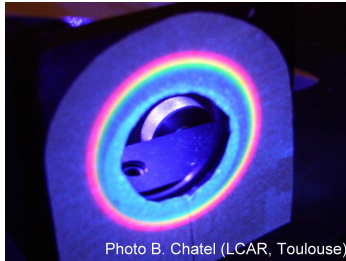


Cours n°3 :

Quelques phénomènes d'optique non-linéaire

Manuel Joffre



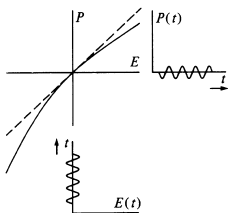
Plan du cours

- 1 Equation de propagation
- 2 Optique non-linéaire du deuxième ordre
- 3 Optique non-linéaire du troisième ordre

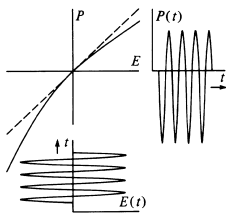
Polarisation non-linéaire

Réponse instantanée

$$P(t) = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E(t)^2 + \chi^{(3)} E(t)^3 + \dots \right)$$



Régime linéaire



Régime non-linéaire

Equation de propagation

$$\Delta \vec{E} - \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(1)}}{\partial t^2} + \underbrace{\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(2)}}{\partial t^2} + \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(3)}}{\partial t^2} + \dots}_{\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(NL)}}{\partial t^2}}$$

- Double réfraction négligée
- Champs scalaires

Equation de propagation non-linéaire

$$\Delta \mathcal{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial t^2} - \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{P}^{(1)}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{P}^{(NL)}}{\partial t^2}$$

Approximation paraxiale

$$\mathcal{E}(x, y, z, \omega) = \mathcal{A}(x, y, z, \omega) \exp(ik(\omega)z)$$

$\mathcal{A}(x, y, z, \omega)$ est l'enveloppe du champ, lentement variable avec z .

Propagation linéaire

$$\frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial y^2} + 2ik(\omega) \frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = 0$$

Propagation non-linéaire

$$\frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial y^2} + 2ik(\omega) \frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = -\frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \mathcal{P}^{(NL)}(x, y, z, \omega) \exp(-ik(\omega)z)$$

à 1D

$$\frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = \frac{i\omega}{2n(\omega)\epsilon_0 c} \mathcal{P}^{(NL)}(z, \omega) \exp(-ik(\omega)z)$$

Superposition d'ondes monochromatiques

$$\mathcal{E}(\vec{r}, t) = \sum_j \mathcal{E}_j(\vec{r}) \exp(-i\omega_j t) \xleftrightarrow{\mathcal{F}} \mathcal{E}(\vec{r}, \omega) = 2\pi \sum_j \mathcal{E}_j(\vec{r}) \delta(\omega - \omega_j)$$

$$\mathcal{P}^{(NL)}(\vec{r}, t) = \sum_j \mathcal{P}_j(\vec{r}) \exp(-i\omega_j t) \xleftrightarrow{\mathcal{F}} \mathcal{P}^{(NL)}(\vec{r}, \omega) = 2\pi \sum_j \mathcal{P}_j(\vec{r}) \delta(\omega - \omega_j)$$

Equation de propagation non-linéaire

$$\frac{d\mathcal{A}_j}{dz} = \frac{i\omega_j}{2n_j\epsilon_0 c} \mathcal{P}_j^{(NL)}(z) \exp(-ik_j z)$$

avec $n_j = n(\omega_j)$ et $k_j = k(\omega_j) = n_j\omega_j/c$.

1 Equation de propagation

2 **Optique non-linéaire du deuxième ordre**

3 Optique non-linéaire du troisième ordre

Processus non-linéaires du deuxième ordre

$$P^{(2)}(t) = \epsilon_0 \int \chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2) E(\omega_1) E(\omega_2) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi}$$

$\chi^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega)$	Doublage de fréquence
$\chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2)$	Somme de fréquences
$\chi^{(2)}(-(\omega_1 - \omega_2); \omega_1, -\omega_2)$	Différence de fréquences
$\chi^{(2)}(0; \omega, -\omega)$	Redressement optique
$\chi^{(2)}(-\omega; \omega, 0)$	Effet électro-optique

Importance de la symétrie

$$P_i^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int \frac{d\omega_1}{2\pi} \dots \int \frac{d\omega_n}{2\pi} \chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n) E_{i_1}(\vec{r}, \omega_1) \dots E_{i_n}(\vec{r}, \omega_n) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n)t)$$

$$(x, y, z) \mapsto (-x, -y, -z)$$

$$P_i^{(n)} \mapsto -P_i^{(n)}$$

$$E_i \mapsto -E_i$$

$$E_{i_1} \dots E_{i_n} \mapsto (-1)^n E_{i_1} \dots E_{i_n}$$

$$\chi^{(n)} \mapsto (-1)^{(n+1)} \chi^{(n)}$$

Milieu centrosymétrique (i.e. qui possède un centre d'inversion)

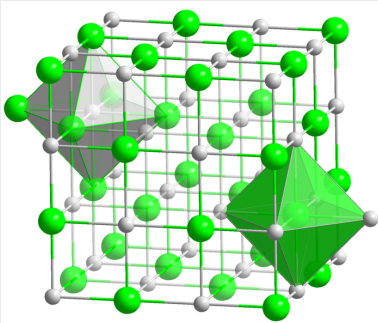
$$\chi^{(2p)} = 0$$

Exemples de structures cristallines

Structure centro-symétrique

$$\chi^{(2)} = 0$$

NaCl

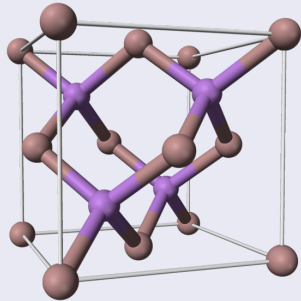


en.wikipedia.org/wiki/NaCl

Structure non centro-symétrique

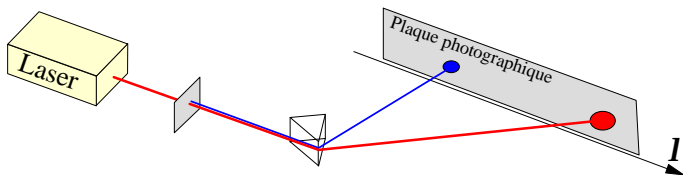
$$\chi^{(2)} \neq 0$$

GaAs



en.wikipedia.org/wiki/Gallium_arsenide

Doublage de fréquence : première expérience



VOLUME 7, NUMBER 4

PHYSICAL REVIEW LETTERS

AUGUST 15, 1961



Franken et al., Phys. Rev. Lett. **7**, 118 (1961)

Doublage de fréquence : équation de propagation

$$P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \left(\frac{\mathcal{E}_1 + \mathcal{E}_1^*}{2} \right)^2 = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{4} \left(\underbrace{\mathcal{E}_1^2 + \mathcal{E}_1^{*2}}_{\text{doublage}} + \underbrace{2\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_1^*}_{\text{redressement}} \right)$$

Notation complexe : $P_2^{(2)} = (\mathcal{P}_2^{(2)} + \mathcal{P}_2^{(2)*}) / 2$

$$\mathcal{P}_2^{(2)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \mathcal{E}_1^2 = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \mathcal{A}_1(z)^2 \exp(2ik_1 z)$$

$$\frac{d\mathcal{A}_2}{dz} = \frac{i\omega_2}{2n_2\epsilon_0 c} \mathcal{P}^{(2)}(z) \exp(-ik_2 z) = \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{4n_2 c} \mathcal{A}_1(z)^2 \exp(i(2k_1 - k_2)z)$$

Doubleage de fréquence : cas de la pompe constante

$$\frac{d\mathcal{A}_2}{dz} = \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2c}\mathcal{A}_1(0)^2 \exp(i\Delta kz)$$

- $\Delta k = 2k_1 - k_2 = (n_1 - n_2)\omega_2/c$
- Longueur de cohérence $L_c = \pi/\Delta k$
- Faible régime de conversion : $\mathcal{A}_1(z) \approx \mathcal{A}_1(0)$

Accord de phase ($\Delta k = 0$)

$$\mathcal{A}_2(z) = \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2c}\mathcal{A}_1(0)^2 z$$

Désaccord de phase ($\Delta k \neq 0$)

$$\begin{aligned}\mathcal{A}_2(z) &= \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2c}\mathcal{A}_1(0)^2 \frac{e^{i\Delta kz} - 1}{i\Delta k} \\ &= \frac{i\omega_2\chi^{(2)}e^{i\Delta kz/2}}{2n_2c\Delta k}\mathcal{A}_1(0)^2 \sin \frac{\Delta kz}{2}\end{aligned}$$

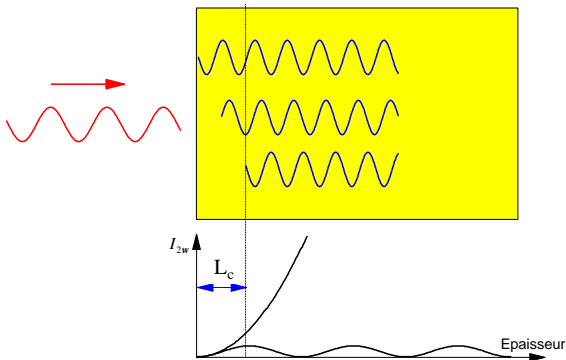
Doublage de fréquence : un processus cohérent

Accord de phase ($\Delta k = 0$)

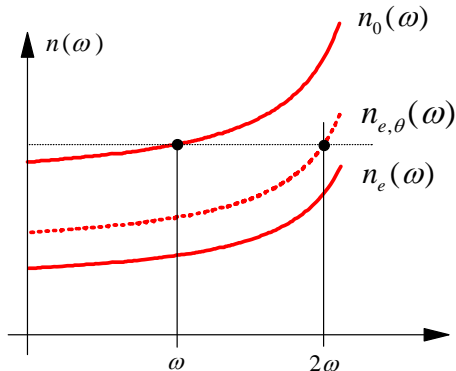
$$\mathcal{A}_2(z) = \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2c} \mathcal{A}_1(0)^2 z$$

Désaccord de phase ($\Delta k \neq 0$)

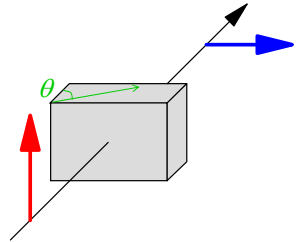
$$\mathcal{A}_2(z) = \frac{i\omega_2\chi^{(2)} e^{i\Delta kz/2}}{2n_2c\Delta k} \mathcal{A}_1(0)^2 \sin \frac{\Delta kz}{2}$$



Accord de phase par biréfringence (type I)

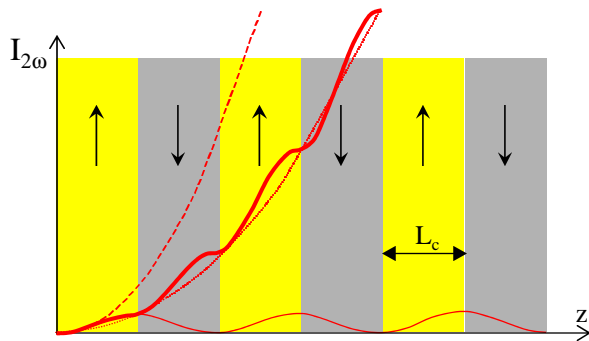


$$k_{e,\theta}(2\omega) = 2k_o(\omega)$$
$$n_{e,\theta}(2\omega) = n_o(\omega)$$

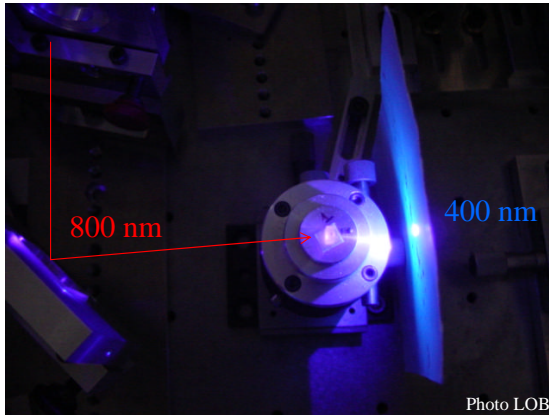


Quasi accord de phase

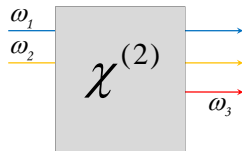
- Bloembergen 1962
- M.M. Fejer et al., IEEE J. Quant. Electr. **28**, 2631 (1992)



Doublage de fréquence



Mélange à trois ondes



- $\omega_1 - \omega_2 \rightarrow \omega_3$, $\omega_1 - \omega_3 \rightarrow \omega_2$, $\omega_2 + \omega_3 \rightarrow \omega_1$
- $\Delta k = k_1 - k_2 - k_3 \approx 0$
- ω_1 : pompe
- ω_2 : signal ($\omega_2 < \omega_1$)
- ω_3 : complémentaire

Polarisation non-linéaire

$$\begin{aligned} P^{(NL)} &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{4} (\mathcal{E}_1 + \mathcal{E}_2 + \mathcal{E}_3 + \mathcal{E}_1^* + \mathcal{E}_2^* + \mathcal{E}_3^*)^2 \\ &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} (\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* + \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_3^* + \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3) + \dots \end{aligned}$$

Mélange à trois ondes : équation de propagation

$$\mathcal{P}_1^{(2)}(z) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3 = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{A}_2 \mathcal{A}_3 e^{i(k_2+k_3)z}$$

$$\mathcal{P}_2^{(2)}(z) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_3^* = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_3^* e^{i(k_1-k_3)z}$$

$$\mathcal{P}_3^{(2)}(z) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_2^* e^{i(k_1-k_2)z}$$

On pose $\alpha_i(z) = \sqrt{\frac{n_i c \epsilon_0}{2 \hbar \omega_i}} \mathcal{A}_i(z)$ et $\xi = \chi^{(2)} \sqrt{\frac{\hbar \omega_1 \omega_2 \omega_3}{2 \epsilon_0 c^3 n_1 n_2 n_3}}$.

$$\frac{d\mathcal{A}_1}{dz} = \frac{i\omega_1 \chi^{(2)}}{2n_1 c} \mathcal{A}_2 \mathcal{A}_3 e^{-i\Delta k z}$$

$$\frac{d\mathcal{A}_2}{dz} = \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{2n_2 c} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_3^* e^{i\Delta k z}$$

$$\frac{d\mathcal{A}_3}{dz} = \frac{i\omega_3 \chi^{(2)}}{2n_3 c} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_2^* e^{i\Delta k z}$$

$$\frac{d\alpha_1}{dz} = i\xi \alpha_2 \alpha_3 e^{-i\Delta k z}$$

$$\frac{d\alpha_2}{dz} = i\xi \alpha_1 \alpha_3^* e^{i\Delta k z}$$

$$\frac{d\alpha_3}{dz} = i\xi \alpha_1 \alpha_2^* e^{i\Delta k z}$$

Mélange à trois ondes : relations de conservation

Flux de photons

$$\Phi_i(z) = |\alpha_i(z)|^2 = \frac{n_i c \epsilon_0}{2 \hbar \omega_i} |\mathcal{A}_i(z)|^2 = \frac{n_i c \epsilon_0 |\mathcal{A}_i(z)|^2 / 2}{\hbar \omega_i}$$

$$\begin{aligned} \alpha_1^* \frac{d\alpha_1}{dz} &= i \xi \alpha_1^* \alpha_2 \alpha_3 e^{-i\Delta k z} \\ \frac{d\Phi_1}{dz} &= \alpha_1^* \frac{d\alpha_1}{dz} + \alpha_1 \frac{d\alpha_1^*}{dz} = 2 \operatorname{Re} \left(i \xi \alpha_1^* \alpha_2 \alpha_3 e^{-i\Delta k z} \right) \\ \frac{d\Phi_2}{dz} &= \alpha_2^* \frac{d\alpha_2}{dz} + \alpha_2 \frac{d\alpha_2^*}{dz} = 2 \operatorname{Re} \left(i \xi \alpha_1 \alpha_2^* \alpha_3^* e^{i\Delta k z} \right) = -\frac{d\Phi_1}{dz} \\ \frac{d\Phi_3}{dz} &= \frac{d\Phi_2}{dz} = -\frac{d\Phi_1}{dz} \end{aligned}$$

Relation de Manley-Rowe

$$\Phi_2 - \Phi_3 \text{ constant}$$

Conservation de la puissance

$$\hbar \omega_1 \Phi_1 + \hbar \omega_2 \Phi_2 + \hbar \omega_3 \Phi_3 \text{ constant}$$

Mélange à trois ondes : cas de la pompe constante

- Accord de phase : $\Delta k = 0$
- Pompe intense : $|\alpha_1|^2 \gg |\alpha_2|^2$ et $|\alpha_1|^2 \gg |\alpha_3|^2$
- Faible régime de conversion : $\alpha_1(z) \approx \alpha_1(0)$
- $i\xi\alpha_1 = g$ sera supposé réel positif (choix de l'origine des temps)

$$\frac{d\alpha_2}{dz} = i\xi\alpha_1\alpha_3^* = g\alpha_3^*$$

$$\frac{d\alpha_3}{dz} = i\xi\alpha_1\alpha_2^* = g\alpha_2^*$$

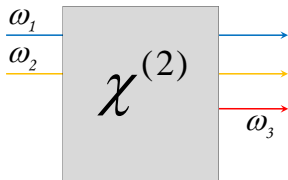
$$\frac{d^2\alpha_2}{dz^2} = g\frac{d\alpha_3^*}{dz} = g^2\alpha_2$$

$$\frac{d^2\alpha_3}{dz^2} = g\frac{d\alpha_2^*}{dz} = g^2\alpha_3$$

$$\alpha_2(z) = \alpha_2(0)\cosh gz + \alpha_3^*(0)\sinh gz$$

$$\alpha_3(z) = \alpha_3(0)\cosh gz + \alpha_2^*(0)\sinh gz$$

Mélange à trois ondes : amplification paramétrique



Condition initiale

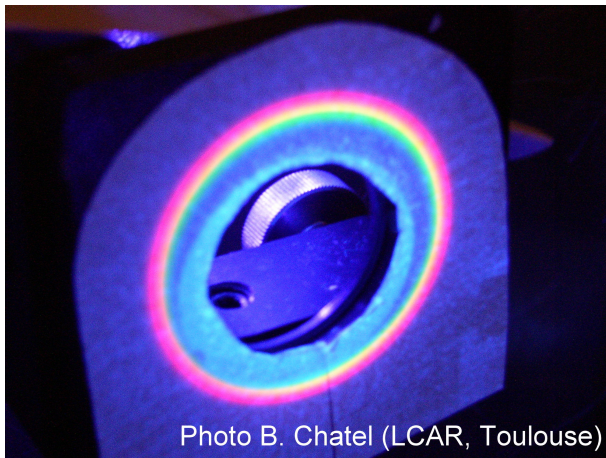
$$\alpha_3(0) = 0$$

$$\alpha_2(z) = \alpha_2(0) \cosh gz \quad \rightarrow \quad \frac{\alpha_2(0)}{2} \exp(gz) \quad (\text{pour } gz \gg 1)$$

$$\alpha_3(z) = \alpha_2^*(0) \sinh gz \quad \rightarrow \quad \frac{\alpha_2(0)^*}{2} \exp(gz) \quad (\text{pour } gz \gg 1)$$

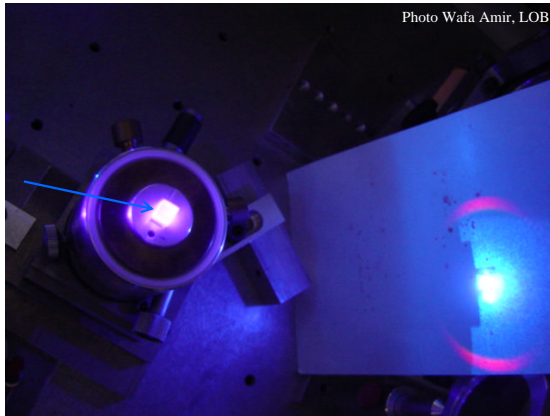
- Mécanisme d'amplification du signal similaire à l'émission stimulée
- Production d'un faisceau supplémentaire : complémentaire (*idler*)
- Facilement accordable en changeant l'angle d'accord de phase

Fluorescence paramétrique



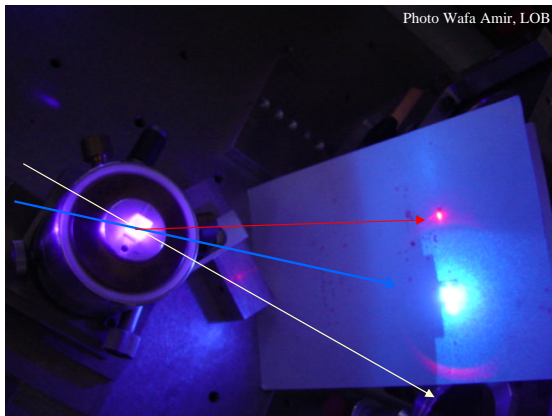
$$\lambda_P = 400\text{nm}$$

Fluorescence paramétrique



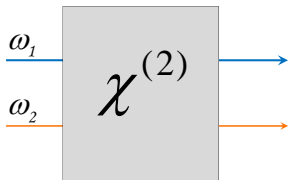
$$\lambda_P = 400\text{nm}$$

Amplification paramétrique optique (OPA)



$$\lambda_P = 400\text{nm}; \lambda_S = 1095\text{nm}; \lambda_I = 630\text{nm}$$

Amplification paramétrique optique : cas dégénéré



Signal = complémentaire

$$\omega_2 = \omega_3 = \frac{\omega_1}{2}$$

$$\begin{aligned}\alpha_2(z) &= \alpha_2(0) \cosh gz + \alpha_2^*(0) \sinh gz \\ &= \operatorname{Re} \alpha_2(0) \exp(gz) + i \operatorname{Im} \alpha_2(0) \exp(-gz)\end{aligned}$$

Amplification dépendant de la phase

$$\mathcal{A}(z) = \mathcal{A}_P(0)e^{gz} + i\mathcal{A}_Q(0)e^{-gz}$$

1 Equation de propagation

2 Optique non-linéaire du deuxième ordre

3 Optique non-linéaire du troisième ordre

Polarisation du troisième ordre

$$\begin{aligned} P^{(3)}(t) &= \epsilon_0 \chi^{(3)} \left(\frac{\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}^*(t)}{2} \right)^3 \\ &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} (\mathcal{E}(t)^3 + \mathcal{E}^*(t)^3 + 3 \mathcal{E}^*(t) \mathcal{E}(t)^2 + 3 \mathcal{E}^*(t)^2 \mathcal{E}(t)) \\ &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} (\mathcal{E}(t)^3 + \mathcal{E}^*(t)^3 + 3 |\mathcal{E}(t)|^2 \mathcal{E}(t) + 3 |\mathcal{E}(t)|^2 \mathcal{E}^*(t)) \end{aligned}$$

- $\mathcal{E}(t)^3$: génération de troisième harmonique (peu efficace)
- $|\mathcal{E}(t)|^2 \mathcal{E}(t)$: affecte la propagation du fondamental (**accord de phase automatique!**)

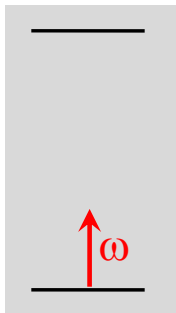
Optique non-linéaire du troisième ordre

$$\mathcal{P}^{(3)}(t) = \frac{3\epsilon_0\chi^{(3)}}{4} |\mathcal{E}(t)|^2 \mathcal{E}(t) \Rightarrow \frac{d\mathcal{A}}{dz} = \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} |\mathcal{A}|^2 \mathcal{A}$$

$$\begin{aligned} \frac{d|\mathcal{A}|^2}{dz} &= \mathcal{A}^* \frac{d\mathcal{A}}{dz} + \frac{d\mathcal{A}^*}{dz} \mathcal{A} \\ &= \frac{3i\omega}{8nc} |\mathcal{A}|^2 \left(\mathcal{A}^* \chi^{(3)} \mathcal{A} - \chi^{(3)*} \mathcal{A}^* \mathcal{A} \right) \\ &= -\frac{3\omega}{4nc} \text{Im}\chi^{(3)} |\mathcal{A}(z)|^4 \end{aligned}$$

- Effet Kerr optique ($\chi^{(3)}$ réel)
- Absorption à deux photons ($\chi^{(3)}$ complexe)
- Saturation d'absorption ($\chi^{(3)}$ et $\chi^{(1)}$ complexes)

Effet Kerr optique



Milieu non résonnant $\Rightarrow \chi^{(3)}$ réel

$$\frac{d|\mathcal{A}|^2}{dz} = -\frac{3\omega}{4nc} \text{Im}\chi^{(3)} |\mathcal{A}(z)|^4 = 0 \Rightarrow |\mathcal{A}(z)|^2 = |\mathcal{A}(0)|^2$$

$$\frac{d\mathcal{A}}{dz} = \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} |\mathcal{A}(0)|^2 \mathcal{A}(z)$$

$$\mathcal{A}(z) = \mathcal{A}(0) \exp\left(i \frac{3\omega\chi^{(3)} |\mathcal{A}(0)|^2}{8nc} z\right)$$

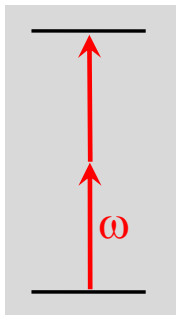
Indice non-linéaire

$$n(I) = n_0 + n_2 I \text{ avec } n_2 \propto \chi^{(3)}$$

Déphasage non-linéaire

$$\phi_{\text{Kerr}}(z) = \frac{\omega}{c} n_2 I z$$

Absorption à deux photons



Résonance à deux photons $\Rightarrow \chi^{(3)}$ complexe

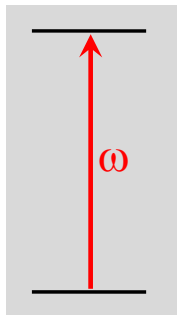
$$\frac{d|\mathcal{A}|^2}{dz} = -\frac{3\omega}{4nc} \text{Im}\chi^{(3)} |\mathcal{A}(z)|^4 \neq 0$$

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha_2 I^2$$

Coefficient d'absorption à deux photons

$$\alpha_2 \propto \text{Im} \chi^{(3)}$$

Saturation de l'absorption et du gain



Milieu absorbant $\Rightarrow \chi^{(1)}$ et $\chi^{(3)}$ complexes

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha_0 I + \frac{\alpha_0}{I_S} I^2 = -\alpha(I) I$$

