois, ces états ne sont pas résolus dans le fluide, car l'élargissement lié au processus de relaxation est très supérieur à la séparation des niveaux. La différence d'énergie $\hbar\delta$ liée au changement de niveau de rotation des molécules est ainsi évacuée par le mécanisme d'amortissement. Enfin, nous noterons pour mémoire qu'il est également possible de donner une interprétation de l'effet "Rayleigh-wing" stimulé en termes de couplage paramétrique entre champs lasers et onde d'orientation des molécules du milieu⁽¹⁾.

(1) Voir par exemple [Bloembergen 67].

c. L'effet "Rayleigh" stimulé

Les effets "Rayleigh" et Brillouin stimulés sont traditionnellement associés dans les ouvrages traitant des processus stimulés dans les milieux moléculaires⁽¹⁾. La raison en est qu'ils décrivent tous deux des phénomènes de diffusion de la lumière par des inhomogénéités de quantités thermodynamiques. La distinction entre ces deux effets se fait sans ambiguïté en choisissant l'entropie S et la pression p comme variables thermodynamiques indépendantes. On désigne alors par effet "Rayleigh" les mécanismes de diffusion liés aux *fluctuations isobares d'entropie*, et par effet Brillouin les processus au cours desquels la lumière est diffusée par des *fluctuations isentropiques de pression* ⁽²⁾, les variations correspondantes de la susceptibilité optique χ du milieu étant respectivement $(\partial\chi/\partial S)_p$ et $(\partial\chi/\partial p)_S$. Toutefois, il est plus commode pour le traitement théorique et l'interprétation physique des résultats, de travailler avec les variables densité massique ρ et température T comme quantités thermodynamiques indépendantes. On montre que ces deux approches peuvent être reliées à l'aide de relations de la forme [Cummins 66] :

$$\left(\frac{\partial\chi}{\partial S}\right)_p = \frac{\bar{T}}{C_p \bar{\rho} v} \left[\bar{\rho} \beta_T \left(\frac{\partial\chi}{\partial p}\right)_T + \left(\frac{\partial\chi}{\partial T}\right)_p \right] \quad (\text{III.B-31})$$

et une expression similaire pour $(\partial\chi/\partial p)_S$. C_p est la chaleur spécifique à pression constante, v est la vitesse du son dans le milieu, β_T est le coefficient de dilatation thermique, et les barres désignent la valeur moyenne dans le milieu. Le second terme entre crochets de l'Eq. (III.B-31), qui est associé à la dépendance explicite en température de la susceptibilité optique du milieu, est généralement suffisamment petit pour que l'on puisse le négliger sans faire une erreur de plus de quelques % [Batra 69]. Il en résulte que l'effet "Rayleigh" dépend essentiellement de la variation de la susceptibilité avec la densité, et diffère de l'effet Brillouin par le fait qu'aucune onde acoustique n'est impliquée dans les fluctuations de densité.

On distingue généralement deux types d'effet "Rayleigh" selon l'origine de ces fluctuations. Ce sont d'une part l'effet Rayleigh *électrostrictif* stimulé, qui correspond à la diffusion de la lumière par des fluctuations de densité isobares induites par le processus d'électrostriction, et d'autre part l'effet Rayleigh *thermodiffusif* stimulé, qui décrit le processus de diffusion de la lumière par des fluctuations de densité isobares dues à la dilatation thermique après échauffement local du milieu par absorption de lumière laser. Notre but n'étant pas ici de présenter une étude détaillée de ces effets, nous nous contenterons d'en donner les principales caractéristiques.

i. Dispositif expérimental

L'observation de l'effet "Rayleigh" stimulé requiert l'utilisation d'une onde pompe de fréquence ω et de vecteur d'onde $\mathbf{k}$, et faisant un angle θ (pouvant prendre des valeurs de 0 à 180°) avec une onde sonde de fréquence $\omega_s = \omega + \delta$, et de vecteur d'onde $\mathbf{k}_s$ (Fig. III.B-10). L'interférence de ces deux ondes conduit à un champ électrique dont l'intensité présente une composante modulée temporellement à la fréquence δ , et spatialement avec une période de $\lambda/2 \sin(\theta/2)$ (où λ est la longueur d'onde des lasers). Cette modulation d'intensité va alors donner lieu à une modulation de densité par les processus antagonistes d'électrostriction (accumulation des molécules dans les zones de forte intensité, voir §III.B.3) et d'absorption de lumière (provoquant un échauffement local du milieu aux endroits de plus forte intensité et, par dilatation thermique, une diminution de sa densité).

(1) L'emploi des guillemets pour désigner l'effet "Rayleigh" moléculaire a pour but d'effectuer la distinction entre cet effet caractéristique des molécules, et le processus plus général qui le sous-tend.

(2) Lors de l'étude de l'effet Brillouin stimulé (§III.B.3), nous avons considéré que l'onde acoustique était équivalente à une modulation de densité. Ceci n'est en fait qu'une approximation (utilisée pour la première fois par Einstein et Brillouin lui-même pour décrire les processus de diffusion spontanée par des fluctuations lentes de variables thermodynamiques). En fait, la densité du milieu est une fonction de la pression et de l'entropie.

FIG. III.B-10 : Schéma expérimental pour l'observation de l'effet "Rayleigh" stimulé. Deux faisceaux pompe (ω) et sonde (ω_s) faisant entre eux un angle θ ($0-180^\circ$) se propagent à travers un milieu moléculaire. A la sortie de la cellule, l'intensité du faisceau sonde est mesurée en fonction de ω_s au moyen d'une photodiode Ph.

ii. Processus de relaxation

Nous nous intéressons ici au processus de relaxation des fluctuations de densité isobares du milieu. La contrainte que constitue l'équation d'état du fluide considéré impose que de telles fluctuations s'accompagnent nécessairement de variations de température dans le milieu, si bien que la relaxation va faire intervenir tout à la fois les processus de transport d'énergie, de matière, et de quantité de mouvement (équation de Navier-Stokes). On peut alors montrer que le temps de relaxation des fluctuations isobares de densité sous l'action de ces processus est égal à [Kaiser 72]-[Boyd 92] :

$$\tau = \frac{\bar{\rho} C_p}{2\sigma(\mathbf{k} - \mathbf{k}_s)^2} = \frac{\bar{\rho} C_p}{8\sigma k^2 \sin^2(\theta/2)} \quad (\text{III.B-32})$$

où σ est la conductivité thermique du milieu. On reconnaît alors sur l'Eq. (III.B-32) l'expression du temps de relaxation d'une modulation de densité de pas $\lambda/2 \sin(\theta/2)$, par un processus de *diffusion spatiale* de coefficient :

$$D = \frac{\sigma}{\bar{\rho} C_p} \quad (\text{III.B-33})$$

cette diffusion étant ici un peu particulière, puisque procédant d'échanges de matière, mais aussi d'énergie. L'ordre de grandeur typique du temps de relaxation τ pour un angle θ de 180° est de 10 ns (cas des milieux de faible conductivité thermique), mais il peut devenir considérablement plus long dans le cas où pompe et sonde font entre elles un angle très petit.

iii. Effet Rayleigh électrostrictif stimulé

FIG. III.B-11 : Gain Rayleigh de la sonde g_s en fonction du paramètre sans dimension $\delta\tau$, en présence d'électrostriction. Le processus Rayleigh électrostrictif se manifeste sur le spectre de transmission sous la forme d'une résonance dispersive de largeur $1/\tau$. L'amplification de la sonde ($g_s > 0$) correspond aux fréquences Stokes.

En raison du processus d'électrostriction (voir §III.B.3), la modulation d'intensité liée à l'interférence de la pompe et de la sonde va conduire à une variation spatio-temporelle de densité, éventuellement déphasée en raison du temps de réponse fini τ du milieu, et tendant à accumuler les molécules dans les zones de plus forte intensité. La diffraction de l'onde pompe sur cette modulation de densité se manifeste alors sur le spectre de transmission de la sonde sous la forme d'une résonance "Rayleigh" d'allure dispersive, et présentant une partie en amplification et une partie en absorption (voir Fig. III.B-11).

iv. Effet Rayleigh thermodiffusif stimulé

L'effet Rayleigh thermodiffusif stimulé ne se produit que dans les milieux absorbant la lumière. Dans ce cas, la modulation spatio-temporelle d'intensité liée à l'interférence de la pompe et de la sonde s'accompagne d'une variation modulée de la température sous l'effet de l'absorption de lumière laser, et par suite du phénomène de dilatation thermique, d'une modulation spatio-temporelle de densité, éventuellement déphasée en raison du temps de réponse fini τ du milieu. On voit alors qu'au contraire du processus d'électrostriction, cet effet tend à accumuler les molécules dans les zones de plus faible intensité. La diffraction de la pompe sur cette modulation de densité conduit également à une résonance "Rayleigh" d'allure dispersive sur le spectre de transmission de la sonde (voir Fig. III.B-12).

MILIEU DIFFUSEUR		
Caractéristiques physiques		Centres diffuseurs
Milieu fluide dense, $T \approx 300\text{ }^{\circ}\text{C}$		Molécules, atomes
LARGEUR DE RÉSONANCE		
Taux de relaxation		Origine de la relaxation
$\sin^2(\theta/2) \times 10\text{ MHz}$		Diffusion spatiale par transport d'énergie et de matière
FORME DE RÉSONANCE		
Excitation par la sonde	Caractéristiques sonde	Mécanisme de diffraction
Modulation de densité	θ : angle entre pompe et sonde	Diffraction de Bragg sur réseau de densité
Par <i>électrostriction</i> (effet Rayleigh électrostrictif)		
Par <i>absorption</i> laser (effet Rayleigh thermodiffusif)		

Tableau III.B-2: Caractéristiques typiques de l'effet "Rayleigh" stimulé.

La comparaison des Figs III.B-11 et III.B-12 montre que la résonance Rayleigh thermodiffusive a un signe opposé à la résonance Rayleigh électrostrictive. Ceci est très naturel puisque nous avons vu que l'électrostriction et l'absorption ont des effets opposés. En effet, pour une modulation d'intensité donnée, les variations locales de densité dues à ces deux processus ont des signes exactement opposés, et engendrent naturellement des résonances de signes différents. Une autre caractéristique très importante de ces deux types de résonances est que dans un milieu absorbant la lumière, l'effet Rayleigh électrostrictif est presque toujours négligeable devant l'effet thermodiffusif, et la résonance "Rayleigh" présente alors toujours l'allure de la Fig. III.B-12. Plus précisément, on peut montrer que dans la très grande majorité des milieux moléculaires, la présence d'impuretés, même en faible concentration, contribue à rendre le mécanisme d'absorption très nettement dominant sur celui d'électrostriction, la tendance s'inversant uniquement dans le cas de milieux très purs où le coefficient d'absorption est inférieur à 10^{-3} cm^{-1} . Ceci rend donc l'observation de l'effet Rayleigh électrostrictif extrêmement difficile.

FIG. III.B-12 : Dépendance du gain de la sonde g_s en fonction du paramètre sans dimension $\delta\tau$, en présence d'absorption laser. Le processus Rayleigh thermodiffusif se manifeste sur le spectre de transmission sous la forme d'une résonance dispersive de largeur $1/\tau$. L'amplification de la sonde ($g_s > 0$) correspond aux fréquences anti-Stokes.

Nous concluons en mentionnant que l'effet "Rayleigh" conduit généralement à des gains typiques d'un ordre de grandeur inférieurs aux gains Raman, et de deux ordres de grandeur inférieurs aux gains Brillouin. Les caractéristiques des deux effets "Rayleigh" sont résumées dans le Tableau III.B-2.

C. Le mélange à quatre ondes

Parmi les effets non linéaires du troisième ordre impliquant trois ondes lasers, nous avons choisi d'étudier ici plus particulièrement les processus que l'on regroupe traditionnellement sous le terme de mélange à quatre ondes ("four-wave mixing" en anglais). Une telle appellation, surprenante au premier abord dans la mesure où seules *trois* ondes lasers sont incidentes sur le milieu non linéaire, est due au fait que l'interaction de ces trois faisceaux avec le milieu peut donner naissance à une (voire à plusieurs) nouvelle onde, susceptible d'interagir à son tour avec les trois champs incidents. Selon que toutes les ondes incidentes ont ou non la même fréquence, on parlera de mélange *dégénéré* ou *non dégénéré* à quatre ondes. Nous considérerons ici ces deux situations, dans le cas particulier où la non-linéarité est de type effet Kerr optique (voir §III.A).

1. Mélange non dégénéré à quatre ondes dans un milieu Kerr

Considérons un milieu Kerr interagissant avec deux ondes pompes intenses E et E' se propageant en sens opposés (vecteurs d'onde $\mathbf{k}$ et $-\mathbf{k}$), et une onde sonde de faible intensité E_s se propageant dans la direction $+z$ (vecteur d'onde $k_s \mathbf{e}_z$ proche de $\mathbf{k}$) (voir Fig. III.C-1). Nous nous plaçons dans la situation où les ondes pompes ont même fréquence $\omega = 2\pi c/\lambda_0$, proche de la fréquence $\omega_s = \omega + \delta$ de l'onde sonde ($|\delta| \ll \omega$). Nous supposons en outre que les trois faisceaux lasers ont même polarisation (qui ne sera donc pas prise en compte par la suite). Le champ électrique total prend donc la forme :

$$E(\mathbf{r}, t) = [\mathcal{E} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + \mathcal{E}' \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + \mathcal{E}_s \exp(-i\delta t + ik_s z)] \exp(-i\omega t) + c. c. \\ = \xi(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega t) + c. c. \quad (\text{III.C-1})$$

où $\xi(\mathbf{r}, t)$ est une quantité complexe homogène à un champ électrique, dépendant lentement du temps (à l'échelle des fréquences optiques), et décrivant l'amplitude et la phase *locale* du champ électrique total.

FIG. III.C-1 : Disposition des champs incidents dans une expérience de mélange à quatre ondes. L'angle entre pompes et sonde, exagéré sur la figure pour des raisons de clarté, est typiquement de 10^{-2} radian.

L'Eq. (III.A-1) reliant la polarisation non linéaire d'un milieu Kerr à l'intensité du champ électrique le traversant étant une relation locale, reste valide dans le cas présent, à la condition toutefois que la différence de fréquence δ entre pompes et sonde reste suffisamment petite⁽¹⁾. Elle prend alors la forme :

$$P^{NL} = \varepsilon_0 \chi^{(3)} |\xi(\mathbf{r}, t)|^2 \xi(\mathbf{r}, t) \exp(-i\omega t) \quad (\text{III.C-2})$$

où $\chi^{(3)}$ est la susceptibilité non linéaire d'ordre 3, supposée indépendante de la fréquence laser à l'échelle de δ . L'interaction non linéaire du milieu et des différents faisceaux lasers en présence se manifeste donc par la création d'une polarisation présentant de nombreuses composantes de Fourier spatiales et temporelles. En ne retenant que les termes d'ordre au plus 1 en champ sonde (champ de faible intensité), la polarisation non linéaire s'écrit :

$$P^{NL} = [\mathcal{P}_{ind} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + \mathcal{P}'_{ind} \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + \mathcal{P}_1 \exp(3i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + \mathcal{P}_2 \exp(-3i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})] \exp(-i\omega t) \\ + [\mathcal{P}_{ind,s} \exp(ik_s z) + \mathcal{P}_{réac} \exp(-2i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + ik_s z) + \mathcal{P}_3 \exp(2i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + ik_s z)] \exp(-i\omega_s t) \\ + [\mathcal{P}_{cp,ar} \exp(-ik_s z) + \mathcal{P}_{cp,av} \exp(2i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - ik_s z) + \mathcal{P}_4 \exp(-2i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - ik_s z)] \exp[-i(2\omega - \omega_s)t] \quad (\text{III.C-3})$$

Remarquons tout d'abord que compte tenu de l'orientation relative des vecteurs d'onde des champs pompes et sonde considérée ici (Fig. III.C-1), il est impossible de satisfaire, même approximativement, la condition d'accord de phase pour les processus non linéaires associés aux composantes de polarisation $\mathcal{P}_1$, $\mathcal{P}_2$, $\mathcal{P}_3$, et $\mathcal{P}_4$ (voir §I.B.4.b). Les effets non linéaires *a priori* observables sont donc entièrement décrits au moyen de la polarisation :

$$P^{NL} = [\mathcal{P}_{ind} \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + \mathcal{P}'_{ind} \exp(-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})] \exp(-i\omega t) \\ + [\mathcal{P}_{ind,s} \exp(ik_s z) + \mathcal{P}_{réac} \exp(-2i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + ik_s z)] \exp(-i\omega_s t) \\ + [\mathcal{P}_{cp,ar} \exp(-ik_s z) + \mathcal{P}_{cp,av} \exp(2i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - ik_s z)] \exp[-i(2\omega - \omega_s)t] \quad (\text{III.C-4})$$

dont nous allons étudier les différents termes, et les processus non linéaires qui leur sont associés. Pour cela, deux solutions s'offrent à nous :

- ◆ La première repose sur une description entièrement classique des champs, et fait essentiellement intervenir la diffraction des ondes pompes et sonde sur des réseaux d'indice induits par la présence des champs lasers. Cette approche est basée sur la propriété qu'a un milieu Kerr de posséder un indice de réfraction dépendant linéairement de l'intensité totale du champ électrique le traversant. Dans la situation qui nous intéresse ici, la présence des ondes pompes et sonde se traduit par l'apparition dans le milieu de l'indice non linéaire :

(1) Plus précisément, il faut d'une part que le milieu non linéaire réagisse de façon quasi-identique vis-à-vis d'un faisceau de fréquence ω ou de fréquence $\omega + \delta$, et d'autre part que $1/\delta$ soit suffisamment petit devant le temps caractéristique de réponse de la non-linéarité.

$$n^{NL}(\mathbf{r}, t) = n_2 |\xi(\mathbf{r}, t)|^2 \quad (\text{III.C-5})$$

L'intensité locale du champ laser $|\xi(\mathbf{r}, t)|^2$ présentant différentes composantes de Fourier spatiales et temporelles, il en sera de même de l'indice du milieu. C'est la diffraction des ondes pompes ou sonde sur ces réseaux modulés d'indice qui donnera lieu aux ondes décrites par la polarisation non linéaire (III.C-4). Une telle interprétation des processus non linéaires nécessitera simplement l'identification des ondes responsables de la modulation d'indice, ainsi que de l'onde diffractée.

- ◆ La seconde approche est basée sur une description quantique du rayonnement laser. Elle consiste à associer aux différentes composantes de la polarisation (III.C-4) des diagrammes représentant l'absorption ou l'émission de photons pompes ou sonde, et conduisant *in fine* à l'émission d'un photon ayant les caractéristiques spectrales des composantes de polarisation considérées. On utilisera pour cela les règles de correspondance classique $\rightarrow$ quantique décrites au §I.C.3.

Nous discutons à présent les différents processus physiques décrits par la polarisation (III.C-4) au moyen de ces deux interprétations.

a. Modification de l'indice de réfraction des ondes pompes par elles-mêmes

Les composantes de polarisation $\mathcal{P}_{ind}$ et $\mathcal{P}'_{ind}$ rayonnent un champ ayant les mêmes caractéristiques (vecteur d'onde, fréquence) que les ondes pompes E et E' . Elles sont associées à une modification de l'indice de réfraction de ces ondes ($\mathcal{P}_{ind}$ et $\mathcal{P}'_{ind}$ étant *purement en phase* avec les ondes E et E'). Considérons plus particulièrement la composante $\mathcal{P}_{ind}$ (le cas de $\mathcal{P}'_{ind}$ s'en déduit par échange de $\mathcal{E}$ et $\mathcal{E}'$). Elle est donnée d'après les Eqs (III.C-1), (III.C-2) et (III.C-4) par :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_{ind} &= \epsilon_0 \chi^{(3)} \left[|\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} + |\mathcal{E}'|^2 \mathcal{E} + (\mathcal{E} \mathcal{E}'^*) \mathcal{E}' \right] \\ &= \epsilon_0 \chi^{(3)} \left(|\mathcal{E}|^2 + 2|\mathcal{E}'|^2 \right) \mathcal{E} \end{aligned} \quad (\text{III.C-6})$$

FIG. III.C-2 : Représentation schématique des processus quantiques correspondant aux trois termes de l'Eq. (III.C-6). L'onde E est représentée par un trait continu, tandis que l'onde E' est représentée par un trait pointillé.

La première ligne de (III.C-6) permet d'interpréter très simplement l'effet de modification d'indice de l'onde pompe E . Le premier terme n'est autre que l'effet Kerr optique considéré au §III.A.1, et reflète la modification d'indice de l'onde E par elle-même. Il est associé au diagramme de la Fig. III.C-2(a), et correspond à la simple propagation de l'onde pompe E à travers un milieu dont l'indice de réfraction est modifié de façon *uniforme* par interaction non linéaire. Le second terme est semblable au premier, mais fait intervenir l'intensité de l'*autre* onde pompe E' . Il décrit un *effet Kerr croisé*, et correspond à la modification de l'indice de réfraction de l'onde E due à la présence de l'autre onde intense E' . Il est associé au diagramme de la Fig. III.C-2(b), et correspond également à la propagation de l'onde E à travers un milieu d'indice de réfraction modifié de façon *uniforme* par interaction non linéaire. Le troisième terme est de nature différente, puisqu'il fait intervenir la création d'une modulation *spatiale* d'indice de vecteur d'onde $2\mathbf{k}$ (terme en $\mathcal{E} \mathcal{E}'^*$). Il est associé au diagramme de la Fig. III.C-2(c), et correspond à un mécanisme de diffraction vers l'arrière de l'onde pompe E' sur le réseau

d'indice lié à la modulation spatiale de l'intensité de l'onde stationnaire formée par les champs E et E' (voir Fig. III.C-3).

On voit ainsi que la deuxième ligne de l'Eq. (III.C-6) est à manipuler avec précautions car elle regroupe sous forme condensée des processus physiques distincts, qui peuvent être affectés de façons différentes par une perturbation extérieure. Ainsi, dans un milieu gazeux où les atomes ou molécules responsables de la non-linéarité sont en mouvement très rapide, le troisième terme ne contribuera pas (ou peu) à la modification d'indice des ondes pompes, le réseau d'indice de période $= \lambda_0/2$ étant "brouillé" très rapidement par l'agitation thermique. Par contre, les premier et second termes subsisteront. Ceci montre, si besoin en était, que la compréhension physique des processus est indispensable à l'interprétation ou à la prédiction quantitative des résultats d'une expérience.

FIG. III.C-3 : L'interférence des deux ondes pompes induit dans le milieu Kerr un réseau d'indice statique modulé spatialement avec une périodicité $\approx \lambda_0/2$ (a). La diffraction vers l'arrière du champ E' sur ce réseau conduit à une onde ayant les mêmes caractéristiques que E (b). Cette onde diffractée contribue à la modification d'indice de l'onde E .

b. Modification de l'indice de l'onde sonde par les ondes pompes

La composante de polarisation $\mathcal{P}_{ind,s}$ rayonne un champ ayant des caractéristiques identiques à celles de l'onde sonde E_s . Elle est semblable aux composantes $\mathcal{P}_{ind}$ et $\mathcal{P}'_{ind}$ étudiées précédemment, et décrit comme elles une modification d'indice, qui porte cependant ici sur l'onde sonde. L'expression de $\mathcal{P}_{ind,s}$ déduite des Eqs (III.C-1), (III.C-2) et (III.C-4) est :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_{ind,s} &= \epsilon_0 \chi^{(3)} \left[|E|^2 E_s + |E'|^2 E_s + (E_s E^*) E + (E_s E'^*) E' \right] \\ &= 2\epsilon_0 \chi^{(3)} \left(|E|^2 + |E'|^2 \right) E_s \end{aligned} \quad (\text{III.C-7})$$

Nous remarquons tout d'abord par comparaison des Eqs (III.C-6) et (III.C-7) que *la modification d'indice de l'onde sonde est différente de celle des ondes pompes*, résultat qui resterait d'ailleurs valide dans la situation où une seule onde pompe serait présente dans le milieu. Les premier et second termes de l'Eq. (III.C-7), associés aux diagrammes de la Fig. III.C-4(a-b), sont très semblables au second terme de l'Eq. (III.C-6), et décrivent un effet Kerr croisé impliquant une modification de l'indice non linéaire de l'onde sonde par la présence des ondes intenses E et E' . Les troisième et quatrième termes de l'Eq. (III.C-7) [voir Fig. III.C-4(c-d)] sont eux semblables au troisième terme de l'Eq. (III.C-6), et correspondent à la diffraction des ondes pompes sur les réseaux d'indice associés aux modulations d'intensité des champs obtenus en combinant l'onde sonde avec l'une des ondes pompes. Une différence importante avec la situation du paragraphe précédent réside toutefois dans le fait que ces réseaux d'indice sont non seulement modulés spatialement, mais aussi *temporellement* (à la fréquence de battement δ entre les ondes pompes et sonde). C'est précisément parce que ces réseaux sont modulés temporellement que l'onde pompe diffractée subit un changement de fréquence (effet Doppler), conduisant à un champ ayant exactement les mêmes caractéristiques que l'onde sonde⁽¹⁾ (voir Fig. III.C-5). Il est également important de noter la différence de périodicité spatiale entre les réseaux d'indice associés aux troisième (périodicité de l'ordre de $\lambda_0/2$) et quatrième (périodicité très grande devant λ_0) termes, qui peut jouer sur le poids effectif de ces différentes contributions.

FIG. III.C-4 : Représentation schématisée des processus quantiques correspondant aux quatre termes de l'Eq. (III.C-7). L'onde sonde est représentée par un trait gris continu.

(1) Il s'agit du processus analogue à celui impliqué dans les résonances du spectre de transmission considérées au §III.B (voir Fig. III.B-3). La différence réside ici dans le fait que c'est la composante *en phase* de la polarisation qui est impliquée dans la modification d'indice.

FIG. III.C-5 : L'interférence de l'onde pompe E et de l'onde sonde induit dans le milieu Kerr un réseau d'indice modulé temporellement (fréquence δ) et spatialement (a). La diffraction vers l'avant du champ E sur ce réseau conduit à une onde ayant les mêmes caractéristiques que l'onde sonde (b). Cette onde diffractée contribue à la modification d'indice du champ E_s .

c. Réaction distribuée⁽¹⁾

La composante de polarisation $\mathcal{P}_{réac}$ est associée à la même fréquence ω_s que l'onde sonde, mais possède un vecteur d'onde différent : $\kappa_{réac} = k_s \mathbf{e}_z - 2\mathbf{k}$. Comme nous l'avons vu au §I.B.4.b, pour que cette composante de polarisation rayonne de façon efficace un champ dans la direction $\kappa_{réac}$ (champ qui n'est pas présent initialement dans le milieu), il faut que la condition d'accord de phase (I.B-22) soit vérifiée. En d'autres termes, il faut que la période spatiale du champ de dipôles, égale à $2\pi|\kappa_{réac}|^{-1} = 2\pi|k_s \mathbf{e}_z - 2\mathbf{k}|^{-1}$, coïncide avec la longueur d'onde d'un champ faible de fréquence ω_s , dont nous avons vu au paragraphe précédent qu'elle était affectée par la présence des ondes pompes intenses⁽²⁾. Comme cette dernière quantité est aussi égale à $2\pi|k_s|^{-1}$, il faut vérifier :

$$|k_s| = |k_s \mathbf{e}_z - 2\mathbf{k}| \quad (\text{III.C-8})$$

En d'autres termes, il faut pouvoir construire un triangle isocèle de cotés $\kappa_{réac} = k_s \mathbf{e}_z - 2\mathbf{k}$ et $k_s \mathbf{e}_z$, et dont la base soit $2\mathbf{k}$ (voir Fig. III.C-6). Il est important de noter que *c'est parce que la modification d'indice non linéaire est différente pour les ondes faibles et intenses* que la condition d'accord de phase (III.C-8) peut être vérifiée (puisque la norme de $\mathbf{k}$ doit être différente de celle de k_s). Ainsi, la condition (III.C-8) déterminera, à

(1) En anglais : "distributed feedback".

(2) La modification d'indice décrite par l'Eq. (III.C-7) reste en effet valide pour un champ de direction quelconque.

paramètres lasers fixés (fréquence et intensité), une valeur de l'angle entre pompes et sonde pour que le champ de direction $\mathbf{k}_{réac}$ soit rayonné par le milieu⁽¹⁾.

FIG. III.C-6 : Disposition des vecteurs d'onde. (a) Dans le cas général. (b) Dans le cas où il y a accord de phase (condition (III.C-8) vérifiée).

Considérons plus précisément l'origine d'un tel effet, qui porte le nom de réaction distribuée. D'après les Eqs (III.C-1), (III.C-2) et (III.C-4), $\mathcal{P}_{réac}$ a pour expression :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_{réac} &= \epsilon_0 \chi^{(3)} \left[(\mathcal{E}_s \mathcal{E}^*) \mathcal{E}' + (\mathcal{E}' \mathcal{E}^*) \mathcal{E}_s \right] \\ &= 2\epsilon_0 \chi^{(3)} (\mathcal{E}' \mathcal{E}^*) \mathcal{E}_s \end{aligned} \quad (\text{III.C-9})$$

FIG. III.C-7 : Représentation schématique des processus quantiques correspondant aux deux termes de l'Eq. (III.C-9). L'onde $E_{réac}$ est représentée par un trait gris pointillé.

Le premier terme de la première ligne de l'Eq. (III.C-9), associé au diagramme de la Fig. III.C-7(a), correspond à la diffraction vers l'avant de l'onde pompe E' sur le réseau d'indice induit sous l'action combinée

(1) En fait, il n'existe pas toujours de valeurs de l'angle telle que la condition (III.C-8) soit vérifiée. Celle-ci implique en effet que la norme de $\mathbf{k}$ soit inférieure à celle de k_s , ce qui suppose une condition supplémentaire sur le signe de $\chi^{(3)}$.

de l'onde sonde et de l'onde pompe E , et qui est modulé spatialement (avec une périodicité grande devant λ_0), et temporellement (à la fréquence δ). Le second terme de l'Eq. (III.C-9) correspond quant à lui à la diffraction vers l'arrière du faisceau sonde sur le réseau d'indice associé à l'onde stationnaire obtenue par superposition des deux ondes pompes, et qui est modulé spatialement avec une périodicité de l'ordre de $\lambda_0/2$ [diagramme de la Fig. III.C-7(b)].

d. Conjugaison de phase vers l'avant

La composante de polarisation $\mathcal{P}_{cp,av}$ rayonne un champ de fréquence $2\omega - \omega_s$ (non présent initialement dans le milieu), et de vecteur d'onde $2\mathbf{k} - \mathbf{k}_s \mathbf{e}_z$, opposé à celui associé à la composante de polarisation $\mathcal{P}_{réac}$. Comme au paragraphe précédent, l'émission d'un tel champ est sujette à la condition d'accord de phase :

$$|k_s| = |2k - k_s \mathbf{e}_z| \quad (\text{III.C-10})$$

non automatiquement satisfaite, mais qui peut l'être en raison de la différence de modification (non linéaire) d'indice pour les ondes faibles et intenses.

FIG. III.C-8 : Représentation schématique du processus de conjugaison de phase vers l'avant. L'onde conjuguée de phase est représentée par un trait gris pointillé. On notera que l'onde pompe E ne participe pas au processus.

D'après les Eqs (III.C-1), (III.C-2) et (III.C-4), $\mathcal{P}_{cp,av}$ a pour expression :

$$\mathcal{P}_{cp,av} = \epsilon_0 \chi^{(3)} (\mathcal{E} \mathcal{E}_s^*) \mathcal{E} \quad (\text{III.C-11})$$

Cette composante est proportionnelle à $\mathcal{E}_s^*$, c'est-à-dire au complexe conjugué de $\mathcal{E}_s$. L'onde à laquelle $\mathcal{P}_{cp,av}$ donne naissance apparaît donc comme ayant une *phase conjuguée de celle de l'onde incidente*, et se propageant dans une direction proche de celle de l'onde sonde. Ceci est à l'origine du terme "conjugaison de phase vers l'avant" adopté pour décrire cette situation. Le processus physique sous-tendu par l'expression (III.C-11) est représenté sur le diagramme de la Fig. III.C-8, et correspond à la diffraction de l'onde pompe E sur le réseau d'indice créé par l'interférence de l'onde sonde avec E (réseau modulé spatialement et temporellement). On pourra noter sur l'Eq. (III.C-11) que le mécanisme de conjugaison de phase vers l'avant implique en fait uniquement l'onde pompe se propageant dans une direction proche de celle de l'onde sonde. Il s'agit donc d'un mécanisme observable en présence d'une seule onde pompe, c'est-à-dire dans la géométrie d'interaction considérée au §III.B.

e. Conjugaison de phase vers l'arrière

La composante de polarisation $\mathcal{P}_{cp,ar}$ dont l'expression est :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_{cp,ar} &= \epsilon_0 \chi^{(3)} \left[(\mathcal{E} \mathcal{E}_s^*) \mathcal{E}' + (\mathcal{E}' \mathcal{E}_s^*) \mathcal{E} \right] \\ &= 2\epsilon_0 \chi^{(3)} (\mathcal{E} \mathcal{E}') \mathcal{E}_s^* \end{aligned} \quad (\text{III.C-12})$$

présente une grande analogie avec la composante $\mathcal{P}_{cp,av}$ discutée précédemment. Elle est en particulier proportionnelle au complexe conjugué de $\mathcal{E}_s$. Elle s'en différencie toutefois par deux points essentiels :

- ♦ L'onde associée se propage dans la direction *opposée* à celle de l'onde sonde (d'où le nom de conjugaison de phase vers l'arrière).

- ◆ Le processus de conjugaison de phase vers l'arrière satisfait automatiquement la condition d'accord de phase dès lors que la différence de fréquence δ entre pompe et sonde est suffisamment faible (plus précisément, il faut vérifier $\delta \ll c/2L$, où L est la longueur de la zone d'interaction entre champs et milieu non linéaire⁽¹⁾).

FIG. III.C-9 : Représentation schématisée des processus quantiques impliqués dans le phénomène de conjugaison de phase vers l'arrière [voir Eq. (III.C-12)]. L'onde conjuguée de phase est représentée par un trait gris pointillé. On notera que les deux ondes pompes participent au processus.

Pour cette dernière raison, le mécanisme de conjugaison de phase vers l'arrière est beaucoup plus général et facile à observer que le processus de conjugaison de phase vers l'avant. Comme le montre l'Eq. (III.C-12), ce mécanisme est lié à la diffraction d'une onde pompe sur le réseau d'indice (modulé temporellement et spatialement) induit par l'onde sonde et l'autre onde pompe (voir également la Fig. III.C-9). A la différence du processus de conjugaison de phase vers l'avant, les deux ondes pompes sont ici impliquées. En fait, le processus de conjugaison de phase vers l'arrière possède des caractéristiques très originales qui permettent de fonder de grands espoirs quant à ses applications futures. Nous allons en donner un aperçu en présentant dans le paragraphe suivant l'un des dispositifs les plus étonnants basés sur ce phénomène.

2. Les miroirs à conjugaison de phase

Comme nous l'avons montré au paragraphe précédent, l'interaction d'un milieu Kerr avec deux ondes lasers pompes intenses et une onde sonde de faible intensité induit dans le milieu une composante de polarisation $\mathcal{P}_{cp,ar}$ rayonnant un champ "conjugué de phase" E_c de fréquence $2\omega - \omega_s$, et se propageant dans la direction opposée à celle de l'onde sonde E_s . Nous présentons ici l'illustration la plus populaire de ce phénomène : le miroir à conjugaison de phase, qui renvoie un rayon lumineux exactement dans la direction opposée à la direction incidente (et non pas dans la direction symétrique par rapport à la normale, comme le prévoit la loi de Descartes). Parmi les nombreux processus physiques permettant de réaliser de tels miroirs (effet Raman stimulé, effet Brillouin stimulé, effet photoréfractif...), nous ne décrivons ici que les miroirs basés sur le mélange à quatre ondes dégénéré⁽²⁾ dans un milieu Kerr, correspondant à la situation étudiée précédemment dans le cas particulier $\omega_s = \omega$ ($\delta = 0$). Le champ conjugué de phase sera donc rayonné dans la direction exactement opposée à celle de l'onde sonde (voir Fig. III.C-10), et la condition d'accord de phase sera rigoureusement vérifiée (le vecteur d'onde de la composante de polarisation $\mathcal{P}_{cp,ar}$ étant égal à $-k_s \mathbf{e}_z$).

- (1) La différence d'indice de réfraction du milieu aux fréquences ω_s et $2\omega - \omega_s$ peut également conduire à la satisfaction de la condition d'accord de phase.
- (2) Historiquement, la conjugaison de phase fut observée pour la première fois en 1972 par Boris Zel'dovich et ses collaborateurs. Cette expérience, réalisée par diffusion Brillouin stimulée, ne suscita pas de réactions, à l'époque, dans la communauté scientifique. Il fallut attendre que Robert Hellwarth et Amon Yariv suggèrent en 1977 l'utilisation d'un autre mécanisme (le mélange à quatre ondes) pour réaliser des miroirs à conjugaison de phase, pour que le sujet prenne réellement son essor. Le domaine de recherche se développa alors très vite, le nombre d'articles originaux se chiffrant par centaines chaque année.

FIG. III.C-10 : Conjugaison de phase par mélange dégénéré à quatre ondes. La direction de l'onde conjuguée de phase est rigoureusement opposée à celle de l'onde sonde.

a. Conjugaison de phase et renversement du temps

FIG. III.C-11 : Déformation d'un front d'onde initialement plan (a) après traversée dans un milieu inhomogène (b). L'action du miroir à conjugaison de phase renverse le sens de propagation des rayons en conservant le front d'onde (c). D'après la loi du retour inverse de la lumière, le faisceau réfléchi possède un front d'onde à nouveau plan après traversée du milieu optique inhomogène.

Considérons l'expression décrivant la propagation spatio-temporelle du champ sonde :

$$E_s(z, t) = E_s \exp(-i\omega t + ikz) + c.c. \quad (\text{III.C-13})$$

et supposons que l'on renverse le sens du temps. Le champ obtenu :

$$E_s(z, -t) = E_s \exp(i\omega t + ikz) + c.c. \quad (\text{III.C-14})$$

à la même dépendance spatio-temporelle que le champ de l'onde conjuguée $E_c(z, t)$ générée par la composante de polarisation $\mathcal{P}_{cp,ar}$ [Eq. (III.C-4)]. Il en résulte que l'action du milieu créant l'onde conjuguée peut être décrite

comme un renversement du sens du temps pour l'onde sonde incidente⁽¹⁾. Ainsi, l'onde conjuguée va-t-elle suivre exactement le même trajet que l'onde incidente, mais en sens inverse.

Pour illustrer cette propriété, considérons la propagation d'une onde incidente initialement plane [Fig. III.C-11(a)] à travers un milieu déformant (objet O de la Fig. III.C-11), puis réfléchi sur un milieu conjuguant la phase (appelé *miroir à conjugaison de phase*). Après traversée de O, le front d'onde est déformé puisque les chemins optiques suivis par les divers rayons lumineux dans le milieu O sont différents [Fig. III.C-11(b)]. L'action du miroir à conjugaison de phase étant analogue à un renversement du sens du temps, nous obtenons après réflexion [Fig. III.C-11(c)] un front d'onde identique au front d'onde incident de la Fig. III.C-11(b). L'application de la loi du retour inverse de la lumière montre alors que le front d'onde réfléchi est à nouveau plan après une seconde traversée du milieu déformant [Fig. III.C-11(d)]. Si nous remplaçons le milieu conjuguant la phase de la Fig. III.C-11 par un *miroir normal*, il n'y a pas, bien entendu, rectification du front d'onde. Bien au contraire, la déformation est augmentée après un second passage dans le milieu déformant (voir Fig. III.C-12).

FIG. III.C-12 : Réflexion d'un front d'onde déformé sur un miroir normal. Les diverses étapes (a-d) peuvent être comparées avec les étapes similaires obtenues dans le cas de la réflexion sur un miroir à conjugaison de phase (Fig. III.C-11).

Montrons à présent brièvement comment la rectification des fronts d'onde par un miroir à conjugaison de phase peut être utilisée en pratique. De telles corrections de front d'onde trouvent des applications naturelles lorsque des rayonnements électromagnétiques doivent se propager sur de grandes distances dans l'atmosphère.

(1) C'est la raison pour laquelle on parle parfois de "miroirs à remonter le temps" pour décrire (de façon médiatique) les propriétés de ces systèmes générant une onde conjuguée. Une telle dénomination est toutefois inexacte pour une onde non monochromatique, puisque les diverses composantes de Fourier ne sont pas réfléchies de la même façon par le milieu conjuguant la phase (à cause de la dépendance de la susceptibilité non linéaire avec ω).

En effet, à cause des *fluctuations de densité de l'air*, l'atmosphère se comporte comme un milieu déformant (et qui plus est, les déformations de front d'onde fluctuent dans le temps⁽¹⁾). Ainsi, un faisceau laser ayant une distribution transverse d'intensité de forme gaussienne, et possédant la symétrie cylindrique à la sortie du laser, perd ces propriétés au fur et à mesure de sa propagation dans l'atmosphère. Il s'ensuit que la qualité du faisceau se dégrade assez rapidement. Si le faisceau est réfléchi sur lui-même par un miroir normal, la détérioration de la qualité sera encore amplifiée sur le chemin retour, et l'émetteur réceptionnera un faisceau réfléchi très perturbé. Ceci est préjudiciable à la qualité des communications entre deux stations éloignées. Une façon de résoudre ce problème serait de remplacer le miroir normal par un miroir à conjugaison de phase. Dans ce cas, les rayons lumineux réfléchis suivraient le même chemin que les rayons incidents⁽²⁾ et le faisceau retour serait *automatiquement ciblé* sur la station émettrice (le transfert d'information entre les deux stations pouvant se faire, par exemple, en modulant l'intensité du faisceau réfléchi).

Ce type de propriétés peut trouver des applications dans la communication entre deux stations terrestres, ou entre station terrestre et satellite. Des applications, moins pacifiques, ont également été suggérées pour la destruction des missiles ou des aéronefs. En effet, tout rayon lumineux diffusé par un missile retrouvera le chemin menant à celui-ci s'il est réfléchi par un miroir à conjugaison de phase. Si l'on place devant un tel miroir un milieu amplificateur, le faisceau réfléchi pourrait être suffisamment intense pour endommager le missile, et le neutraliser. Il convient toutefois de préciser que même si certaines expériences de démonstration ont bien fonctionné, un tel usage des miroirs à conjugaison de phase relève encore du scénario de science-fiction. Plus généralement, la raison essentielle du retard pris par les applications des miroirs à conjugaison de phase est l'absence sur le marché de matériaux possédant simultanément les propriétés requises de rapidité, de fortes non-linéarités et d'achromaticité⁽³⁾. On notera toutefois la très récente apparition de miroirs à conjugaison de phase dans des lasers commerciaux où les propriétés de rectification de fronts d'onde sont exploitées pour s'affranchir du phénomène de lentille thermique se produisant en régime de forte intensité dans les barreaux amplificateurs.

b. Coefficient de réflexion - Amplification par conjugaison de phase

Une autre propriété importante des miroirs à conjugaison de phase est qu'ils peuvent avoir des *coefficients de réflexion supérieurs à 100%*. Ces miroirs ont donc l'intérêt supplémentaire de pouvoir fonctionner en *régime amplificateur*. Nous montrons à présent comment se calcule ce coefficient de réflexion.

i. Equation des ondes

Nous supposons que les deux ondes pompes E et E^* ont même intensité, et que leur propagation dans le milieu Kerr n'est pas perturbée par la présence des ondes faibles E_s et E_c . En particulier, l'amplitude de E et E^* est supposée constante dans le milieu. Pour déterminer l'évolution des ondes E_s et E_c dans le milieu non linéaire, il faut alors résoudre un système de deux équations couplées du type de l'Eq. (I.B-26), l'une relative au champ se propageant dans la direction $+z$ (E_s), et l'autre relative au champ se propageant dans la direction opposée (E_c). En particulier, l'équation relative au champ conjugué :

$$E_c(z, t) = \mathcal{E}_c \exp(-i\omega t - ikz) + c.c. \quad (\text{III.C-15})$$

s'écrit :

$$\partial_z \mathcal{E}_c = -iK \mathcal{E}_s^* \quad (\text{III.C-16})$$

où K se déduit des Eqs (I.B-26) et (III.C-12) :

$$K = \frac{\omega}{n_0 c} \chi^{(3)} \mathcal{E} \mathcal{E}^* \quad (\text{III.C-17})$$

avec n_0 l'indice de réfraction linéaire du milieu Kerr à la fréquence ω [voir Eq. (III.A-2)].

(1) Une manifestation bien connue de ce phénomène est le scintillement des étoiles.

(2) Il faut, bien entendu, que le temps mis par la lumière pour faire un aller-retour soit petit devant le temps d'évolution des fluctuations du milieu matériel traversé.

(3) On trouvera plus de détails sur les applications des miroirs à conjugaison de phase dans les articles de vulgarisation [Shkunov 85], [Pepper 86], [Grynberg 89]. Des informations complémentaires pourront être trouvées dans les articles de synthèse [Pepper 85] et [Boyd-Grynberg 92]. On se reportera également au cours de J.-L. Ayrat dans ce volume.

ii. Cas des faibles réflectivités

Tant que $|\mathcal{E}_c| \ll |\mathcal{E}_s|$, il est possible de résoudre l'Eq. (III.C-16) en supposant le second membre constant, et en imposant la condition aux limites :

$$\mathcal{E}_c(L) = 0 \quad (\text{III.C-18})$$

exprimant qu'aucun champ n'entre par l'arrière du milieu (de longueur L) dans la direction $-z$. La solution de l'Eq. (III.C-16) est alors :

$$\mathcal{E}_c(z) = -iK(z-L)\mathcal{E}_s^* \quad (\text{III.C-19})$$

pour $0 \leq z \leq L$. En particulier, on peut en déduire le coefficient de réflexion (en intensité) défini comme le rapport des intensités entre le champ conjugué et le champ sonde dans le plan $z = 0$, en d'autres termes le champ conjugué *sortant* du milieu et le champ sonde *y entrant*. On trouve ainsi :

$$R_r = \frac{|\mathcal{E}_c(0)|^2}{|\mathcal{E}_s(0)|^2} = |KL|^2 \quad (\text{III.C-20})$$

iii. Cas des fortes réflectivités : solution exacte

Dès que la non-linéarité ou la longueur du milieu est suffisante pour que R_r s'approche de 1, il n'est plus possible de considérer $\mathcal{E}_s^*$ comme une constante au second membre de l'Eq. (III.C-16). Il faut alors considérer l'ensemble du système d'équations couplées pour $\mathcal{E}_c$ et $\mathcal{E}_s$. Le terme source de l'équation d'évolution (I.B-26) de l'enveloppe $\mathcal{E}_s$ est proportionnel à la composante de polarisation $\mathcal{P}_s = 2\varepsilon_0\chi^{(3)}\mathcal{E}\mathcal{E}'\mathcal{E}_c^*$ (et donc au conjugué de l'onde conjuguée), ce qui conduit à l'équation suivante pour le champ sonde $\mathcal{E}_s$:

$$\partial_z \mathcal{E}_s = +iK \mathcal{E}_c^* \quad (\text{III.C-21})$$

Le complexe conjugué de l'Eq. (III.C-21) et l'Eq. (III.C-16) constituent alors un système de deux équations différentielles linéaires couplées⁽¹⁾ :

$$\begin{cases} \partial_z \mathcal{E}_s^* = -iK^* \mathcal{E}_c \\ \partial_z \mathcal{E}_c = -iK \mathcal{E}_s^* \end{cases} \quad (\text{III.C-22})$$

avec conditions aux limites :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_s(0) = \mathcal{E}_{s,0} \\ \mathcal{E}_c(L) = 0 \end{cases} \quad (\text{III.C-23})$$

La résolution du système (III.C-22) ne présente aucune difficulté. Il admet comme solution dans l'intervalle $0 \leq z \leq L$:

$$\begin{cases} \mathcal{E}_s^*(z) = \mathcal{E}_{s,0}^* \frac{\cos[|K|(z-L)]}{\cos[|K|L]} \\ \mathcal{E}_c(z) = -i \frac{K}{|K|} \mathcal{E}_{s,0}^* \frac{\sin[|K|(z-L)]}{\cos[|K|L]} \end{cases} \quad (\text{III.C-24})$$

La valeur du coefficient de réflexion (en intensité) du miroir à conjugaison de phase défini comme en (III.C-20) vaut alors :

$$R_r = \tan^2(|K|L) \quad (\text{III.C-25})$$

Ce coefficient est donc plus grand que 1 lorsque $|K|L$ est compris entre $\pi/4$ et $\pi/2$. *Le faisceau réfléchi est alors plus intense que le faisceau incident.* Lorsque $|K|L$ s'approche de la valeur $\pi/2$, le coefficient de réflexion tend même vers l'infini ! Ce résultat (non physique) est lié à notre hypothèse sur la constance des amplitudes des ondes pompes dans le milieu. En fait, lorsque R_r devient grand, les ondes sonde et conjuguée peuvent avoir une amplitude comparable à celle des ondes pompes, et donc modifier leur propagation. Pour trouver la solution du problème dans ce cas, il faut résoudre un système de quatre équations différentielles non linéaires couplées, puisque l'amplitude des ondes pompes est dans ce cas fonction de z . La résolution complète de ce système

(1) Le fait que les Eqs (III.C-22) soient *linéaires* provient de l'hypothèse selon laquelle l'amplitude des ondes pompes n'est pas affectée par le processus de conjugaison de phase (voir §I.B.4.c).

montre que R_c peut effectivement devenir très grand lorsque $|K|L$ s'approche de $\pi/2$, et des valeurs voisines de 1000 ont été observées expérimentalement.

Un autre phénomène intéressant est que l'apparition de l'onde conjuguée s'accompagne d'une *amplification de l'onde sonde*. En effet, d'après l'Eq. (III.C-24), l'onde sonde à la sortie du milieu non linéaire (dans le plan $z = L$) a pour amplitude :

$$E_s(L) = \frac{E_{s,0}}{\cos(|K|L)} \quad (\text{III.C-26})$$

de sorte que le coefficient de transmission T_s en intensité pour l'onde sonde est égal à :

$$T_s = \frac{1}{\cos^2(|K|L)} \quad (\text{III.C-27})$$

qui est évidemment plus grand que 1. Il est intéressant de noter, en combinant les Eqs (III.C-25) et (III.C-27), que l'on a :

$$T_s - R_c = 1 \quad (\text{III.C-28})$$

Cette relation signifie que *la différence entre les intensités des ondes sonde et conjuguée est indépendante de L*, et coïncide avec l'intensité de l'onde sonde à l'entrée du milieu. L'accroissement de l'intensité de l'onde sonde est donc égal à l'intensité de l'onde conjuguée. En d'autres termes, *le processus physique crée autant de photons dans l'onde sonde que dans l'onde conjuguée*. Ceci est en fait naturel au vu de la Fig. III.C-9 décrivant la conjugaison de phase comme un processus d'absorption d'un photon dans chacune des ondes pompes, et d'émission d'un photon dans les ondes E_s et E_c .

D. Résumé des points importants

- ◆ La non-linéarité d'ordre 3 est la non-linéarité d'ordre le plus bas se manifestant dans un milieu possédant la symétrie d'inversion.
- ◆ Elle donne lieu à l'effet de génération de troisième harmonique, ainsi qu'à des effets de mélange d'ondes analogues.
- ◆ L'un des effets non linéaires d'ordre 3 les plus importants est l'effet Kerr optique, décrivant la proportionnalité de l'indice de réfraction d'un matériau avec l'intensité du champ laser le traversant. Cet effet est impliqué dans des processus très importants du point de vue pratique, tels que l'auto-focalisation, l'auto-modulation de phase et de fréquence, la propagation sans déformation des solitons (pour une discussion de ces effets, voir les cours de A. Brun et D. Hulin dans ce volume), le mélange à quatre ondes, etc... L'effet Kerr optique joue également un rôle central dans tous les dispositifs de commutation et de traitement du signal "tout optiques". L'exemple type en est une cavité Fabry-Perot remplie par un milieu Kerr. Celle-ci peut se comporter comme un véritable transistor optique, et donner lieu à un phénomène de bistabilité optique que l'on peut espérer un jour exploiter pour fabriquer des mémoires optiques.
- ◆ La spectroscopie non linéaire donne accès à des informations sur la matière qu'il est souvent impossible d'obtenir par d'autres moyens. Parmi les techniques spectroscopiques en absorption, la spectroscopie non linéaire à deux photons sans effet Doppler, ainsi que l'absorption saturée, jouent un rôle de tout premier plan dans le domaine de la métrologie des fréquences (voir le cours de C. Chardonnet dans ce volume). La spectroscopie non linéaire en transmission repose sur les processus de diffusion stimulée. L'effet Raman stimulé se produit entre niveaux de molécules ou d'atomes ayant des énergies et des populations différentes. Elle donne des informations sur la structure des niveaux et leurs facteurs d'occupation. La diffusion Brillouin stimulée correspond à la diffusion de la lumière par les fluctuations de densité associées aux ondes acoustiques se propageant dans les solides, les liquides ou les gaz. Elle donne des informations sur la vitesse et la dynamique de propagation du son dans les matériaux. Il s'agit du processus de diffusion stimulée donnant lieu aux gains les plus importants. La diffusion Rayleigh stimulée, ou mélange à deux ondes, est liée à la diffusion de la lumière par des modulations lentes et non propagatives de certaines observables du milieu sous l'effet des ondes incidentes. Elle donne

généralement des informations de nature dynamique sur les phénomènes de relaxation se produisant dans le matériau.

- ◆ Le mélange à quatre ondes occupe une place privilégiée parmi les effets non linéaires d'ordre 3, par la richesse des processus auxquels il donne lieu, et notamment le plus célèbre d'entre eux : la conjugaison de phase. Ce processus permet de réaliser des miroirs capables de rectifier la courbure des fronts d'onde après propagation dans un milieu inhomogène. Ces miroirs à conjugaison de phase, qui peuvent posséder des coefficients de réflexion très largement supérieurs à 100%, sont aujourd'hui utilisés pour améliorer les performances de certains lasers de puissance. Le processus de conjugaison de phase peut également se manifester dans les milieux Raman ou Brillouin, ainsi que dans les matériaux photoréfractifs. L'intérêt majeur de ces milieux est qu'ils permettent de réaliser des miroirs à conjugaison de phase "auto-pompés", ne nécessitant pas deux ondes pompes pour alimenter constamment le miroir. Le prix à payer est que ces miroirs possèdent des coefficients de réflexion inférieurs à 100%, que l'onde conjuguée de phase est de fréquence différente de celle de l'onde incidente, et qu'ils ne fonctionnent qu'au-delà d'une intensité incidente seuil (pour ces questions, voir le cours de J.-L. Ayrat dans ce volume).

IV. Conclusion : Quelques récents développements en optique non linéaire

La plupart des processus non linéaires que nous avons présentés dans ce cours ont été observés et interprétés au cours des années 60-70, c'est-à-dire dès les débuts de l'optique non linéaire. Cela pourrait laisser l'impression que malgré les améliorations constantes des techniques et des matériaux, qui permettent d'augmenter sans cesse la performance des systèmes, l'optique non linéaire est aujourd'hui une discipline ayant perdu quelque peu son "piment", car peu susceptible de donner lieu à de nouvelles découvertes. Nous ne pouvons donc pas conclure ce cours sans donner quelques exemples des développements les plus récents de ce domaine de recherche, et dont l'originalité et la nouveauté illustrent bien le capital de surprises et l'étendue des défis posés à la sagacité des chercheurs que recèle aujourd'hui encore l'optique non linéaire.

A. Les instabilités transverses et la turbulence optique

La formation de structures organisées par brisures spontanées de symétrie est l'une des caractéristiques les plus fascinantes des systèmes dynamiques non linéaires. L'un des exemples les plus connus de morphogénèse spontanée est l'instabilité de Rayleigh-Bénard se traduisant par l'apparition dans un fluide d'un réseau de cellules de convection pouvant prendre selon les conditions la forme de rouleaux ou d'hexagones. Si de telles études sont menées depuis de nombreuses années dans plusieurs branches de la Physique, et en particulier en hydrodynamique, leur apparition en optique non linéaire est beaucoup plus récente, et constitue aujourd'hui un domaine de recherche très actif. La morphogénèse en optique non linéaire se traduit par l'apparition sur le profil transverse des faisceaux lasers de structures régulières, voire de tourbillons ou d'autre défauts topologiques tels que des dislocations. A plus fortes non-linéarités, ces structures peuvent évoluer jusqu'à la turbulence (optique). Les premières expériences effectuées dans les années 1980 ont essentiellement porté sur l'étude de la morphogénèse dans les cavités lasers, et ont principalement consisté en la redécouverte de phénomènes hydrodynamiques bien connus. Il a même été démontré que dans certaines conditions, les équations dynamiques du laser étaient équivalentes à celles de l'hydrodynamique⁽¹⁾.

L'étude des instabilités transverses dans les systèmes passifs est, elle, plus récente. Les trois systèmes les plus étudiés sont :

- ◆ Une cavité Fabry-Perot remplie d'un milieu non linéaire, et traversée par une onde laser. Le dispositif expérimental correspondant est identique à celui de la Fig. III.A-3. Dans un tel système, le phénomène de contre-réaction nécessaire à l'apparition des instabilités est dû aux miroirs du Fabry-Perot qui renvoient le champ sur lui-même. Un tel système donne lieu à un phénomène de brisure spontanée de la symétrie

(1) Pour les instabilités transverses dans les lasers, voir par exemple [Green 90] et [Brambilla 91].

cylindrique du faisceau laser incident, avec génération d'un champ ayant une structure transverse de type rouleau ou hexagone (voir par exemple [Lugiato 87] et [Firth 92]).

- ◆ Un milieu Kerr interagissant avec deux faisceaux lasers de mêmes polarisation et fréquence, mais se propageant en sens opposés. Le dispositif expérimental est identique à celui de la Fig. III.C-1, mais sans onde sonde [voir Fig. C-1(a)]. Les instabilités spatiales sont dues aux processus de mélange à quatre ondes étudiés au §III.C, les champs sonde, conjugués de phase vers l'avant et l'arrière, et de réaction distribuée étant générés spontanément et simultanément sous l'effet d'une instabilité se produisant dans le milieu Kerr au-delà d'un certain seuil d'intensité des faisceaux lasers incidents. Le mécanisme de contre-réaction impliqué dans l'instabilité est lié aux processus de conjugaison de phase vers l'arrière et de réaction distribuée. Les instabilités spatiales se manifestent par l'émission d'un cône de lumière autour des faisceaux lasers incidents. Selon les paramètres expérimentaux (intensité et fréquence lasers), le profil transverse de ce champ peut prendre des allures diverses, comme montré sur la Fig. C-1(b) (pour une approche théorique simple d'un tel système, voir [Courtois 92]).

FIG. C-1 : (a) Représentation schématique d'une expérience de morphogénèse dans un système passif constitué d'un milieu Kerr traversé par deux ondes lasers (en noir) se propageant en sens opposés. L'instabilité transverse (en gris) est observée au moyen d'un écran. (b) Allures caractéristiques du profil transverse de l'instabilité selon la valeur des paramètres lasers (fréquence et intensité) (d'après [Petrossian 92]).

- ◆ Un faisceau laser interagissant avec un système constitué d'un milieu non linéaire et d'un miroir de renvoi (responsable de la contre-réaction). Le schéma expérimental d'une telle expérience est représenté sur la Fig. C-2(a). Comparé au cas précédent, un tel système présente l'avantage de la simplicité, tant sur le plan théorique qu'expérimental. La possibilité de faire varier la distance entre le milieu non linéaire et le miroir donne en particulier un degré de liberté supplémentaire, qui permet de comparer aisément les modèles théoriques aux expériences. Lorsque le milieu non linéaire est assimilable à un milieu Kerr, les instabilités transverses observées sont analogues, tant sur le plan théorique qu'expérimental, à celles de la

Fig. C-1(b). Ceci montre la très grande universalité des instabilités spatiales se produisant dans un milieu Kerr, quels que soient les détails du montage expérimental. Toutefois, une expérience récente [Grynberg 94] a montré que lorsque la non-linéarité du milieu diffère fortement du type Kerr, de nouveaux motifs transverses ayant la forme de fleurs à très grand nombre de pétales peuvent apparaître (voir Fig. C-2(b)).

FIG. C-2 : (a) Représentation schématique d'une expérience de morphogénèse dans un système passif constitué d'un milieu non linéaire et d'un miroir de couplage. Le faisceau laser incident (en noir) donne naissance à une instabilité transverse (en gris), qui est observée sur un écran situé à l'arrière du miroir partiellement transmettant. (b) Allures caractéristiques du profil transverse de l'instabilité selon la valeur des paramètres (fréquence et intensité lasers, distance milieu non linéaire-miroir) (d'après [Grynberg 94]).

Comme le montre la dernière expérience discutée ici, le domaine de recherche que constituent les instabilités transverses en optique non linéaire semble aujourd'hui atteindre sa pleine maturité. Après une période euphorique où, il faut bien l'avouer, seuls des phénomènes proches de ceux connus et largement étudiés en hydrodynamique ont été mis en évidence, sans faire véritablement progresser la compréhension de la morphogénèse, l'optique non linéaire commence à affirmer aujourd'hui ses spécificités. Or celles-ci sont nombreuses, et porteuses de futures découvertes originales. Par exemple :

- ◆ La lumière possède des caractéristiques quantiques qui doivent se traduire au niveau des instabilités (voir par exemple [Grynberg 93b]).
- ◆ Le champ électrique est intrinsèquement de nature vectorielle. Les instabilités liées à la polarisation du champ peuvent donc être d'un type nouveau.
- ◆ Le phénomène de conjugaison de phase fait apparaître dans le couplage non linéaire des termes proportionnels aux complexes conjugués des champs, ce qui n'a pas d'analogue naturel en hydrodynamique. Or, il est connu en théorie des équations aux dérivées partielles que des équations où figurent simultanément un champ et son complexe conjugué ont des propriétés très originales (et d'ailleurs mal connues). On peut donc ici également attendre des instabilités d'un type nouveau.

- ♦ La variété des milieux non linéaires, et la plage de puissance et d'accordabilité des lasers font de l'optique une discipline privilégiée pour l'étude de la morphogénèse. Comme aucune autre branche de la physique, l'optique non linéaire permet en effet de réaliser des expériences *simples et rapides* (les temps de réponse des milieux optiques non linéaires étant considérablement plus courts que ceux des systèmes hydrodynamiques), tout en bénéficiant d'une très vaste gamme d'intensités et de types de non-linéarités. Sa place ne pourra toutefois s'affirmer qu'à la condition de développer des méthodes de diagnostic aussi performantes que la vélocimétrie laser utilisée en hydrodynamique, notamment pour l'étude des instabilités à l'intérieur même du milieu non linéaire. Il serait également souhaitable que les physiciens de l'optique non linéaire prennent pleinement conscience des enjeux et des expériences pouvant faire véritablement avancer les connaissances dans ce domaine si fascinant et esthétique de la morphogénèse spontanée.

B. Génération d'harmoniques d'ordre très élevé dans les gaz

La possibilité de réaliser la génération d'harmoniques (impaires) dans les gaz a été identifiée dès les années 70. Toutefois, jusqu'à une époque très récente, les lasers disponibles ne permettaient d'observer que les harmoniques d'ordre peu élevé (typiquement 3, 5, 7, voire 9). Pour disposer d'une source de rayonnement cohérent de longueur d'onde aussi courte que possible, les lasers utilisés devaient donc être choisis eux-mêmes de longueur d'onde courte. Cette situation a été totalement bouleversée à la fin des années 80, lorsque deux équipes de Chicago et Saclay ont observé la génération d'harmoniques d'ordre considérablement élevé (jusqu'à 135 fois la fréquence initiale !), en utilisant des lasers très intenses et de courte durée d'impulsion, le phénomène étant (autre caractéristique inattendue) d'autant plus efficace que la longueur d'onde du laser est grande. De plus, contrairement aux idées intuitives basées sur la théorie des perturbations, la distribution en intensité des harmoniques observées ne décroît pas avec l'ordre du processus [L'Huillier 92], mais reste constante sur un large domaine spectral (elle présente une forme de plateau), puis décroît brutalement à partir d'une certaine fréquence de coupure.

FIG. C-3 : Dispositif expérimental pour la détection des harmoniques d'ordre très élevé générées par interaction d'un laser intense avec un jet de gaz (d'après [L'Huillier 93]).

Le dispositif expérimental utilisé dans ces expériences est représenté sur la Fig. C-3. Le rayonnement produit dans l'axe de propagation du laser est analysé à l'aide d'un couple miroir torique-réseau plan, qui permet à la fois de refocaliser spatialement le rayonnement, et de le disperser spectralement. Les harmoniques ainsi séparées sont détectées par un multiplicateur d'électrons secondaires, tandis que le rayonnement incident réfléchi par le réseau est piégé. La Fig. C-4 montre un résultat typique obtenu dans le cas du xénon avec un laser de type verre dopé au néodyme de durée 1 ps, de longueur d'onde 1053 nm, et d'intensité 10^{14} W/cm². Après la décroissance attendue pour les ordres 3 et 5 (dans le cadre de la théorie des perturbations), l'intensité des harmoniques reste pratiquement constante jusqu'à l'ordre 23 environ, avant de décroître à nouveau brusquement. Cette distribution caractéristique est due au fait que l'éclairement laser est suffisamment intense pour induire une réponse non

perturbative de l'atome au champ électrique (en d'autres termes, la polarisation non linéaire n'admet plus de développement en puissances du champ électrique incident).

FIG. C-4 : Spectre d'harmoniques obtenu avec un jet de xénon (d'après [Balcou 92]).

Si l'on utilise des gaz rares plus légers, comme le néon ou l'hélium, il est possible d'observer des harmoniques d'ordre encore plus élevé, et donc d'aller davantage vers les courtes longueurs d'onde. La Fig. C-5 résume les résultats obtenus sur les quatre gaz rares Xe, Ar, Ne et He. Les harmoniques d'ordre maximum observées sont respectivement la 27^e, 57^e, 135^e et 125^e (en fait, dans les deux derniers cas, cette limite est imposée par les performances du spectromètre utilisé dans les expériences).

FIG. C-5 : Spectre d'harmoniques obtenu avec un jet de Xe, Ar, Ne et He éclairé par un laser verre dopé néodyme ayant une puissance de l'ordre de 10^{13} W/cm² (d'après [L'Huillier 93]). Les quantités représentées correspondent à une estimation du nombre de photons obtenus à chaque tir laser.

L'interprétation physique de ces résultats est aujourd'hui encore en développement, mais semble s'articuler autour du scénario en trois étapes suivant [L'Huillier 93b] :

- ◆ Ionisation de l'électron par effet tunnel à travers la barrière coulombienne abaissée par le champ laser
- ◆ Accélération de l'électron dans le champ laser,
- ◆ Recombinaison vers l'état fondamental (avec émission d'un photon de grande énergie) lorsque la trajectoire classique de l'électron passe dans le voisinage du potentiel atomique.

Dans l'avenir, cette technique de génération d'harmoniques devrait permettre de disposer dans le domaine spectral des rayons X mous d'une source pulsée, cohérente, accordable, c'est-à-dire ayant toutes les caractéristiques d'un laser. Elle reste aujourd'hui un domaine de recherche très actif.

C. Réponse optique non linéaire liée aux degrés de liberté de translation des atomes

Les milieux gazeux ont de tout temps constitué un champ d'investigation privilégié de l'optique non linéaire, en raison principalement de la simplicité de leur description au niveau quantique. Tous les milieux de ce type étudiés jusqu'aux années 90 étaient caractérisés par des températures se situant entre 300 et 500 kelvins. Le développement des techniques de refroidissement d'atomes par laser jusqu'à des températures extrêmement basses (de l'ordre du microkelvin) permet de disposer aujourd'hui de milieux gazeux tout à fait originaux, dont certaines propriétés sont liées au caractère quantique du mouvement du centre de masse des atomes⁽¹⁾. A ce titre, ils constituent un champ d'investigation tout à fait nouveau pour l'optique non linéaire.

L'étude des propriétés non linéaires des atomes froids (principalement par des techniques de spectroscopie non linéaire de type pompe-sonde, voir §III.B) a débuté en 1991 et a déjà donné lieu à l'observation de nombreux phénomènes impliquant la réponse non linéaire à l'excitation laser des degrés de liberté de translation du centre de masse atomique. Nous discutons ici brièvement deux exemples de tels effets.

1. Les résonances induites par le recul

Comme nous l'avons vu au §III.B.2, l'observation de l'effet Raman stimulé nécessite l'existence de niveaux d'énergie non dégénérés possédant des populations différentes. Les situations habituellement envisagées sont celles où ces niveaux appartiennent à un spectre d'énergie *discret*. En fait, une telle propriété n'est nullement nécessaire à l'existence d'un effet Raman. Faisant suite à une prédiction théorique par [Guo 92], une expérience récente [Courtois 94] utilisant un ensemble d'atomes de césium refroidis par laser a permis d'observer un tel effet dans le cas où les niveaux d'énergie appartiennent au spectre *continu* lié à l'énergie cinétique des atomes.

Considérons une situation expérimentale semblable à celle envisagée au §III.B.2, mais pour le cas d'un atome à deux niveaux ($|a\rangle$ et $|b\rangle$) interagissant avec une onde pompe de fréquence ω et de vecteur d'onde $\mathbf{k} = k\mathbf{e}_z$, et une onde sonde de fréquence $\omega_s = \omega + \delta$ et de vecteur d'onde $\mathbf{k}_s = k\cos\theta\mathbf{e}_z + k\sin\theta\mathbf{e}_x$ (voir Fig. C-6). Deux processus ayant des effets opposés contribuent alors à la partie centrale du spectre de transmission de l'onde sonde : d'une part un mécanisme de gain associé à l'absorption d'un photon pompe suivie de l'émission stimulée d'un photon sonde, se traduisant par une modification de l'impulsion du centre de masse atomique de $\mathbf{p}$ à $\mathbf{p} + \hbar(\mathbf{k} - \mathbf{k}_s)$ (en raison de la conservation de l'impulsion totale du système {atome + champ} au cours du processus). D'autre part, un mécanisme d'absorption lié au processus inverse d'absorption d'un photon sonde suivie de l'émission stimulée d'un photon pompe, avec changement de l'impulsion atomique de $\mathbf{p} + \hbar(\mathbf{k} - \mathbf{k}_s)$ à $\mathbf{p}$. En fait, les populations $\pi[\mathbf{p}]$ et $\pi[\mathbf{p} + \hbar(\mathbf{k} - \mathbf{k}_s)]$ des classes d'impulsion initiale et finale du processus de diffusion étant généralement différentes, l'un des mécanismes de transfert de puissance entre pompe et sonde surpasse l'autre, de sorte que l'onde sonde gagne (ou perd) de l'énergie, proportionnellement à la différence de populations $\pi[\mathbf{p}] - \pi[\mathbf{p} + \hbar(\mathbf{k} - \mathbf{k}_s)]$. La somme de toutes ces processus de diffusion Raman stimulée élémentaires, moyennés sur la distribution d'impulsion atomique totale, conduit à une résonance dite "induite par le recul" au centre du spectre de transmission de l'onde sonde.

(1) Pour plus de détails, voir le cours d'Y. Castin dans ce volume.

FIG. C-6 : (a) Schéma du montage expérimental utilisé pour l'observation des résonances induites par le recul. (b) Processus Raman stimulé entre les états externes atomiques d'énergie $E = p_y^2/2M$. La population des différentes classes d'impulsion étant une fonction décroissante de $|p_y|$, l'onde sonde subit un processus de gain pour $\delta < 0$ (b), et d'absorption pour $\delta > 0$ (c).

Afin de préciser la forme d'une telle résonance, considérons le cas simple où l'angle θ entre pompe et sonde est suffisamment petit pour pouvoir négliger les termes d'ordre θ^2 . Il est alors très facile d'estimer l'allure de cette résonance. Les conditions de conservation de l'énergie et de l'impulsion pour le système (atome + champ) montrent en effet que la contribution élémentaire de chaque classe d'impulsion consiste en une résonance Raman stimulée ayant une forme de Lorentzienne, centrée en $\delta = k\theta p_y/M$ (M étant la masse atomique), et de demi-largeur γ (le taux de relaxation typique des populations des classes d'impulsion). Le coefficient d'amplification de l'onde sonde (lié à l'amplitude de la résonance du spectre de transmission) est alors proportionnel à l'voir

Eq. (III.B-6) :

$$g_s(\delta) = I \int dp_y \frac{\gamma \left[\pi(p_y) - \pi(p_y - \theta \hbar k) \right]}{\delta - \theta k p_y/M + \gamma^2} \quad (\text{C-1})$$

où I désigne l'intensité du champ pompe. Le gain de l'onde sonde apparaît comme une somme sur toutes les classes d'impulsion atomique, de résonances Raman stimulées du type de celles de la Fig. III.B-2(b). Le fait que cette somme soit en fait une intégrale provient de ce que les états initial et final des processus Raman élémentaires appartiennent à un *continuum*. Si la distribution d'impulsion atomique varie peu à l'échelle de $\theta \hbar k$ (ce qui est très généralement le cas), il est possible de remplacer la différence de populations

$\pi(p_v) - \pi(p_v - \theta \hbar k)$ par $\theta \hbar k \partial \pi(p_v) / \partial p_v$ dans l'Eq. (C-1). En supposant en outre que la distribution d'impulsion atomique suit une loi de Maxwell-Boltzmann :

$$\pi(p_v) = \pi(0) \exp(-p_v^2 / 2 M k_B T) \quad (C-2)$$

où k_B est la constante de Boltzmann, et T la température du milieu, il apparaît sur l'Eq. (C-1) que le gain de l'onde sonde est égal au produit de convolution d'une Lorentzienne de largeur $2M\gamma/k\theta$, et d'une dérivée de gaussienne de largeur $2M\bar{v}$ (où $\bar{v}$ est la vitesse quadratique moyenne des atomes). En se limitant au cas expérimental où le taux de relaxation γ vérifie $\gamma \ll k\theta\bar{v}$, il est alors possible de remplacer, dans le produit de convolution, la Lorentzienne par une distribution de Dirac. L'Eq. (C-1) se transforme alors simplement en :

$$g_s(\delta) = -\sqrt{\frac{\pi}{2}} \frac{\hbar I}{k_B T} \frac{\delta}{k\theta\bar{v}} \exp\left(-\frac{\delta^2}{2(k\theta\bar{v})^2}\right) \quad (C-3)$$

La dépendance en fréquence du gain de l'onde sonde présente donc la forme d'une *dérivée de gaussienne*, dont la demi-largeur $k\theta\bar{v}$ donne directement accès à la largeur Doppler du milieu, et donc à sa température T (Fig. C-7). Les résonances induites par le recul présentent donc des caractéristiques très différentes des structures figurant habituellement sur un spectre de transmission (voir §III.B.4).

Mentionnons pour terminer que l'interprétation de ce type de résonances en termes de processus Raman stimulés n'est en fait pas totalement univoque. Il est en effet possible de la décrire dans un autre point de vue en termes de diffusion Rayleigh stimulée sur un réseau de densité induit dans le milieu par électrostriction ! Cette ambiguïté, liée au fait que le continuum d'énergie fait intervenir les degrés de liberté *externes* de l'atome, est elle aussi très originale dans le domaine de la spectroscopie non linéaire (pour plus de détails, voir [Courtois 94]).

FIG. C-7 : Allure de la résonance induite par le recul apparaissant au centre du spectre de transmission de l'onde sonde. La forme de la résonance correspond en bonne approximation à une dérivée de gaussienne (courbe continue en trait fin).

2. Spectroscopie Raman stimulée dans les réseaux optiques

L'état gazeux de la matière est communément associé à l'image d'atomes en mouvement incessant, conférant au milieu un caractère totalement désordonné et changeant. Cette situation est aujourd'hui renouvelée par les techniques de refroidissement d'atomes par laser qui permettent de réaliser des milieux atomiques, appelés

“réseaux optiques”, à la fois ordonnés, dilués (la distance typique entre atomes étant supérieure au micron), et où les atomes liés par la lumière effectuent essentiellement un mouvement d’oscillation autour de leur position d’équilibre.

Nous présentons la façon dont un tel milieu est obtenu dans le cas simple d’une géométrie à une dimension. Nous considérons un atome dont le moment cinétique du niveau fondamental vaut $J_a = 1/2$. Celui-ci est en fait composé de 2 sous-niveaux qui sont repérés par les nombres quantiques magnétiques $m_a = -1/2$ et $m_a = +1/2$ (voir Fig. C-8). Le niveau fondamental est couplé à un niveau excité de moment cinétique $J_b = 3/2$ par un champ laser quasi-résonnant, constitué de deux faisceaux de même longueur d’onde λ , de polarisations linéaires orthogonales, et se propageant en sens opposés. La superposition de ces deux faisceaux donne naissance à une onde stationnaire dont la polarisation change en chaque point de l’espace avec une périodicité $\lambda/2$. Selon la phase relative des ondes incidentes (phase qui varie avec le point), le champ résultant est de polarisation circulaire σ^+ ou σ^- , linéaire ou elliptique (Fig. C-8). Ce champ laser a deux effets essentiels sur les sous-niveaux $m_a = +1/2$ et $m_a = -1/2$:

FIG. C-8 : Gradient d’ellipticité du champ laser, et déplacements lumineux des sous-niveaux de l’état fondamental dans le cas d’une transition atomique $J_a = 1/2 \rightarrow J_b = 3/2$. (a) Le champ électrique résulte de la superposition de deux ondes lasers se propageant en sens opposés, de même intensité, et de polarisations linéaires orthogonales. Il est caractérisé par un gradient spatial d’ellipticité de période $\lambda/2$. (b) Ce gradient d’ellipticité se traduit par une dépendance spatiale sinusoidale des déplacements lumineux des sous-niveaux de l’état fondamental, donnant lieu à des puits de potentiel dont les niveaux quantiques de vibration les plus bas sont fortement peuplés.

- ◆ Le premier consiste en une modification des populations relatives de chacun de ces niveaux, et dépend de la polarisation locale du champ (c’est l’effet de pompage optique prédit par Kastler en 1950). Notamment, en un endroit où le champ est polarisé *circulairement*, la lumière tend à “pomper” tous les atomes dans *un seul* sous-niveau ($m_a = +1/2$ si le champ est polarisé σ^+ , $m_a = -1/2$ si le champ est polarisé σ^-).
- ◆ Le deuxième effet conduit à un déplacement, généralement différent, des énergies des sous-niveaux (ce sont les déplacements lumineux découverts par Cohen-Tannoudji en 1961). L’amplitude de cet effet dépend à la fois de la polarisation locale du champ, et de la différence entre fréquence laser ω et fréquence de résonance atomique ω_A (celle-ci détermine en particulier le *sens* du déplacement des niveaux : vers le bas si $\omega < \omega_A$, vers le haut si $\omega > \omega_A$). On montre en particulier que le déplacement du sous-niveau $m_a = +1/2$ est maximal, et celui du sous-niveau $m_a = -1/2$ minimal, aux points où la lumière est polarisée σ^+ (la situation étant inversée aux points de polarisation σ^-).

L'effet combiné du pompage optique et des déplacements lumineux tend donc à accumuler les atomes dans le sous-niveau ayant le *déplacement lumineux* le plus grand. On voit en particulier que dans le cas où la fréquence laser est choisie telle que $\omega < \omega_A$ (déplacements lumineux négatifs), *les atomes seront pompés préférentiellement dans le sous-niveau ayant une énergie minimum*. En fait, la variation continue de la polarisation du champ dans l'espace va conduire à une modulation spatiale de l'énergie des sous-niveaux fondamentaux, jouant le rôle d'un *potentiel extérieur* pour les variables relatives à la position du noyau (Fig. C-8). Cette situation est semblable à celle rencontrée en physique moléculaire où c'est l'énergie électronique qui détermine le potentiel dans lequel oscillent les noyaux. Il y a cependant une différence énorme au niveau des ordres de grandeur. Dans les molécules, la profondeur des puits est déterminée par le potentiel coulombien, et correspond en unité de température à une quantité de l'ordre de 10^4 K. Généralement, la molécule est stable tant que la température environnante est petite devant cette profondeur de puits. Dans le cas des puits de potentiel induits par l'interaction entre atome et lumière, et présentés sur la Fig. C-8, la situation est toute différente puisque la profondeur des puits est de l'ordre de 10^{-4} K ! Il faut donc des températures très basses, dans le domaine du μ K, pour que les atomes puissent se piéger durablement dans de tels puits.

Le mécanisme responsable du refroidissement et du piégeage des atomes au fond de ces puits de potentiel est discuté dans le cours d'Y. Castin, et ne sera pas rappelé ici. Considérons ce qui se passe lorsqu'un atome est piégé dans un tel puits de potentiel. Classiquement, il oscille au fond du puits avec une fréquence Ω_V dépendant de la courbure du potentiel et de la masse atomique. Comme la dimension des puits de potentiel est inférieure à la longueur d'onde λ , l'amplitude des oscillations de l'atome au fond du puits peut elle-même être bien inférieure à λ . En fait, il est commode de décrire le mouvement des atomes dans le cadre de la mécanique quantique, la température étant suffisamment basse pour que seuls les niveaux d'énergie discrets les plus profonds des puits de potentiel soient occupés de manière significative. Comme pour la plupart des oscillateurs quantiques, les énergies des niveaux au voisinage du fond du puits sont données par l'expression $(n + 1/2)\hbar\Omega_V$, où n est un entier positif, et $\hbar$ est la constante de Planck. On montre qu'une fraction significative, de l'ordre du quart des atomes, peut s'accumuler dans le niveau d'énergie le plus bas ($n = 0$) dont l'extension spatiale est typiquement de l'ordre de $\lambda/30$.

La première démonstration expérimentale du mouvement oscillatoire des atomes dans le potentiel de la Fig. C-8 a été réalisée à Paris en 1992 [Verkerk 92]. Cette expérience repose sur l'observation de processus de diffusion Raman stimulée entre niveaux vibrationnels. On ajoute aux deux ondes de fréquences ω de la Fig. C-8 créant le potentiel lumineux une onde sonde de très faible intensité, dont la fréquence ω_s peut être changée continûment de part et d'autre de ω . Comme nous l'avons vu au §III.B.2, si la population du niveau vibrationnel $n = 0$ est supérieure à la population du niveau $n = 1$, un transfert résonnant de population entre ces niveaux se produit lorsque la différence entre les quanta d'énergie apportés par chaque onde est égale au quantum d'énergie de vibration, c'est-à-dire pour $|\omega - \omega_s| = \Omega_V$ (effet Raman stimulé). Lorsque $\omega - \omega_s = +\Omega_V$, il y a absorption d'énergie dans les ondes créant le potentiel lumineux, et amplification de l'onde sonde [Fig. C-9(a)]. Si $\omega - \omega_s = -\Omega_V$, c'est le phénomène inverse qui se produit (absorption de l'onde sonde) [Fig. C-9(b)]. Le spectre expérimental représentant la variation de l'intensité de l'onde sonde après transmission dans le milieu atomique montre effectivement l'existence d'une amplification résonnante pour $\omega - \omega_s = \Omega_V$, et d'une absorption résonnante pour $\omega - \omega_s = -\Omega_V$ [Fig. C-9(c)]. Ses caractéristiques (position et largeur des raies) confirment l'existence du mouvement oscillatoire des atomes au fond des puits du potentiel lumineux, ainsi que la présence d'une forte fraction d'atomes localisés dans les niveaux d'énergie les plus bas.

FIG. C-9 (page suivante) : Diffusion Raman stimulée entre niveaux vibrationnels. (a) Lorsque la fréquence de l'onde sonde (ω_s) est inférieure à celle des ondes lasers (ω) d'une quantité égale au quantum de vibration Ω_V , un transfert de population résonnant se produit entre niveaux de vibration différemment peuplés (proportionnellement à la taille des disques noirs), s'accompagnant de l'amplification de l'onde sonde aux dépens des ondes lasers. (b) Processus inverse d'absorption de l'onde sonde au profit des ondes lasers lorsque l'onde sonde a une fréquence supérieure à celle des ondes lasers. (c) Spectre expérimental montrant l'existence de résonances Raman en amplification pour $\omega_s - \omega = -\Omega_V$, et en absorption pour $\omega_s - \omega = \Omega_V$, démontrant ainsi le mouvement de vibration des atomes au fond des puits du potentiel lumineux.

Annexe : Formule de Kramers-Heisenberg

1. Présentation du problème

Nous considérons un système diffuseur dont les niveaux d'énergie sont représentés schématiquement sur la Fig. A-1, et nous cherchons à déterminer la section efficace différentielle de diffusion Raman spontanée d'un photon (laser) de fréquence ω , de vecteur d'onde $\mathbf{k}$ et de polarisation $\mathbf{e}$, vers un photon (Stokes) de fréquence ω_S , de vecteur d'onde $\mathbf{k}_S$ et de polarisation $\mathbf{e}_S$, associée à un changement de niveau d'énergie du centre diffuseur de $|a\rangle$ à $|b\rangle$. Comme on peut le voir sur la Fig. A-1, deux diagrammes contribuent à l'amplitude de diffusion, selon que le photon diffusé est émis avant ou après l'absorption du photon laser.

FIG. A-1 : Représentation schématique des niveaux d'énergie du centre diffuseur et du processus de diffusion Raman spontanée d'un photon laser ω vers un photon Stokes ω_S . Le système, initialement dans l'état fondamental $|a\rangle$, effectue une transition vers le niveau excité $|b\rangle$ par passage virtuel dans un état intermédiaire. Cette transition s'accompagne de l'absorption d'un photon pompe et de l'émission spontanée d'un photon Stokes. Le faisceau laser est très désaccordé vis-à-vis des transitions vers les autres niveaux d'énergie du système $|c\rangle$.

2. Calcul de l'amplitude de diffusion

Nous suivons ici la méthode exposée dans [Cohen-Tannoudji 88]. L'amplitude de diffusion est évaluée par une méthode perturbative basée sur la décomposition du Hamiltonien total H du système centre diffuseur-rayonnement, en une partie "non perturbée" H_0 dont les états et énergies propres sont connus, et d'une perturbation $W = H - H_0$. H_0 sera ici le Hamiltonien décrivant la somme des énergies du champ électromagnétique quantifié et du centre diffuseur. W sera le Hamiltonien d'interaction entre centre diffuseur et rayonnement à l'approximation dipolaire électrique, en supposant pour simplifier les écritures que le centre diffuseur est placé à l'origine des coordonnées d'espace :

$$W = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}_\perp(0) \quad (\text{A-1})$$

avec le développement usuel de $\mathbf{E}_\perp(0)$ en modes (indexés par j) :

$$\mathbf{E}_\perp(\mathbf{0}) = i \sum_j \sqrt{\frac{\hbar \omega_j}{2 \epsilon_0 V}} (a_j \mathbf{e}_j - a_j^\dagger \mathbf{e}_j^*) \quad (\text{A-2})$$

où V représente le volume de quantification du rayonnement.

L'amplitude de transition S_{fi} de l'état initial $|\varphi_i\rangle$ vers l'état final $|\varphi_f\rangle$ au bout d'un temps d'interaction T est donnée par :

$$S_{fi} = \delta_{fi} - 2\pi i \delta^{(T)}(E_f - E_i) \mathcal{T}_{fi} \quad (\text{A-3})$$

où $\delta^{(T)}$ est une fonction delta de largeur $\hbar/T$ qui exprime la conservation de l'énergie non perturbée à $\hbar/T$ près (incertitude liée au temps fini T d'interaction). En limitant le calcul perturbatif à l'ordre 2, $\mathcal{T}_{fi}$ se réduit à :

$$\mathcal{T}_{fi} = \langle \varphi_f | W | \varphi_i \rangle + \langle \varphi_f | W \frac{1}{E_i - H_0 + i\zeta} W | \varphi_i \rangle \quad (\text{A-4})$$

où ζ est un infiniment petit positif.

Les états initial $|\varphi_i\rangle$ et final $|\varphi_f\rangle$ du processus de diffusion sont :

$$|\varphi_i\rangle = |a; \mathbf{k}, \mathbf{e}\rangle \quad (\text{A-5.a})$$

$$|\varphi_f\rangle = |b; \mathbf{k}_s, \mathbf{e}_s\rangle \quad (\text{A-5.b})$$

d'énergies :

$$E_i = E_a + \hbar\omega \quad (\text{A-6.a})$$

$$E_f = E_b + \hbar\omega_s \quad (\text{A-6.b})$$

Compte tenu des Eqs (A-1), (A-2) et (A-5), le premier terme de l'Eq. (A-4) est nul et $\mathcal{T}_{fi}$ se réduit à :

$$\mathcal{T}_{fi} = \sum_c \frac{\langle b; \mathbf{k}_s, \mathbf{e}_s | W | c; 0 \rangle \langle c; 0 | W | a; \mathbf{k}, \mathbf{e} \rangle}{E_a + \hbar\omega - E_c} + \frac{\langle b; \mathbf{k}_s, \mathbf{e}_s | W | c; \mathbf{k}, \mathbf{e}; \mathbf{k}_s, \mathbf{e}_s \rangle \langle c; \mathbf{k}, \mathbf{e}; \mathbf{k}_s, \mathbf{e}_s | W | a; \mathbf{k}, \mathbf{e} \rangle}{E_a - \hbar\omega_s - E_c} \quad (\text{A-7})$$

où l'on distingue la contribution des deux processus (absorption-émission et émission-absorption) mentionnés au paragraphe précédent. Dans cette expression, $|0\rangle$ représente le vide de rayonnement. Le calcul explicite des éléments de matrice de W impliqués dans l'Eq. (A-7) conduit alors à l'expression suivante :

$$\mathcal{T}_{fi} = \frac{\hbar}{2\epsilon_0 V} \sqrt{\omega\omega_s} \sum_c \frac{\langle b | \mathbf{d} \cdot \mathbf{e}_s | c \rangle \langle c | \mathbf{d} \cdot \mathbf{e} | a \rangle}{E_a + \hbar\omega - E_c} + \frac{\langle b | \mathbf{d} \cdot \mathbf{e} | c \rangle \langle c | \mathbf{d} \cdot \mathbf{e}_s | a \rangle}{E_a - \hbar\omega_s - E_c} \quad (\text{A-8})$$

qui, portée dans l'Eq. (A-3) (dont le premier terme est nul, les états initial et final étant par hypothèse différents), donne accès à l'amplitude de diffusion Raman spontanée.

3. Calcul de la section efficace différentielle de diffusion Raman spontanée : formule de Kramers-Heisenberg

Le calcul de la probabilité de transition de $|\varphi_i\rangle$ à $|\varphi_f\rangle$, égale au module carré de l'amplitude de diffusion calculée au paragraphe précédent, fait intervenir le carré d'une fonction delta $\delta^{(T)}$ de largeur $1/T$, proportionnel à $T \delta^{(T)}$ [Cohen-Tannoudji 88]. Cette probabilité est donc proportionnelle à la durée d'interaction, ce qui permet de définir une probabilité de transition par unité de temps, que l'on trouve égale à [Cohen-Tannoudji 88] :

$$w_{fi} = \frac{2\pi}{\hbar} |\mathcal{T}_{fi}|^2 \delta^{(T)}(E_f - E_i) \quad (\text{A-9})$$

En fait, l'état final n'étant pas normalisable (car appartenant à un continuum), il est nécessaire pour aboutir à une quantité ayant un sens physique, de définir la probabilité de transition par unité de temps vers un *groupe* d'états finaux. Il est par exemple possible de définir ce groupe comme ayant un vecteur d'onde contenu dans un élément d'angle solide $d\Omega$. On obtient alors comme taux de transition élémentaire par unité de temps :

$$\frac{dw_{fi}}{d\Omega} = \frac{2\pi}{\hbar} |\mathcal{T}_{fi}|^2 \rho(E_f = E_i) \quad (\text{A-10})$$

où ρ est la densité d'états finaux évaluée en $E_f = E_i$. Enfin, l'état initial appartenant également à un continuum, est non normalisable. Il est toutefois possible d'associer un flux incident à un tel état, et de définir alors le rapport entre la probabilité de transition par unité de temps de l'état $|\varphi_i\rangle$ vers un groupe d'états finaux repérés

par un élément d'angle solide $d\Omega$, et le flux incident associé à $|\varphi_i\rangle$. Ce rapport n'est autre que la section efficace différentielle de diffusion, qui est une quantité physique mesurable.

En utilisant l'expression de la densité d'état des photons dans le vide⁽¹⁾ à la fréquence Stokes $\omega_S = \omega - \omega_{ba}$:

$$\rho(E_f = \hbar(\omega - \omega_{ba})) = \frac{V}{(2\pi)^3} \frac{(\hbar\omega_S)^2}{\hbar^3 c^3} \quad (\text{A-11})$$

ainsi que le flux incident de photons c/V , on déduit des Eqs (A-8), (A-10) et (A-11), l'expression de la section efficace différentielle de diffusion Raman spontanée :

$$\frac{d\sigma_{sp}^R}{d\Omega} = \frac{\omega\omega_S^3}{16\pi^2 \epsilon_0^2 \hbar^2 c^4} \left| \sum_c \frac{\langle b|\mathbf{d}\cdot\mathbf{e}_S|c\rangle\langle c|\mathbf{d}\cdot\mathbf{e}|a\rangle}{\omega_{cu} - \omega} + \frac{\langle b|\mathbf{d}\cdot\mathbf{e}|c\rangle\langle c|\mathbf{d}\cdot\mathbf{e}_S|a\rangle}{\omega_{cb} + \omega} \right|^2 \quad (\text{A-12})$$

avec $\omega_S = \omega - \omega_{ba}$. L'Eq. (A-12) porte le nom de *formule de Kramers-Heisenberg*⁽²⁾.

(1) Dans le cas d'un milieu matériel dont l'indice à la fréquence ω_S est n_S , il suffit de remplacer c par c/n_S .

(2) Cette expression diffère de celle obtenue dans le cas d'un milieu matériel d'indice n_S à la fréquence Stokes, par un facteur égale au cube de cet indice.

Liste des références citées

- Balcou P., Gomes A. S. L., Cornaggia C., Lompré L. A., et L'Huillier A., *J. Phys. B* **25**, 4467 (1992).
- Batra I. P. et Enns R. H., *Phys. Rev.* **185**, 396 (1969).
- Bloembergen N., *Nonlinear Optics* (Benjamin, New York, 1965).
- Bloembergen N. et Lallemand P., *Phys. Rev. Lett.* **16**, 81 (1966).
- Bloembergen N., *Am. J. Phys.* **35**, 989 (1967).
- Bogdan A. R., Downer M. C. et Bloembergen N., *Opt. Lett.* **6**, 348 (1981).
- Boyd R. W., *Nonlinear Optics*, Academic Press (1992).
- Boyd R. W. et Grynberg G., in *Contemporary Nonlinear Optics*, édité sous la direction scientifique de Agarwal G. P. et Boyd R. W. (Academic Press, New York, 1992).
- Brambilla M., Battipede F., Lugiato L. A., Penna V., Prati F., Tamm C., et Weiss C. O., *Phys. Rev. A* **43**, 5090 (1991) ; Brambilla M., Lugiato L. A., Penna V., Prati F., Tamm C., et Weiss C. O., *Phys. Rev. A* **66**, 5114 (1991).
- Butcher P. N. et Cotter D., *The Elements of Nonlinear Optics* (Cambridge University Press, 1990).
- Chiao R. Y., Kelley P. L., et Garmire E., *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1158 (1966).
- Cho C. W., Foltz N. D., Rank D. H., et Wiggins T. A., *Phys. Rev. Lett.* **18**, 107 (1967).
- Cohen-Tannoudji C., Dupont-Roc J., Grynberg G., *Processus d'interaction entre photons et atomes*, InterEdition/Edition du CNRS (1988).
- Courtois J.-Y. et Grynberg G., *Opt. Commun.* **87**, 186 (1992).
- Courtois J.-Y., Grynberg G., Lounis B., et Verkerk P., *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3017 (1994).
- Cummins H. Z. et Gammon R. W., *J. Chem. Phys.* **44**, 2785 (1966).
- Debye P., *Polar Molecules* (Dover Publications Inc., New York, 1929).
- Dirac P. A. M., *Proc. R. Soc. London Ser. A* **114**, 710 (1927).
- Eckhardt G., Hellwarth R., McClung F., Schwarz S., Weiner D., et Woodbury E., *Phys. Rev. Lett.* **9**, 455 (1962).
- Einstein A., *Physikalische Zeitschrift* **XVIII**, 121 (1917).
- Fabelinskii I. L., *Molecular Scattering of Light* (Plenum Press, New York, 1968).
- Fabre C., Giacobino E., Heidmann A., Lugiato L., Reynaud S., Vadacchino M., et Wang Kaige, *Quantum Optics* **2**, 159 (1990).
- Firth W. J., Scroggie A. J., McDonald G. S., Lugiato L. A., *Phys. Rev. A* **46**, R3609 (1992).
- Garrett C. G. B. and Robinson F. N. H., *IEEE J. Quantum Electron.* **2**, 328 (1966).
- Gibbs H. M., *Optical Bistability: Controlling Light by Light* (Academic Press, Orlando, 1985).
- Göppert-Mayer M., *Ann. Phys. (Germany)* **9**, 273 (1931).

- Green C., Mindlin G. B., D'Angelo E. J., Solari H. G., et Tredicce J. R., *Phys. Rev. Lett.* **65**, 3124 (1990).
- Grynberg G., *Revue du Palais de la découverte* **17**, 27 (n°169, Juin 1989).
- Grynberg G. et Cohen-Tannoudji C., *Opt. Commun.* **96**, 150 (1993).
- Grynberg G. et Lugiato L. A., *Opt. Commun.* **101**, 69 (1993).
- Grynberg G., Maître A., et Petrossian A., *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2379 (1994).
- Guo J., Berman P. R., Dubetsky B., et Grynberg G., *Phys. Rev. A* **46**, 1426 (1992).
- Hellwarth R., *Phys. Rev.* **130**, 1850 (1963).
- Jayaraman A. et Ramdas A. K., *Phys. Today* **41**, 56 (1988).
- Kaiser W. et Maier M., in *Laser Handbook*, édité sous la direction scientifique de Arecchi F. T. et Schultz-Dubois E. O. (North-Holland, Amsterdam, 1972).
- Klein O., *Z. Phys.* **41**, 407 (1927).
- Kramers H. A. et Heisenberg W., *Z. Phys.* **31**, 681 (1925).
- Landsberg G. et Mandel'stamm L. I., *Naturwissenschaften* **16**, 557 (1928).
- L'Huillier A., Lompré L. A., Mainfray G., et Manus C., in *Atoms in Intense Laser Fields*, édité sous la direction scientifique de Gavrilin M. (*Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics*, Supplément 1, Academic Press, New York, 1992), p. 139.
- L'Huillier A. et P. Balcou, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 774 (1993).
- L'Huillier A., Lewenstein M., Balcou P., Salières P., Ivanov M. Y., Larsson J., et Wahlström C. G., *Phys. Rev. A* **48**, R3433 (1993).
- Lugiato L. A., *Theory of Optical Bistability*, in *Progress in Optics XXI*, publié sous la direction scientifique de Wolf E. (North-Holland, Amsterdam, 1984).
- Lugiato L. A. et Lefever R., *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2209 (1987).
- Mash D. I., Morozov V. V., Starunov V. S., et Fabelinskii I. L., *JETP Lett.* **2**, 25 (1965).
- Pepper D. M., *Laser Handbook 4*, édité sous la direction scientifique de Stith M. L. et Bass M. (Elsevier Science Publisher, Amsterdam, 1985), p. 333.
- Pepper D. M., *Applications of Optical Phase Conjugation*, *Sci. Am.* (Janvier 1986), p. 56.
- Petrossian A., Pinard M., Maître A., Courtois J.-Y., et Grynberg G., *Europhys. Lett.* **18**, 689 (1992).
- Placzek G., *The Rayleigh and Raman scattering*, in *Handbuch der Radiologie*, Band VI, édité sous la direction scientifique de Marx E. (Akademische, Leipzig, 1934) [UCRL translation number 256 (USAE report)].
- Raman C. W. et Krishnan K. S., *Nature* **121**, 501 (1928).
- Rayleigh, *Phil. Mag.* **XLI**, 274, 447 (1871) ; **XLVII** 375 (1899).
- Raymer M. G. et Walmsley I. A., in *Progress in Optics 28*, édité sous la direction scientifique de Wolf E. (North-Holland, Amsterdam, 1990).
- Shen Y. R., *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley, New York, 1984).
- Shkunov V. V. et Zel'dovich B. Y., *Optical Phase Conjugation*, *Sci. Am.* (Janvier 1986), p. 40.
- Smekal A., *Naturwissenschaften* **11**, 873 (1923).
- Woodbury E. J. et Ng W. K., *Proc. IRE* **50**, 2347 (1962).