

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université A. MIRA de Bejaia
Faculté des Sciences Exacte
Département de Physique



Mémoire de Fin de Cycle

En vue de l'obtention du diplôme de Master en Physique
Option : Physique des Matériaux

Thème

Modélisation et simulation de la génération de la
seconde harmonique dans les cristaux de quartz

Présenté par :

ADRAR FAYCAL & BARA ANIS

Mr. A. CHELOUCHE	Professeur	U. A. Mira de Bejaia	Examineur
Mr. A. H. SOUCI	Professeur	U. A. Mira de Bejaia	Examineur
Mr. F. KESSI	MCA	U. A. Mira de Bejaia	Encadrant

2020/2021

Remerciement

Nous adressons nos sincères remerciements à M. Ferhat Kessi pour avoir dirigé notre mémoire, nous tenons à lui exprimer notre très grande gratitude pour sa patience sa bonne humeur et son intérêt continuel a l'avancement de ce travail.

Nous tenons aussi a remercié toute l'équipe du bureau Ait Mebrouk Lamine, Mebarki Lamine, Zoubir Benkhanouche, Tahrat Youva et Youcef pour leurs soutient tout au long de ces dernières années.

Pour terminer, nous souhaitons remercier du plus profond de nos cœurs nos parents nos frères et sœurs sans qui rien de tout ça n'aurait pu se produire : nous sommes extrêmement reconnaissant de la chance que nous avons eu de les avoirs.

Sommaire

Sommaire	1
Introduction générale	4
Chapitre 1 : La génération de la seconde harmonique	7
1.1. Introduction.....	7
1.2. Origine de la nonlinéarité optique.....	8
1.3. Les susceptibilités non linéaires.....	9
1.4. Définition formelle.....	10
1.5. Propriétés des susceptibilités non linéaires.....	12
1.5.1. Réalité de la polarisation.....	12
1.5.2. Symétrie intrinsèque de permutation.....	12
1.5.3. Symétrie d'inversion.....	12
1.5.4. Cas d'un milieu sans perte.....	14
1.5.5. La symétrie de Kleinman.....	14
1.5.6. Symétrie Cristalline.....	14
1.6. Les interactions optiques non linéaires.....	15
1.6.1. Les interactions optiques non linéaires paramétriques et non paramétriques.....	15
1.6.2. Les processus optiques non linéaires du second ordre.....	16
1.7. La génération de la seconde harmonique.....	17
1.7.1. Généralités.....	17
1.7.2. La condition d'accord de phase.....	19
1.7.3. Matrice contractée des susceptibilités.....	20
1.8. Milieux optiques anisotropes.....	22
1.8.1. Propriétés optiques linéaires.....	22

1.8.2. Propriétés optiques non linéaires.....	26
1.9. Propriétés optiques du quartz.....	28
Chapitre 2 : Modélisation de la génération de la seconde harmonique dans les cristaux de quartz.....	29
2.1. Introduction.....	31
2.2. Dispositif expérimental.....	31
2.2.1. Introduction.....	31
2.2.2. Laser et optiques.....	32
2.2.3. Appareils de détection.....	34
2.2.4. Expérience SHG résolue en polarisation.....	35
2.3. Formalisme des matrices de Jones.....	36
2.3.1. La polarisation de la lumière.....	36
2.3.2. Polarisation elliptique.....	37
2.3.3. Polarisation linéaire.....	39
2.3.4. Polarisation circulaire.....	40
2.3.5. La représentation matricielle de la polarisation.....	41
2.3.5.1. Vecteur de Jones.....	41
2.3.5.2. Les polarisations orthogonales.....	42
2.3.5.3. Développement d'une polarisation arbitraire en tant que superposition de deux polarisations orthogonales.....	43
2.3.5.4. Représentation matricielle des systèmes optiques.....	43
• Polariseurs linéaires.....	45
• Retardateurs d'onde.....	46
• Rotateurs de polarisation.....	47
2.3.5.5. Dispositifs de polarisation en cascade.....	48

2.3.5.6. Transformation des coordonnées.....	48
2.4. Modélisation de la génération de la seconde harmonique dans les cristaux de quartz.....	49
2.4.1. Introduction.....	49
2.4.2. Tenseur de susceptibilité d'ordre 2 du quartz.....	49
2.4.3. Dispositif expérimental simplifié.....	50
2.4.4. Intensité seconde harmonique.....	50
2.4.4.1. Polarisation incidente linéaire.....	51
• Premier cas : polarisation linéaire suivant l'axe (OX).....	55
• Deuxième cas : polarisation linéaire suivant l'axe (OY).....	55
• Troisième cas : Polarisation linéaire dans une direction qui fait un angle $\alpha = 45^\circ$ avec l'axe (OX).....	56
Chapitre 3 : Simulation, résultats et interprétations.....	58
3.1. Introduction.....	58
3.2. Origine du signal SHG.....	58
3.3. Champs et rayonnements multipolaires électriques.....	60
3.4. Considérations générales.....	62
3.5. Effet de la polarisation du champ harmonique.....	63
3.6. Effet de l'intensité incidente.....	66
3.7. Effet de l'anisotropie.....	68
3.8. Effet de la nature tensorielle de la réponse.....	71
Conclusion générale et perspectives	76
Bibliographie.....	78
Liste des figures et tableaux.....	83

Introduction générale

La génération de la seconde harmonique (acronyme anglais SHG pour Second Harmonic Generation) est un processus optique non linéaire du second ordre. Ce processus est également appelé doublage de fréquence, car à la traversée d'un matériau non linéaire, la fréquence du faisceau fondamentale ou incident est doublée. Au niveau microscopique, le matériau non linéaire absorbe deux photons à la fréquence fondamentale et émet un photon à la fréquence harmonique. La génération de la seconde harmonique est un processus très sensible à la symétrie cristalline du matériau. En effet, ce processus est interdit dans les milieux centrosymétriques, c'est-à-dire, possédant un centre d'inversion, dans le cadre de l'approximation dipolaire. Par conséquent, il ne peut y avoir de génération de seconde harmonique que dans les milieux non centrosymétriques et à la surface d'un milieu ou interface entre deux milieux, où il y a brisure de la centrosymétrie. C'est pour cette raison que cette technique est très utilisée dans l'étude des propriétés des surfaces et interfaces. L'origine du signal correspondant à la génération de la seconde harmonique peut être également d'origine volumique dans le cas des matériaux non centrosymétriques donnant lieu à une réponse de caractère quadripolaire ou plus.

Du point de vue expérimental, il existe plusieurs techniques pour étudier la génération de la seconde harmonique. Citons en particulier, les expériences de monochromaticité, les expériences SHG scan et les expériences SHG résolue en polarisation. Dans ce mémoire, nous sommes intéressés à cette dernière technique. Le but de cette technique est d'étudier la réponse seconde harmonique d'un échantillon soumis à un faisceau lumineux polarisé. Il s'agit de mesurer l'intensité seconde harmonique générée par l'échantillon en fonction de l'angle de polarisation du champ incident. Cependant, on ne s'intéresse qu'à des directions particulières lors de la détection, correspondant à des états particuliers de la polarisation du champ harmonique dits horizontal et vertical. Les diagrammes polaires du rayonnement obtenus grâce à cette expérience fournissent beaucoup d'informations. En effet, selon le type de l'échantillon étudié, ces diagrammes permettent de déterminer l'origine, le caractère et la nature de la réponse SHG.

Il existe plusieurs modèles théoriques permettant de modéliser la génération de la seconde harmonique. Parmi ces modèles, le formalisme des vecteurs et matrices de Jones est le plus utilisé lorsque la notion de polarisation paraît importante, comme dans les expériences SHG

résolues en polarisation. Dans ce modèle simple, les états de polarisation des champs électriques sont représentés par des vecteurs et les différents systèmes optiques par des matrices. Ainsi dans un dispositif expérimental contenant des systèmes optiques pouvant agir sur l'état de polarisation d'un champ électrique, il est possible de déterminer l'expression de ce champ de proche en proche par de simple multiplication matricielle, tout en tenant compte de la génération de la seconde harmonique au niveau de l'échantillon.

Ce mémoire s'inscrit dans le domaine de l'optique non linéaire. Nous nous intéresserons plus particulièrement à la modélisation et la simulation de la génération de la seconde harmonique dans les cristaux de quartz alpha. L'objectif de ce travail est d'une part, l'élaboration d'un modèle théorique de la génération de la seconde harmonique dans ces cristaux, en rapport avec la technique SHG résolue en polarisation et d'autre part, l'étude de l'influence de certains paramètres sur l'intensité SHG générée, à travers des simulations.

Dans le premier chapitre et dans le but de définir la problématique de notre travail, nous présenterons une revue bibliographique sur la génération de la seconde harmonique. Notre approche consistera à introduire ce processus à partir du cadre générale de l'optique non linéaire. Pour ce faire, nous allons tout d'abord introduire la notions de polarisation non linéaire et à travers elle la notion de susceptibilités non linéaires et leur propriétés. Nous présenterons ensuite le processus de génération de seconde harmonique comme l'un processus non linéaire du second ordre conséquence de la polarisation non linéaire d'ordre 2. Les conditions de sa réalisation seront également discutées. Nous terminerons ce chapitre en exposant les propriétés optiques linéaires et non linéaires des milieux anisotropes, et en particulier la génération de la seconde harmonique dans les cristaux du quartz.

Dans le second chapitre, nous allons tout d'abord décrire le dispositif expérimental généralement utilisé dans les mesures SHG résolues en polarisation. Ensuite, nous allons aborder le formalisme des vecteurs et matrices de Jones. Enfin, nous utiliserons ce formalisme pour obtenir l'expression de l'intensité SHG générée par les cristaux de quartz.

Dans le dernier chapitre, nous allons étudier, à travers des simulations, l'influence de quelques paramètres essentiels sur l'intensité seconde harmonique générée par les cristaux de quartz. Il s'agira de la polarisation harmonique, la polarisation du champ sortant de la cavité laser, l'intensité incidente, l'angle du quartz et la nature tensorielle de la réponse seconde harmonique. Nous terminerons ce modeste travail par une conclusion générale et des perspectives.

Chapitre 1

La génération de la seconde harmonique

1. Introduction

Les lasers sont des sources de lumière cohérente, caractérisées par un très haut degré de monochromaticité, une grande directionalité 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 [1]). En fonctionnement déclenché, un tel laser peut émettre en 10 ns environ 1018 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, la densité de puissance obtenue, 10 térawatts/cm², est impressionnante. 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 nonlinéarité dans la relation constitutive entre polarisation d'un milieu et le champ électrique lumineux appliqué. Les nonlinéarités aux fréquences optiques sont décrites sans difficulté en combinant la relation constitutive non linéaire avec les équations de Maxwell. La première observation d'un effet non linéaire en optique date de 1961 lorsque Franken réalisa la génération de seconde harmonique dans le quartz [1].

Les processus optiques non linéaires sont donc des manifestations de la propriété de certains matériaux d'acquiescer 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 [2]. On pourrait alors penser que l'extrême diversité des propriétés microscopiques des milieux se traduit par l'apparition d'un très grand nombre 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.

L'optique non linéaire est aujourd'hui, 70 ans après sa découverte et 40 ans après le prix Nobel de son père spirituel, Nicolas Bloembergen [3], 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 [4]. Les effets non linéaires sont à la base même du fonctionnement des lasers [5]. La génération d'harmoniques [6], l'amplification paramétrique [7], la diffusion Raman stimulée ont étendu le domaine des sources cohérentes de l'infra-rouge à l'ultra-violet du vide [8]. La spectroscopie non linéaire a permis des avancées considérables dans des domaines aussi variés que la métrologie ou le diagnostic des flammes [9]. 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 [10], offrant ainsi de nouvelles perspectives dans des domaines comme la science des matériaux ou la cinétique chimique [11]. La bistabilité optique laisse entrevoir la possibilité de réaliser des transistors, voire des ordinateurs, entièrement optiques [12]...

2. Origine de la nonlinéarité optique

Nous décrivons dans ce paragraphe, par un modèle simple, l'origine de la nonlinéarité 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 [13]. 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.

De façon générale, la réponse d'un électron à un champ électrique optique correspond à celle d'une particule dans un potentiel anharmonique. 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. 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 [2,13,14] :

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \Gamma \frac{dx}{dt} + \omega_A^2 x + (\zeta^{(2)} x^2 + \zeta^{(3)} x^3 + \dots) = -\frac{e}{m} E(t) \quad (1.1)$$

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'équation (1.1) représente la force de Coulomb exercée sur l'électron par le champ électrique, force qui induit son oscillation. C'est le modèle dit de l'oscillateur anharmonique. En l'absence des termes non linéaires, l'équation (1.1) peut être résolue en considérant un champ laser incident monochromatique de la forme [2,13,14] :

$$E(t) = E_0 \exp(j\omega t) + c.c \quad (1.2)$$

où E_0 est l'amplitude du champ, ω sa fréquence et $c.c$ désigne le complexe conjugué. On montre alors que la polarisation peut s'écrire sous la forme suivante [2,13,14] :

$$P(t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E(t) \quad (1.3)$$

où $\chi^{(1)}$ est la susceptibilité linéaire et ε_0 la permittivité diélectrique du vide.

Lorsque les termes non harmoniques sont pris en compte, il n'existe plus de solution générale de l'équation du mouvement (1.2). Toutefois, dans la limite où ces termes sont suffisamment petits devant la composante harmonique, il est possible de résoudre cette équation par approche perturbative 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 [2,13,14] :

$$P(t) = \varepsilon_0 [\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E^2(t) + \chi^{(3)} E^3(t) + \dots] \quad (1.4)$$

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

3. Les susceptibilités non linéaires

La description des effets non linéaire 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, la mécanique quantique fournit le cadre adéquat pour l'estimation quantitative des susceptibilités et l'interprétation physique de la nonlinéarité, tandis que l'électromagnétisme classique permet de décrire de façon macroscopique la propagation et l'interaction des ondes entre elles et avec le matériau.

3.1. Définition formelle

Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, les susceptibilités jouent un rôle clé en optique non linéaires 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 [2,13,14]. Nous considérons le cas d'un milieu non linéaire interagissant avec un champ électrique \vec{E} résultant de la somme discrète d'ondes planes monochromatiques \vec{E}_n de vecteurs d'onde \vec{k}_n et de fréquences ω_n :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_{n>0} \vec{E}_n(\vec{r}, t) \quad (1.5)$$

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

$$\vec{E}_n(\vec{r}, t) = \vec{E}_n^+(\vec{r}, t) + \vec{E}_n^-(\vec{r}, t) \quad (1.6)$$

avec :

$$\vec{E}_n^+(\vec{r}, t) = \sum_{i=x,y,z} E_{0n,i} \exp(-j\omega_n t + j\vec{k}_n \cdot \vec{r}) \vec{e}_i = [\vec{E}_n^-(\vec{r}, t)]^* \quad (1.7)$$

où \vec{e}_i , désigne le vecteur unitaire pointant dans la direction d'espace i , et ou $()^*$ désigne le complexe conjugué de $()$. Il est important de noter qu'avec la convention (1.7), $E_{0n,i}$ est une quantité complexe dont le module est égal à la demi-amplitude de la composante de polarisation \vec{e}_i du champ électrique \vec{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 E_n est une quantité réelle. Par la suite, nous utiliserons également une autre notation pour l'amplitude $E_{0n,i}$ et son complexe conjugué :

$$\begin{cases} E_{0n,i} = E_{0i}(\omega_n) & (1.8 - 1) \\ E_{0n,i}^* = E_{0i}(-\omega_n) & (1.8 - 2) \end{cases}$$

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 réécrire l'équation (1.5) sous la forme compacte :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_n \sum_{i=x,y,z} E_{0i}(\omega_n) \exp(-j\omega_n t + j\vec{k}_n \cdot \vec{r}) \vec{e}_i \quad (1.9)$$

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

$$\begin{cases} \omega_{-n} = -\omega_n & (1.10 - 1) \\ \vec{k}_{-n} = -\vec{k}_n & (1.10 - 2) \end{cases}$$

La nonlinéarité 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 apparait comme une somme de composantes de Fourier spatiales et temporelles, combinons linéaires des composantes de Fourier du champ électrique, que l'on repère collectivement par un indice m prenant également des valeurs positives et négatives :

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_m \sum_{i=x,y,z} P_i(\omega_m) \exp(-j\omega_m t + j\vec{k}_m \cdot \vec{r}) \vec{e}_i \quad (1.11)$$

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

$$P_i^{(p)}(\omega_m) = \varepsilon_0 \sum_{n_1, \dots, n_p} \sum_{i_1, \dots, i_p} \chi_{i, i_1, \dots, i_p}^{(p)}(\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_p}) E_{0i_1}(\omega_{n_1}) \dots E_{0i_p}(\omega_{n_p}) \quad (1.12)$$

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

$$\left\{ \begin{array}{l} \omega_m = \sum_{j=1}^p \omega_{n_j} \quad (1.13 - 1) \\ \vec{k}_m = \sum_{j=1}^p \vec{k}_{n_j} \quad (1.13 - 2) \end{array} \right.$$

Comme le montrent les équations (1.13), 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 (1.13-2) 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 \vec{k}_m égal à la somme des vecteurs d'onde des lasers impliqués dans l'expression (1.13-1).

3.2. Propriétés des susceptibilités non linéaires

Nous passons ici en revue quelques propriétés de symétrie des susceptibilités non linéaires $\vec{\chi}^{(p)}$, 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 dans le tenseur de susceptibilité [2,13-15]. Les propriétés les plus couramment utilisées sont les suivantes :

3.2.1. Réalité de la polarisation

La polarisation non linéaire et les champs électriques étant des quantités réelles, les équations (1.8) et (1.12) impliquent que l'on a :

$$\chi_{i, i_1, \dots, i_p}^{(p)}(-\omega_m; -\omega_{n_1}, \dots, -\omega_{n_p}) = \left[\chi_{i, i_1, \dots, i_p}^{(p)}(\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_p}) \right]^* \quad (1.14)$$

Cette propriété permet ainsi d'éliminer la moitié des termes de (1.12).

3.2.2. Symétrie intrinsèque de permutation

Les indices de sommation n_i et i_j figurant dans l'équation (1.12) étant des indices muets, l'expression (1.12) reste inchangée dans toute permutation du type :

$$\left\{ \begin{array}{l} n_j \leftrightarrow n_k \quad (1.15 - 1) \\ i_j \leftrightarrow i_k \quad (1.15 - 2) \end{array} \right.$$

En conséquence, il est commode de poser par convention :

$$\begin{aligned} & \chi_{i_1, i_1, \dots, i_j, \dots, i_k, \dots}^{(p)} \left(\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_j}, \dots, \omega_{n_k}, \dots \right) \\ &= \chi_{i_1, i_1, \dots, i_j, \dots, i_k, \dots}^{(p)} \left(\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_k}, \dots, \omega_{n_j}, \dots \right) \quad (1.16) \end{aligned}$$

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

3.2.3. Symétrie d'inversion

On dit qu'un matériau possède la symétrie d'inversion (on dit aussi qu'il est centrosymétrique) lorsque les constituants élémentaires responsables de sa réponse non linéaire sont globalement ou individuellement invariants par parité (c'est-à-dire l'échange de direction dans l'espace $\vec{r} \rightarrow -\vec{r}$). Le principe de Curie-Neumann impose que leurs propriétés physiques aient cette symétrie aussi. Donc, pour un tel matériau la polarisation doit nécessairement changer de signe (deux directions opposées étant rigoureusement équivalentes) lorsque le champ électrique change de signe aussi. Cette propriété implique qu'il ne peut y avoir de puissances paires du champ électrique ou de polarisation non linéaire d'ordre paire dans le développement de la polarisation (équation (1.12)). Notons qu'elle n'est valable que dans de l'approximation dipolaire. Ainsi, dans le cadre de cette approximation, pour un matériau possédant la symétrie d'inversion, les susceptibilités non linéaires d'ordre pair sont toutes nulles. La nonlinéarité non nulle d'ordre le plus bas est donc celle d'ordre 3.

En effet, supposons que nous ayons un matériau centrosymétrique soumis à deux champs électriques, et considérant l'expression de la polarisation non linéaire du second ordre représentée sur les deux schémas de la Figure 1.1 :

$$\vec{P}^{(2)} = \varepsilon_0 \tilde{\chi}^{(2)} : \vec{E}\vec{E} \quad (1.17 - 1)$$

$$\vec{P}^{(2)'} = \varepsilon_0 \tilde{\chi}^{(2)} : \vec{E}'\vec{E}' \quad (1.17 - 2)$$

Vu la géométrie des propriétés électroniques du système de la Figure 1.1, les champs électriques et les polarisations respectent les conditions suivantes :

$$\vec{E}' = -\vec{E} \quad (1.17 - 3)$$

$$\vec{P}^{(2)'} = -\vec{P}^{(2)} \quad (1.17 - 4)$$

d'où on tire immédiatement en considérant les expressions (1.17-1) et (1.17-2) :

$$\begin{aligned}
 \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)} : \vec{E}\vec{E} &= -\varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)} : \vec{E}'\vec{E}' \\
 \Leftrightarrow \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)} : \vec{E}\vec{E} &= -\varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)} : (-\vec{E})(-\vec{E}) \quad (1.17 - 5) \\
 \Leftrightarrow \vec{\chi}^{(2)} &= -\vec{\chi}^{(2)} \\
 \Leftrightarrow \vec{\chi}^{(2)} &= \vec{0}
 \end{aligned}$$

La seule solution pour la susceptibilité non linéaire du second ordre est donc nulle dans toutes les directions, ce qui signifie que les matériaux centrosymétriques n'ont pas de réponse non linéaire du second ordre dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique.

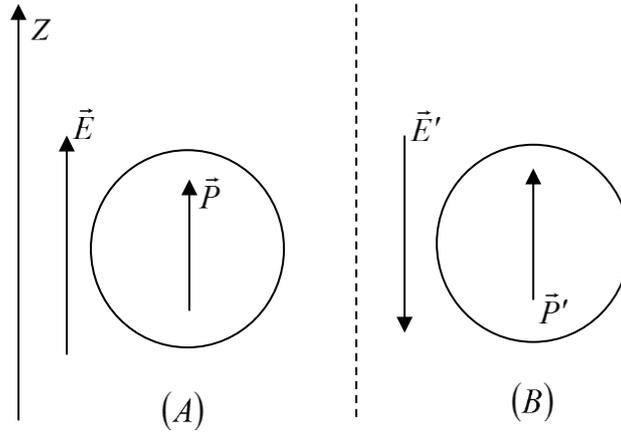


Figure 1.1 : Schémas illustrant la propriété de centrosymétrie au niveau des caractéristiques électroniques d'un système donné. Le point noir de chaque cercle est l'élément de symétrie bien connu appelé centre d'inversion.

(A) : champ électrique incident orienté selon $+Z$.

(B) : champ électrique incident orienté selon $-Z$.

3.2.4. Cas d'un milieu sans perte

Dans le cas où le milieu non linéaires 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 permuées des lors que l'on permute de la même façon les indices associés aux coordonnées cartésiennes :

$$\begin{aligned}
 &\chi_{i_1, i_1, \dots, i_j, \dots, i_k, \dots}^{(p)} \left(\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_j}, \dots, \omega_{n_k}, \dots \right) \\
 &= \chi_{i_1, i_1, \dots, i_k, \dots, i_j, \dots}^{(p)} \left(\omega_m; \omega_{n_1}, \dots, \omega_{n_k}, \dots, \omega_{n_j}, \dots \right) \quad (1.18)
 \end{aligned}$$

3.2.5. La symétrie de Kleinman [16]

Le fait que toutes les fréquences impliquées dans le processus non linéaires (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 avec une bonne approximation que les susceptibilités non linéaires sont indépendantes de la fréquence. Cette dernière propriété, combinée avec les relations (1.16) et (1.18), exprime le fait que les susceptibilités non linéaires sont invariantes par permutation quelconque des indices de coordonnées cartésiennes, sans changer les fréquences.

3.2.6. Symétrie Cristalline

La prise en compte des symétries du cristal diminue encore le nombre d'éléments indépendants dans les tenseurs de susceptibilités non linéaires. Plus le degré de symétrie du cristal est élevé, plus le nombre d'éléments non nuls et indépendants du tenseur de susceptibilité non linéaire est faible. Donc, tout dépend du groupe ponctuel auquel appartient la structure cristalline du matériau en question [2,13-15].

4. Les interactions optiques non linéaires

4.1. Les interactions optiques non linéaires paramétriques et non paramétriques

Comme nous l'avons dit, les susceptibilités optiques dans le domaine des fréquences sont, en général, des quantités complexes. Les susceptibilités non linéaires complexes peuvent s'exprimer comme $\vec{\chi}^{(n)} = \vec{\chi}^{(n)'} + i\vec{\chi}^{(n)''}$, où $\vec{\chi}^{(n)'}$ est la partie réelle et $\vec{\chi}^{(n)''}$ est la partie imaginaire. La partie imaginaire de la susceptibilité non linéaire est toujours associée à des résonances intrinsèques du matériau. De telles résonances se manifestent par des transitions entre les différents niveaux d'énergie du matériau. A proximité d'une fréquence de résonance, caractéristique d'une susceptibilité particulière, la partie imaginaire de cette susceptibilité se caractérise par l'apparition d'un pic tandis que la partie réelle manifeste un comportement dispersif. Les parties réelle et imaginaire de la susceptibilité non linéaire sont reliées par une relation semblable à celle de Kramers-Kronig, qui lie les parties réelle et imaginaire de la susceptibilité linéaire [2,13-15].

Une interaction optique caractérisée par une susceptibilité réelle ou par la partie réelle de la susceptibilité complexe est dite interaction paramétrique, tandis que celle associée à la partie imaginaire est dite non paramétrique. Dans un processus non paramétrique, l'état du matériau change et son énergie totale change aussi car ce processus est connecté à des transitions

résonantes dans le matériau. Dans un processus purement paramétrique, l'état du matériau et son énergie total restent inchangés car ce processus n'implique aucun échange d'énergie entre le champ optique et le matériau.

Dans un processus paramétrique non linéaire, il se produit un échange d'énergie entre les différentes fréquences à cause du couplage non linéaire entre elles, si bien que l'énergie totale des fréquences interagissantes reste conservée. Par exemple, dans un processus caractérisé par la partie réelle de $\vec{\chi}^{(2)}(\omega_3; \omega_1 + \omega_2)$, l'énergie optique peut être transférée des fréquences ω_1 et ω_2 vers la fréquence ω_3 , ou vice-versa. Par conséquent, l'énergie de chaque fréquence peut varier, mais l'énergie optique totale contenue dans les trois fréquences est conservée.

Les processus optiques non linéaires possèdent deux caractéristiques uniques. La première est la conversion de fréquence et la deuxième est la dépendance de certaines propriétés du matériau du champ optique. Tous les processus optiques non linéaires exhibent au moins l'une de ces deux caractéristiques.

La condition d'accord de phase n'est pas automatiquement satisfaite dans un processus paramétrique qui implique une conversion des fréquences optiques. Cependant, elle est automatiquement satisfaite dans un processus paramétrique qui n'implique aucune conversion d'énergie d'une fréquence à une autre. Elle est aussi satisfaite dans n'importe quel processus non paramétrique [2,13-15].

4.2. Les processus optiques non linéaires du second ordre

Les processus non linéaires du second ordre résultent de la polarisation d'ordre 2 induite dans le matériau. Selon l'équation générale (1.12), pour $n_p = 2$, on a en terme de composantes :

$$P_i^{(2)}(\omega_m) = \varepsilon_0 \sum_{i_1, i_2} \chi_{i, i_1, i_2}^{(2)}(\omega_m; \omega_{n_1}, \omega_{n_2}) E_{0i_1}(\omega_{n_1}) E_{0i_2}(\omega_{n_2}) \quad (1.19 - 1)$$

ou en termes de vecteur polarisation :

$$\vec{P}^{(2)}(\omega_m) = \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)}(\omega_m; \omega_{n_1}, \omega_{n_2}) : \vec{E}(\omega_{n_1}) \vec{E}(\omega_{n_2}) \quad (1.19 - 2)$$

Les indices (n_1, n_2) représentent les champs incidents et leurs fréquences (dans ce cas $n_1, n_2 = 1, 2$). Dans les équations (1.19) on a tenu compte de toutes les propriétés de la susceptibilité non linéaire $\vec{\chi}^{(2)}$. Dans l'expression (1.19-2), le développement de la somme sur n_1 et n_2 donne :

$$\begin{aligned}
 \vec{P}^{(2)}(\omega_m) &= \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)}(\omega_m; \omega_{n_1}, \omega_{n_2}) : \vec{E}(\omega_{n_1}) \vec{E}(\omega_{n_2}) \\
 &= \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_1) : \vec{E}(\omega_1) \vec{E}(\omega_2) + \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = 2\omega_1; \omega_1, \omega_1) : \vec{E}(\omega_1) \vec{E}(\omega_1) \\
 &+ \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = 2\omega_2; \omega_2, \omega_2) : \vec{E}(\omega_2) \vec{E}(\omega_2) + \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2) : \vec{E}(\omega_1) \vec{E}^*(\omega_2) \quad (1.20) \\
 &+ \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = -\omega_1 + \omega_2; -\omega_1, +\omega_2) : \vec{E}(\omega_1)^* \vec{E}(\omega_2) + \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = 0; -\omega_1, +\omega_1) : \vec{E}(\omega_1)^* \vec{E}(\omega_1) \\
 &+ \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = 0; -\omega_2, +\omega_2) : \vec{E}(\omega_2)^* \vec{E}(\omega_2) + \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1; \omega_1, 0) : \vec{E}(\omega_1) \vec{E}(\omega_2 = 0) \\
 &+ \varepsilon_0 \vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = \omega_2; \omega_2, 0) : \vec{E}(\omega_1 = 0) \vec{E}(\omega_2)
 \end{aligned}$$

Le tableau 1.1 résume les différents processus optique non-linéaires du second ordre. Dans l'expression (1.20), le même processus est repris pour les deux fréquences ω_1 et ω_2 et les champs $\vec{E}(\omega_{1,2} = 0)$ correspondent à des champs statiques. L'indice m a pris la valeur 3 qui indique la génération d'une troisième fréquence en plus des deux déjà existantes.

Comme indiqué dans le tableau 1.1, la susceptibilité qui contribue dans chacun de ces processus est la partie réelle de $\vec{\chi}^{(2)}$. Donc, ils sont tous de nature paramétrique et les fréquences impliquées dans les processus du second ordre d'intérêt pratique sont, généralement, très loin de toutes fréquences de résonance du milieu non linéaires.

Chaque processus cité dans le tableau est associé à un phénomène unique et possède ses applications spécifiques. A la base, ils sont tous des processus de conversion de fréquences paramétriques, généralement caractérisés par une susceptibilité réelle de la forme $\vec{\chi}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2)$. Les différences entre les processus dépendent des conditions expérimentales et des applications.

Processus	Acronyme anglais	$\vec{\chi}^{(2)}$
Génération de la seconde harmonique	Second Harmonic Generation (SHG)	$\vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = 2\omega; \omega, \omega)$
Génération de la somme de fréquence	Sum frequency-Generation (SFG)	$\vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2)$
Génération de la différence de fréquence	Difference-Frequency Generation (DFG)	$\vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 - \omega_2; \omega_1, -\omega_2)$
Redressement optique	Optical Rectification (OR)	$\vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = 0; \omega, -\omega)$

Effet Pockels	Pockels Effect	$\vec{\chi}^{(2)}(\omega_3 = \omega; \omega, 0)$
---------------	----------------	--

Tableau 1.1 : Quelques processus optiques non linéaires du

4.3. La génération de la seconde harmonique

4.3.1. Généralités

Dans le cas de la génération de fréquence, une onde optique de fréquence ω_3 est générée par l'interaction entre deux ondes optiques, de fréquences ω_1 et ω_2 inférieurs à ω_3 , avec le milieu non linéaire. La génération de second harmonique est le cas dégénéré de la génération de la somme de fréquence pour $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ et $\omega_3 = 2\omega$.

Dans le cas de la génération de second harmonique, on a besoin d'une seule onde optique incidente à la fréquence ω ou deux ondes optiques incidentes de même fréquence ω . C'est ce qu'on appelle la SHG à un seul faisceau et à deux faisceaux, respectivement. Dans ce travail, on a considéré la première technique. La génération de second harmonique assume donc la fonction de doublage de fréquence de l'onde optique incidente.

Ce processus de doublage de fréquence peut être représenté par le schéma de niveaux de la Figure 1.2, où deux photons de fréquence angulaire ω disparaissent pour donner naissance à un photon de fréquence double 2ω , par un processus quantique unique conservant l'énergie. Le niveau en trait plein représente le niveau fondamental de l'atome, les niveaux en traits pointillés sont des niveaux virtuels qui ne coïncident pas avec les niveaux excités de l'atome : c'est un phénomène non résonnant. Il implique uniquement la distorsion du nuage électronique et par conséquent présente des temps de réponse très courts ($\approx 10^{-15} s$) [17].

Comme on l'a déjà démontré, pour les milieux qui possèdent un centre d'inversion (milieux centrosymétriques), la susceptibilité du second ordre est nulle. Cela implique donc qu'il ne peut y avoir de source de polarisation non linéaire de volume dans ce cas. Par contre, la rupture de la centrosymétrie rencontrée à la surface de ces matériaux, ou à l'interface entre deux matériaux centrosymétriques de nature différente, génère une source importante de polarisation non linéaire de surface. La technique de la SHG est extrêmement sensible aux propriétés des surfaces et interfaces [18].

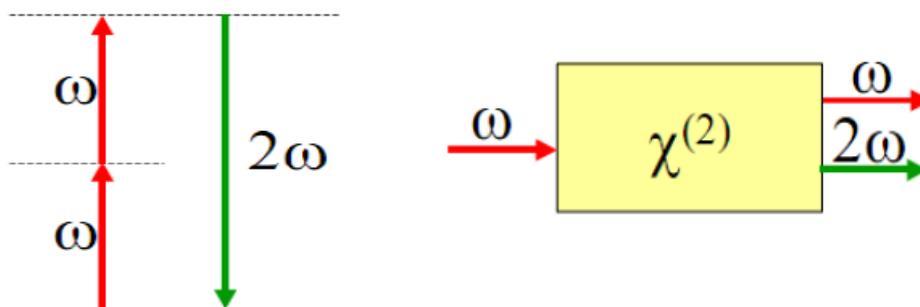


Figure 1.2 : Processus de la génération de second harmonique schématisant l'interaction de l'onde fondamentale ω avec un milieu non linéaire et les niveaux d'énergie impliqués.

4.3.2. La condition d'accord de phase

L'intensité du champ rayonné par une composante de la polarisation dépend crucialement de la relation de phase entre les dipôles dans le matériau. Le champ total rayonné par le milieu non linéaire est en effet égal à la somme des champs émis par chacun de ces dipôles, qui oscillent avec une phase dépendante du champ électrique auquel ils sont soumis. La variation spatiale de cette phase est décrite par le vecteur d'onde associé à la composante de polarisation. Ainsi, le champ de fréquence ω_m , émis par la composante de polarisation $\vec{P}(\omega_m)$, subira nécessairement un déphasage à la propagation caractérisé par un vecteur d'onde \vec{k}_m de module $k(\omega_m)$.

La condition pour que les champs rayonnés par les dipôles dans le matériau interfèrent de façon constructive est que le déphasage à la propagation, décrit par le vecteur d'onde \vec{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 \vec{k}_σ . En d'autres termes, il faut que ces vecteurs d'ondes vérifient :

$$\vec{k}_m = \vec{k}_n = \sum_i \vec{k}_{n_i} \quad (1.21)$$

Cette condition est appelée condition d'accord de phase. En termes de photons, la condition d'accords de phase s'interprète comme la conservation de l'impulsion.

Ce déphasage $\Delta\vec{k} = \vec{k}_n - \vec{k}_m$ peut atteindre 2π après avoir traversé une longueur spécifique du matériau. Cette longueur est appelée "longueur de cohérence (L_c)" et elle est définie de la façon suivante :

$$L_c = \frac{\pi}{\Delta k} \quad (1.22)$$

Contrairement au principe de conservation de l'énergie qui est toujours vérifié, l'accord de phase est une condition qui ne se réalise pas toujours. En effet, la vitesse de la lumière dans un matériau dispersif varie selon la longueur d'onde à cause de la variation de l'indice de réfraction. Dans certains cristaux non linéaires, une combinaison particulière des conditions d'orientation du cristal et de température fait en sorte que, à cause de la biréfringence, la lumière fondamentale et celle générée sont confrontées au même indice de réfraction et restent donc en phase en se propageant. Cette méthode est appelée "Accord de phase par biréfringence" (BPM pour acronyme anglais de biréfringent phase Matching). Sa découverte est attribuée à Joseph Paul D. Maker en 1962 [19].

Toujours dans la même année (1962), une nouvelle méthode d'accord de phase a été imaginée par Nicolas Bloembergen et John Armstrong et indépendamment par P. A. Franken. Cette méthode est appelée "Quasi-accord de phase" (QPM pour acronyme anglais de Quasi Phase Matching). Elle est basée sur la modulation périodique du signe du coefficient non linéaire dans le matériau. Le signe de la nonlinéarité du matériau est donc inversé à chaque longueur de cohérence. Ceci équivaut à rajouter une phase π au désaccord de phase, c'est-à-dire à renverser le sens du transfert d'énergie entre les ondes. Les interférences destructives qui ont normalement lieu à chaque longueur de cohérence sont supprimées, et la puissance des ondes générées peut croître continuellement à la traversée du milieu non linéaire [20, 21, 22].

4.3.3. Matrice contractée des susceptibilités

Les tenseurs de susceptibilité relient le vecteur polarisation au vecteur champ électrique, ils sont composés de 3^{n+1} composantes. La grandeur $\overleftrightarrow{\chi}^{(2)}$, qui est un tenseur de rang 3 est composé de 27 composantes. Notons que les indices (i, j, k) correspondent aux axes cristallographiques (x, y, z) du cristal. Le tenseur peut s'écrire comme suit $\overleftrightarrow{\chi}^{(2)}$:

$$\overleftrightarrow{\chi}^{(2)} = \begin{bmatrix} \chi_{xxx}^{(2)} & \chi_{xxy}^{(2)} & \chi_{xxz}^{(2)} \\ \chi_{xyx}^{(2)} & \chi_{xyy}^{(2)} & \chi_{xyz}^{(2)} \\ \chi_{xzx}^{(2)} & \chi_{xzy}^{(2)} & \chi_{xzz}^{(2)} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \chi_{yxx}^{(2)} & \chi_{yxy}^{(2)} & \chi_{yxz}^{(2)} \\ \chi_{yyx}^{(2)} & \chi_{yyy}^{(2)} & \chi_{yyz}^{(2)} \\ \chi_{yxx}^{(2)} & \chi_{yxy}^{(2)} & \chi_{yzz}^{(2)} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \chi_{zxx}^{(2)} & \chi_{zxy}^{(2)} & \chi_{zxx}^{(2)} \\ \chi_{zyx}^{(2)} & \chi_{zyy}^{(2)} & \chi_{zyz}^{(2)} \\ \chi_{zzx}^{(2)} & \chi_{zzy}^{(2)} & \chi_{zzz}^{(2)} \end{bmatrix} \quad (1.23)$$

Le tenseur de susceptibilité doit rester inchangé lors des opérations de symétrie autorisées pour le milieu. Cela réduit le nombre d'éléments indépendants et non nuls, comme on le verra ensuite.

A ce stade, nous introduisons une notation courante utilisée en optique non linéaire du second ordre. En effet, le tenseur de susceptibilité $\vec{\chi}^{(2)}$ est souvent représentée par ce qu'on appelle le tenseur contracté des susceptibilités $\vec{d}^{(2)}$, tel que [2, 13-15] :

$$\vec{d}^{(2)} = \frac{1}{2} \vec{\chi}^{(2)} \quad (1.24 - 1)$$

Ou en termes de composantes :

$$d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)} \quad (1.24 - 2)$$

Le facteur (1/2) est le résultat d'une convention. Dans ce cas, la polarisation non linéaire s'écrit :

$$\vec{P}^{(2)}(\omega_{n_h} + \omega_{n_l}) = \epsilon_0 \sum_{jk} \sum_{(n_h n_l)} 2d_{ijk} E_j(\omega_{n_h}) E_k(\omega_{n_l}) \quad (1.25)$$

En faisant appel à la symétrie de permutation intrinsèque, les deux derniers indices (j, k) peuvent être contracté et représentés par un seul indice :

$$i : \begin{cases} x & 1 \\ y & 2 \\ z & 3 \end{cases} \quad jk : \begin{cases} xx & 1 \\ yy & 2 \\ zz & 3 \\ yz = zy & 4 \\ xz = zx & 5 \\ xy = yx & 6 \end{cases} \quad (1.26)$$

Par exemple, $d_{xyz} = d_{xzy} = d_{14}$ et $d_{zxx} = d_{31}$. En appliquant cette notation, le tenseur de susceptibilité se réduit d'un tenseur de 27 éléments à une matrice de 18 éléments :

$$\vec{d}^{(2)} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \quad (1.27)$$

En utilisant la symétrie de Kleinman, les 18 éléments de $\vec{d}^{(2)}$ ne sont pas tous indépendants ($d_{12} = d_{26}$ et $d_{14} = d_{25}$). Alors, il ne reste que 10 éléments indépendants :

$$\vec{d}^{(2)} = \begin{pmatrix} \mathbf{d}_{11} & \mathbf{d}_{12} & \mathbf{d}_{13} & \mathbf{d}_{14} & \mathbf{d}_{15} & \mathbf{d}_{16} \\ d_{16} & \mathbf{d}_{22} & \mathbf{d}_{23} & \mathbf{d}_{24} & d_{14} & d_{12} \\ d_{15} & d_{24} & \mathbf{d}_{33} & d_{23} & d_{13} & d_{14} \end{pmatrix} \quad (1.28)$$

La conséquence majeure de la symétrie de Kleinman est qu'elle nécessite que toutes les composantes de $\vec{\chi}^{(2)}$ dans les groupes ponctuels de 422 et 622 disparaissent. Par conséquent, aucun signal SHG ne doit être observé pour ces deux groupes ponctuels. Cependant, il existe de nombreux exemples désapprouvant cette règle, car il est assez rare qu'aucune absorption ne se produise pas.

Selon le principe de Neumann : les éléments de symétrie de toute propriété physique d'un cristal doivent inclure les éléments de symétrie du groupe ponctuel du cristal. Les propriétés physiques peuvent posséder, et possèdent souvent, plus de symétrie que le groupe ponctuel. Par conséquent, d'autres simplifications des tenseurs de susceptibilité peuvent être obtenues sur la base des propriétés de symétrie spécifiques à chaque matériau, telles que les symétries de l'axe de rotation et du plan du miroir. Comme on l'a déjà signalé, le tenseur de susceptibilité d'ordre 2 des matériaux centrosymétriques est nul. Pour les matériaux non centrosymétriques, le tenseur de susceptibilité est non nul sauf pour les cristaux du groupe ponctuel cubique 432 qui a toutes les composantes égales à zéro. Les formes de la matrice $\vec{d}^{(2)}$ pour divers cristaux de plusieurs classes de symétrie suivies de la forme de cette matrice lorsque la symétrie de Kleinman s'applique, sont très abondantes dans la littérature [2,13-15].

Pour conclure, le tenseur de troisième rang $\vec{\chi}^{(2)}$ est composé de 27 éléments indépendants. Lorsque la notation contractée est utilisée, seuls 18 éléments sont indépendants. De plus, lorsque la symétrie de Kleinman est valide, seuls 10 éléments sont indépendants. Enfin, toute symétrie cristalline du matériau non linéaire peut réduire davantage ce nombre.

Nous pouvons décrire la polarisation non linéaire conduisant à la génération de la deuxième harmonique en termes du tenseur de susceptibilité contractée par la relation suivante :

$$\vec{P}^{(2)}(2\omega) = 2\varepsilon_0 \vec{d}^{(2)} : \vec{E}(\omega)\vec{E}(\omega) \quad (1.29 - 1)$$

ou en termes de composantes :

$$P_i^{(2)} = 2\varepsilon_0 \sum_l d_{il} E_l(\omega) E_l(\omega) \quad (1.29 - 2)$$

Sous forme matricielle, dans le cas où la symétrie de Kleinman est valide, l'équation (1.29-1) se présente sous la forme :

$$\begin{pmatrix} P_x^{(2)}(2\omega) \\ P_y^{(2)}(2\omega) \\ P_z^{(2)}(2\omega) \end{pmatrix} = 2\varepsilon_0 \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x^2(\omega) \\ E_y^2(\omega) \\ E_z^2(\omega) \\ 2E_y(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_z(\omega) \\ 2E_x(\omega)E_y(\omega) \end{pmatrix} \quad (1.29 - 3)$$

5. Milieux optiques anisotropes

5.1. Propriétés optiques linéaires

Un milieu diélectrique est dit anisotrope si ses propriétés optiques macroscopiques dépendent de la direction. Dans un tel milieu dit biréfringent, l'indice de réfraction n'est pas unique, il

dépend des directions de propagation et de polarisation du rayon lumineux. Les propriétés macroscopiques d'un matériau sont, bien entendu, et en fin de compte régies par ses propriétés microscopiques : la forme et l'orientation des molécules individuelles et l'organisation de leurs centres dans l'espace [23].

Dans un milieu anisotrope linéaire (un cristal par exemple), chaque composante du champ électrique \vec{D} est une combinaison linéaire des trois composantes de l'induction électrique \vec{E} :

$$\vec{D} = \vec{\epsilon} \vec{E} \quad (1.30 - 1)$$

ou en termes de composantes :

$$D_i = \sum_j \epsilon_{ij} E_j \quad (1.30 - 2)$$

Les indices $i, j = 1, 2, 3$ se réfèrent respectivement aux composantes x, y et z . Les propriétés diélectriques du milieu sont donc caractérisées par une matrice 3×3 composée de neuf coefficients, ϵ_{ij} , qui forment le tenseur de permittivité électrique $\vec{\epsilon}$, qui est un tenseur de second rang.

Pour la plupart des milieux diélectriques, le tenseur de permittivité électrique est symétrique, c'est-à-dire $\epsilon_{ij} = \epsilon_{ji}$. Cela signifie que la relation entre les vecteurs \vec{D} et \vec{E} est réciproque, en d'autres termes, leur rapport reste le même si leurs directions sont échangées. Cette symétrie est respectée pour les matériaux diélectriques non magnétiques qui ne présentent pas d'activité optique, et en l'absence de champ magnétique externe. Avec cette symétrie, le milieu est caractérisé par seulement six nombres indépendants dans un système de coordonnées arbitraire. Ce nombre peut être réduit en tenant compte de la symétrie cristalline [23].

Les éléments du tenseur de permittivité et leur nombre dépendent de la façon dont le système de coordonnées est choisi par rapport à la structure cristalline. Cependant, on peut toujours trouver un système de coordonnées pour lequel les éléments hors diagonale du tenseur de permittivité disparaissent, de sorte que :

$$D_1 = \epsilon_1 E_1 \quad (1.31 - 1)$$

$$D_2 = \epsilon_2 E_2 \quad (1.31 - 2)$$

$$D_3 = \epsilon_3 E_3 \quad (1.31 - 3)$$

où $\varepsilon_1 = \varepsilon_{11}$, $\varepsilon_2 = \varepsilon_{22}$ et $\varepsilon_3 = \varepsilon_{33}$. D'après les relations (1.31), \vec{E} et \vec{D} sont parallèles le long de ces directions particulières de sorte que si, par exemple, \vec{E} pointe dans la direction x , alors \vec{D} doit aussi le faire. Ce système de coordonnées définit les axes principaux et les plans principaux du cristal. Dans la suite, on supposera le système de coordonnées (x, y, z) , qui est noté de manière équivalente (x_1, x_2, x_3) , est supposé confondu ou parallèle avec les axes principaux du cristal. Ce choix simplifie toutes les analyses sans perte de généralité. Les permittivités où $\varepsilon_1 = \varepsilon_{11}$, $\varepsilon_2 = \varepsilon_{22}$ et $\varepsilon_3 = \varepsilon_{33}$ correspondent à des indices de réfraction :

$$n_1 = \sqrt{\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_0}} \quad (1.32 - 1)$$

$$n_2 = \sqrt{\frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_0}} \quad (1.32 - 2)$$

$$n_3 = \sqrt{\frac{\varepsilon_3}{\varepsilon_0}} \quad (1.32 - 3)$$

Ces trois quantités sont connues sous le nom d'indices de réfraction principaux.

Les cristaux dans lesquels les trois indices de réfraction principaux sont différents sont dits biaxiaux. Pour les cristaux avec certaines symétries, à savoir un seul axe de symétrie triple, quadruple ou sextuple, deux des indices de réfraction sont égaux ($n_1 = n_2$) et le cristal est dit uniaxial. Dans ce cas, les indices sont généralement notés $n_1 = n_2 = n_o$ et $n_3 = n_e$, qui sont respectivement appelés indices ordinaire et extraordinaire, pour des raisons qui apparaîtront sous peu. Le cristal est dit uniaxial positif si $n_e > n_o$, et uniaxial négatif si $n_e < n_o$. L'axe z d'un cristal uniaxial est appelé axe optique. Dans certains cristaux encore plus symétriques (ceux à mailles cubiques par exemple), les trois indices sont égaux et le milieu est optiquement isotrope.

Il existe plusieurs représentations du tenseur de permittivité. Parmi-elles, on distingue la représentation quadratique [23]. Si les axes principaux servent de repère, on obtient :

$$\frac{x_1^2}{n_1^2} + \frac{x_2^2}{n_2^2} + \frac{x_3^2}{n_3^2} = 1 \quad (1.33)$$

qui représente l'équation cartésienne d'une ellipse avec des axes de demi-longueurs n_1 , n_2 et n_3 .

Les propriétés optiques du cristal (les directions des axes principaux et les valeurs des indices de réfraction principaux) sont donc complètement décrites par l'ellipsoïde d'indice (Figure 1.3 [23]). Pour un cristal uniaxial, l'ellipsoïde d'indice se réduit à un ellipsoïde de révolution ; pour un milieu isotrope, elle devient une sphère.

Nous allons nous intéresser maintenant aux règles qui régissent la propagation de la lumière dans les cristaux anisotropes.

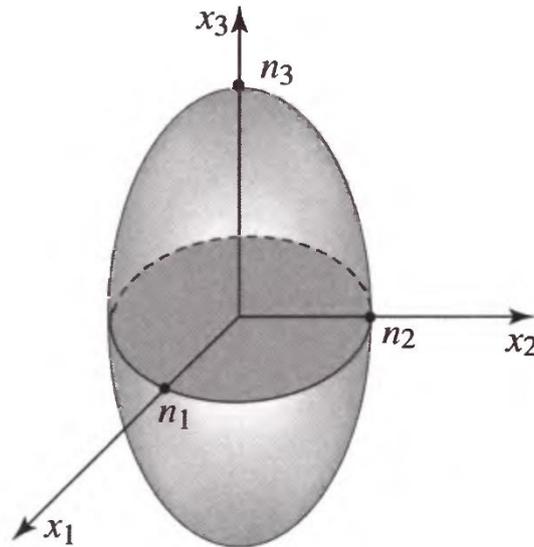


Figure 1.3 : Ellipsoïde des indices [23].

On démontre que lorsqu'une onde plane de pulsation ω se propage dans un milieu anisotrope dans une certaine direction de vecteurs unitaire \vec{u} ($\vec{k} = k\vec{u}$), on obtient deux modes propres avec des valeurs d'indice de réfraction n_a et n_b , correspondant à deux polarisations propres du champ électrique. Les modes propres du milieu anisotrope se propagent indépendamment et sans changement de l'état de polarisation, c'est pour cette raison qu'on les appelle également des modes normaux. Les valeurs des indices de réfraction n_a et n_b peuvent être déterminés analytiquement ou à l'aide d'une procédure géométrique sur la base de l'ellipsoïde des indices [23].

Dans le cas d'un cristal uniaxial ($n_1 = n_2 = n_o$ et $n_3 = n_e$), l'ellipsoïde d'indice de la figure 1.3 se réduit à un ellipsoïde de révolution. Pour une onde plane dont la direction de propagation fait un angle θ avec l'axe optique, l'ellipse d'indice a des demi-axes de longueurs n_o et $n(\theta)$, tels que :

$$\frac{1}{n^2(\theta)} = \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} \quad (1.34)$$

de sorte que les modes propres ont des indices de réfraction $n_b = n_0$ et $n_a = n(\theta)$. Le premier mode, appelé onde ordinaire, a un indice de réfraction indépendant de θ . Le deuxième mode, appelé onde extraordinaire, a un indice de réfraction $n(\theta)$ qui varie de n_0 quand $\theta = 0^\circ$, à n_e quand $\theta = 90^\circ$. Le vecteur \vec{D} de l'onde ordinaire est normal au plan défini par l'axe optique (axe z) et la direction de propagation de l'onde \vec{k} , et les vecteurs \vec{E} et \vec{D} sont parallèles. L'onde extraordinaire, par contre, a un vecteur \vec{D} qui est normal à \vec{k} et se situe dans le plan (\vec{k}, z) , et \vec{E} n'est pas parallèle à \vec{D} .

5.2. Propriétés optiques non linéaires

Dans cette section, il s'agit essentiellement d'étudier le phénomène de génération de la seconde harmonique dans les cristaux anisotrope. En se basant sur la théorie des ondes couplées [2,13-15,24], on montre que l'intensité seconde harmonique générée par un cristal non centrosymétrique est donnée par l'expression suivante [2,13-15,24] :

$$I^{2\omega} = \frac{\eta_0}{2} \frac{\omega^2 (\chi_{eff}^{(2)})^2 L^2}{n_{2\omega} n_\omega^2} I_\omega^2 \frac{\sin^2\left(\frac{1}{2}\Delta k L\right)}{\left(\frac{1}{2}\Delta k L\right)^2} \quad (1.35)$$

où $n_{2\omega}$ et n_ω sont les indices de réfraction linéaires aux fréquences ω et 2ω , respectivement, L l'épaisseur de l'échantillon, $\Delta k = k_{2\omega} - k_\omega$ le désaccord de phase, I_ω l'intensité de l'onde à la fréquence ω , $\chi_{eff}^{(2)}$ le coefficient effectif de la susceptibilité [2,13-15] et η_0 le coefficient de conversion défini par :

$$\eta_0 = \frac{I^{2\omega}(l=L)}{I^\omega(l=0)} \quad (1.36)$$

Cette conversion est maximale lorsque le désaccord de phase est nul. En examinant l'équation (1.35) on s'aperçoit que la nature de la solution dépend essentiellement de la valeur du facteur $\Delta k = k_{2\omega} - k_\omega$. La condition d'accord ou de synchronisation de phase s'écrit :

$$k_{2\omega} = k_\omega \quad (1.37 - 1)$$

ou en d'autres termes

$$n_{2\omega} = n_\omega \quad (1.37 - 2)$$

Dans ce cas, l'onde fondamentale et sa seconde harmonique se propagent à la même vitesse, elles restent toujours en phase et la génération peut se produire de manière très efficace (toutes les contributions sont additionnées). Par contre, si les deux ondes se propagent à des vitesses différentes, elles se retrouvent tantôt en phase et tantôt en opposition de phase. Ceci donne lieu

à une suite d'interférences constructives et destructives décrites par l'oscillation du terme en sinus carré dans l'expression (1.35). Deux maxima voisins de cette modulation spatiale sont séparés par la longueur de cohérence :

$$L_c = \frac{2\pi}{\Delta k} = \frac{2\pi}{k_{2\omega} - k_\omega} = \frac{\lambda}{2(n_{2\omega} - n_\omega)} \quad (1.38)$$

qui, pour des valeurs typiques de la dispersion ($n_{2\omega} - n_\omega = 10^{-2}$) est de l'ordre de 100 μm [14]. La longueur de cohérence donne en fait la longueur maximale du cristal qui participe de façon efficace à la génération de la seconde harmonique. Si, par contre, on réussit à remplir la condition de synchronisation de phase, l'expression (1.35) s'écrit :

$$I^{2\omega} = \frac{\eta_0}{2} \frac{\omega^2 (\chi_{eff}^{(2)})^2 L^2}{n_{2\omega} n_\omega^2} I_\omega^2 \quad (1.39)$$

et toute la longueur du cristal peut être utilisée pour la génération (notons que pour un cristal de 2 cm on obtiendrait un accroissement de l'intensité de l'ordre de 4.104 par rapport à l'exemple précédent). On remarque que la condition (1.37-2) n'est pas en général vérifiée à cause de la dispersion des matériaux dans la région de la dispersion normale on a $n_{2\omega} > n_\omega$.

Pour surmonter cette difficulté, l'une des méthodes consiste à prendre l'avantage de la biréfringence des cristaux [25,26]. Imaginons que l'onde fondamentale possède la polarisation ordinaire et que sa seconde harmonique possède la polarisation extraordinaire dans un cristal uniaxe négatif ($n_e < n_o$) : leurs polarisations sont mutuellement perpendiculaires (à noter que ce choix dépend des coefficients $\chi_{ijk}^{(2)}$ disponibles non nuls : par exemple, l'élément $\chi_{111}^{(2)}$ ne donne que des polarisations parallèles aux fréquences ω et 2ω). On parle alors de l'interaction oo-e (deux ondes ordinaires à la fréquence ω sont transformées en une onde extraordinaire à la fréquence 2ω). Il existe en général une direction (formant l'angle θ avec l'axe optique) où :

$$n_{e,2\omega}(\theta) = n_{o,\omega} \quad (40)$$

Notons que pour un cristal uniaxe positif, on chercherait la condition $n_{o,2\omega} = n_{e,\omega}(\theta)$. La valeur de l'indice de réfraction $n_e(\theta)$ est donnée par la formule (1.34) ; l'équation (1.40) prend alors la forme :

$$\frac{1}{n_{o,\omega}^2} = \frac{\cos^2 \theta}{n_{o,2\omega}^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_{e,2\omega}^2} \quad (1.40 - 1)$$

qui donne comme solution :

$$\sin^2 \theta = \frac{n_{o,\omega}^{-2} - n_{o,2\omega}^{-2}}{n_{e,2\omega}^{-2} - n_{o,2\omega}^{-2}} \quad (1.40 - 2)$$

Pour préparer un cristal doubleur de fréquence, il faut d'abord choisir un matériau convenable, c.-à-d. un matériau biréfringent qui possède au moins un coefficient $\chi_{ijk}^{(2)}$ grand et utilisable pour l'interaction oo-e. Ensuite, il faut le tailler pour que la normale aux faces d'entrée et de sortie fasse l'angle θ (donné par (1.40-2) avec l'axe optique. Si cette normale coïncide avec l'axe z , on parle alors qu'un quartz z -cut, et le même raisonnement s'applique dans le cas des axes y et x . Enfin, il faut l'orienter convenablement dans le plan latéral par rapport à la polarisation incidente de l'onde à la fréquence ω .

5.3. Propriétés optiques du quartz

Le quartz est la forme cristalline du SiO_2 et il est l'un des minéraux les plus abondants de la croûte terrestre. Le quartz est un oxyde thermiquement stable qui présente des propriétés optiques et électriques intéressantes, qui, associées à une résistance élevée aux attaques chimiques, en ont fait l'un des matériaux largement utilisés dans de nombreuses applications, notamment la microélectronique, les matériaux de construction, l'optique intégrée, la spectroscopie et autres [27,28]. Le quartz existe sous deux formes différentes : le quartz alpha (α - SiO_2) qui est stable dans des conditions normales de pression et de température, tandis que le quartz bêta (β - SiO_2) est une phase à haute température. La transformation du quartz alpha en quartz bêta se produit à la température 573 °C et à la pression atmosphérique.

Concernant la structure cristalline du quartz, les deux formes de quartz appartiennent aux classes de cristaux trapézoédriques. Le α - SiO_2 appartient à la classe 32 dans le système cristallin trigonal et au groupe d'espace $P3_121$, tandis que le β - SiO_2 appartient à la classe 622 dans le système cristallin hexagonal et au groupe d'espace $P3_221$. La figure 1.4 montre la structure cristalline du quartz alpha et définit les vecteurs de réseau conventionnels ($\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$ et \vec{c}) et les axes cartésiens (X, Y et Z) [29]. Le quartz a présente une triple symétrie caractéristique autour de son axe optique (axe c) qui est perpendiculaire aux plans prismatiques. Perpendiculairement à l'axe c , se trouvent les trois axes X électriquement équivalents, chacun avec une double symétrie, et trois axes Y mécaniquement équivalents.

La cellule élémentaires du quartz alpha a des dimensions de $a = b = c = 4.91 \text{ \AA}$ et $c = 5.41 \text{ \AA}$, et se compose de trois groupes SiO_2 tournés l'un par rapport à l'autre d'un angle de 120° . La structure atomique du quartz est telle que chaque atome de silicium est entouré d'un tétraèdre régulier de quatre atomes d'oxygène liés de manière covalente. La figure 1.5 représente la structure cristalline du quartz [29].

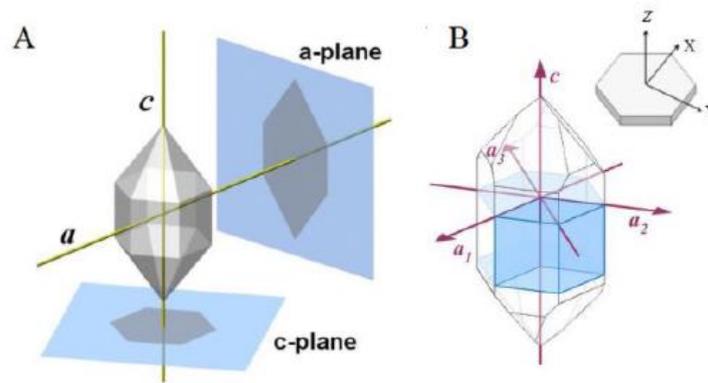


Figure 1.4 : Forme cristalline du quartz alpha. (A) Projections de la forme du cristal de quartz sur les plans a et c. (B) définition des vecteur du réseau cristallin et des coordonnées cartésiennes [29].

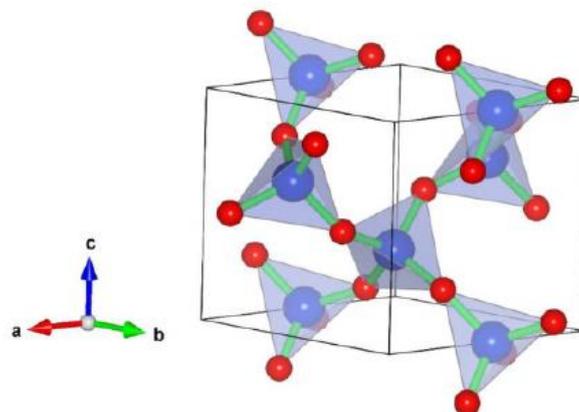


Figure 1.5 : Structure cristalline du Quartz [29].

La structure cristalline définit non seulement les symétries d'un matériau, mais joue également un rôle important dans ses propriétés. Le quartz, étant un matériau anisotrope, peut présenter des propriétés physiques anisotropes ou dépendantes de la direction. Ces propriétés anisotropes comprennent la réfraction, la biréfringence, l'activité optique, la dureté, la conductivité thermique, la piézoélectricité et la permittivité relative [30,31].

Le tableau représente quelques propriétés optiques linéaires et non linéaires du quartz alpha [32]. Notons quelques propriétés optiques dépendent de la longueur d'onde ou de la température, et nous avons donné leurs valeurs pour une longueur d'onde ou une température bien définies.

Indice de réfraction	$n_o = 1.5445 ; n_e = 1.5533$
Biréfringence	$\Delta n = n_e - n_o = 0.0091 ;$ Uniaxe positif
Dispersion	$2\nu_z \sim 0 - 10^\circ$
Polychroïsme	Faible

Trait	Blanc
Transparence	Transparent à opaque
Coefficient d'absorption linéaire	$\alpha = 1 \text{ cm}^{-1}$ ($\lambda = 2.9 \text{ }\mu\text{m}$) Le long de l'axe c
Coefficient d'absorption à deux photons	$\beta = 4 \cdot 10^{-12} \text{ m/W}$ ($\lambda = 0.216 \text{ }\mu\text{m}$) Le long de l'axe c
Activité optique	$\rho = 46.34 \text{ deg/mm}$ ($\lambda = 0.414768 \text{ }\mu\text{m}$) ($T = 300 \text{ K}$)
Coefficient non linéaire	$d_{11} = 0.30 \text{ pm/V} = 0.096 \text{ pm/statvolt}$ ($\lambda = 1.064 \text{ }\mu\text{m}$)

Tableau : quelques propriétés optiques linéaires et non linéaires du quartz alpha [32].

La mesure de l'indice non linéaire et de la susceptibilité non linéaire du SiO_2 est d'une grande importance, car ce matériau compose une très grande partie des systèmes optiques. L'indice de réfraction du SiO_2 varie selon sa structure (cristalline, comme dans le quartz, ou amorphe), son niveau de dopage ou encore sa méthode de fabrication (particulièrement dans le cas des couches minces) [33]. L'indice non linéaire de la silice est soumis aux mêmes considérations. De façon générale, la susceptibilité non linéaire d'ordre 2 du SiO_2 est nulle ou très faible, car c'est un matériau centrosymétrique sur une échelle de plusieurs molécules [34]. Une exception notable concernant la susceptibilité non linéaire d'ordre 2 est le quartz qui, par sa structure cristalline, est non centrosymétrique. Le quartz est d'ailleurs souvent utilisé comme matériau de référence dans des expériences de génération de second harmonique [35,36,37]. La susceptibilité non linéaire d'ordre 3 de la silice est quant à elle non nulle. A l'image de son absorption linéaire dans la partie visible du spectre électromagnétique, l'absorption non linéaire du SiO_2 est généralement faible.

Chapitre 2

Modélisation de la génération de la seconde harmonique dans les cristaux de quartz

1. Introduction

Dans ce second chapitre, nous allons tout d'abord décrire le dispositif expérimental le plus récent et complet qui est utilisé dans les mesures SHG, et en particulier les mesures SHG résolues en polarisation [35]. Ensuite, nous allons aborder le formalisme des vecteurs et matrices de Jones utilisée pour la représentation des états de polarisation d'un faisceau optique et les modifications que subissent ces états lors du passage du faisceau à travers différents système optiques. Enfin, nous utiliserons ce formalisme pour décrire la propagation du faisceau incident, délivré par la cavité laser, à travers les divers systèmes optiques formant le dispositif expérimental SHG, afin d'obtenir l'expression de l'intensité SHG générée par l'échantillon.

2. Dispositif expérimental

2.1.Introduction

Grâce notamment aux travaux de A. Persoons *et al.* [37], le dispositif expérimental de la génération de la seconde harmonique est très bien documenté et a subi peu de modification dans son principe à travers les années. L'expérience consiste à faire diffuser un faisceau laser de fréquence fondamentale (ω) par un échantillon et de récolter le rayonnement diffusé à la fréquence harmonique (2ω) dans une direction particulière. Les différences observées entre chaque dispositif SHG sont particulièrement localisées au niveau de la source laser, qui peut avoir des propriétés différentes en fonction de l'échantillon étudié et de la détection, qui est adaptée aux propriétés du rayonnement harmonique (dépendance en longueur d'onde, flux de photons, ...). Néanmoins, dans chaque dispositif SHG, la source laser est une source pulsée de forte puissance crête de sorte à obtenir des effets non linéaires du second ordre. Le système de détection doit être très sensible dans le cas où on s'attend à un faible signal en raison des propriétés d'incohérence du signal SHG ou de la symétrie globalement centrosymétrique. On note enfin que la plupart du temps, l'observation du rayonnement harmonique est réalisée à 90° par rapport à l'axe du faisceau incident. C'est la configuration de la mesure classique dite HRS (acronyme anglais de Hyper Rayleigh Scattering pour diffusion Hyper Rayleigh). Néanmoins, on peut aussi observer le rayonnement harmonique dans une configuration en

transmission, mais les propriétés du signal observé seront différentes [38]. Dans ce cas, on parle beaucoup plus de mesure SHG et c'est la configuration que nous allons adopter et décrire dans ce travail.

2.2.Laser et optiques

Nous débutons par la description de la source laser. Pour réaliser les expériences SHG, il est nécessaire d'utiliser une source laser pulsée. Nous prenons comme exemple un oscillateur femtoseconde Titane-Saphir pompé par un laser continu [35]. Ce dernier délivre une puissance de 5 W à 532 nm. En sortie de l'oscillateur, on obtient des impulsions d'une durée d'environ 180 fs et d'une puissance moyenne d'environ 500 mW autour de 800 nm à la fréquence de répétition de 76 MHz. Il est possible de travailler dans deux zones spectrales différentes : d'une part 750-900 nm avec un optimum à 800 nm et d'autre part 950-1050 nm avec un optimum à 970 nm en utilisant un jeu d'optiques propre au domaine spectral. L'utilisation de ce type de source est motivée par plusieurs raisons. Tout d'abord, comme établi précédemment, la diffusion de second harmonique dépend quadratiquement de l'intensité d'excitation. Il est donc nécessaire d'avoir une intensité crête la plus importante possible. Ensuite, il faut également que l'énergie absorbée par l'échantillon soit la plus faible possible afin de ne pas le détruire ou provoquer des échauffements dommageables au bon déroulement de l'expérience.

A la sortie du laser, on dispose un isolateur de Faraday qui permet d'éviter des retours du faisceau vers la cavité. Un hacheur optique permet de réaliser un comptage de photons à portes dans le but d'éliminer en temps réel le bruit de fond, le principe étant détaillé dans le paragraphe suivant. Ce hacheur optique est une roue alternativement et régulièrement pleine et évidée tournant à une certaine fréquence.

Si la taille de l'échantillon à étudier est très petite (des nanoparticules par exemple), le faisceau fondamentale doit être focalisé au moyen d'un objectif de microscope et le faisceau harmonique généré doit être également collecté par un deuxième objectif de microscope. Une lame demi-onde permet de faire varier l'angle de polarisation du faisceau fondamental. Cette lame est montée sur une platine de rotation motorisée, automatisée et contrôlée, par un programme informatique. A la suite de celle-ci, on dispose un cube polariseur (CP) dans le but de faire varier la puissance du faisceau incident. La polarisation du signal SHG généré par l'échantillon est sélectionnée à l'aide d'un ensemble lame demi-onde - cube polariseur.

Un filtre de fréquence est disposé avant le premier objectif de microscope dans le but d'éliminer tout signal harmonique parasite généré avant l'échantillon par les éléments optiques précédant l'échantillon ainsi que les résidus du faisceau de la pompe. En particulier, la lame demi-onde a une forte section efficace pour la génération de second harmonique car elle est constituée pour

une grande partie d'une lame de quartz cristalline. Un autre filtre de fréquence est placé après le deuxième objectif de microscope dans le but d'éliminer le signal fondamental. L'intensité SHG est focalisée par une lentille à l'entrée d'un monochromateur. Cette lentille est destinée à former une image du point focal sur la fenêtre d'entrée du monochromateur. Elle est située à une distance égale à la distance focale afin d'obtenir un faisceau parallèle. Le monochromateur est couplé à un photomultiplicateur lui-même couplé à un compteur de photons. L'échantillon est disposé sur une platine se déplaçant dans les trois dimensions, elle-même contrôlée par un programme informatique, de manière à pouvoir aligner l'échantillon sur le point de focalisation du faisceau incident. Enfin, l'alignement du faisceau laser avec la normale à l'échantillon est soigneusement réglé à l'aide de la réflexion sur une grande distance. Tout ce dispositif est représenté sur la Figure 2.1, où nous avons représenté le faisceau fondamental en rouge et le faisceau harmonique en bleu [35].

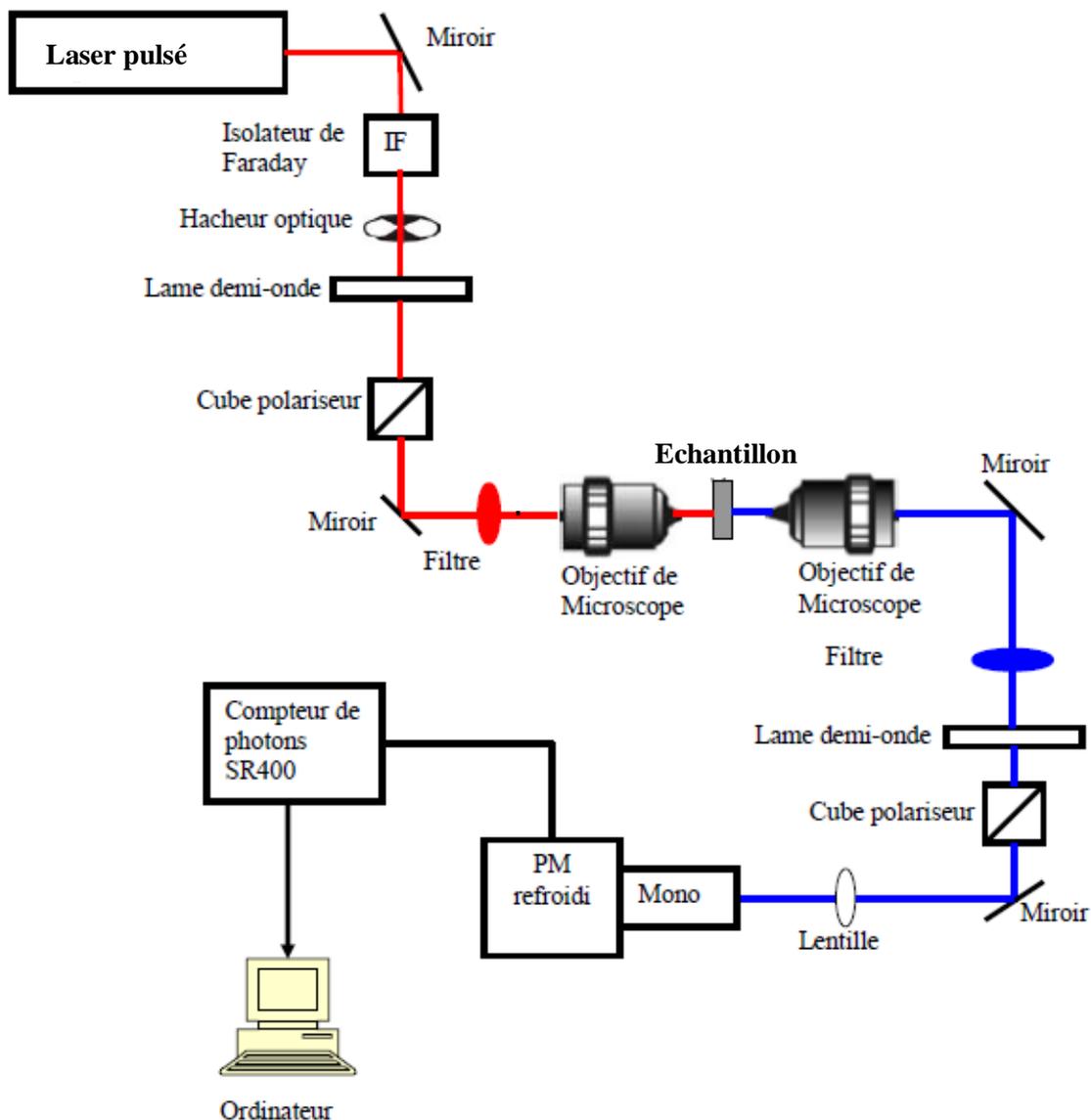


Figure 2.1 : Dispositif expérimental pour les mesures SHG [35]

2.3.Appareils de détection

Le monochromateur permet une sélection spectrale du signal non linéaire dans la zone spectrale correspondant à la raie SHG. Le signal ainsi sélectionné est détecté par un photomultiplicateur refroidi puis envoyé dans un compteur de photons. Le compteur de photon réalise un comptage à porte sur 2 voies, l'une pour le signal et le bruit, l'autre pour le bruit uniquement.

Le compteur de photons reçoit une série de pulses correspondant aux photons de signal ou de bruit. Le compteur de photons étant synchronisé avec le hacheur optique, l'ouverture de portes sur deux voies indépendantes réalise un comptage à deux voies, l'une pour le signal total (quand la porte du hacheur est ouverte, le laser produit des photons de signal à la fréquence harmonique en plus du bruit) et l'autre pour le bruit uniquement (quand la porte du hacheur est fermée, seuls les photons de bruit sont comptés). Il suffit ensuite de soustraire le comptage de la première et de la seconde voie pour obtenir le vrai signal. Il faut cependant être attentif car les deux mesures ne sont pas simultanées et le niveau de bruit peut être différent entre deux ouvertures de porte du hacheur. C'est pour cela qu'il est préférable de prendre la moyenne des deux voies sur un grand ensemble de tirs laser.

Le photomultiplicateur convertit les photons en impulsions de courant électrique mais il existe toujours des impulsions parasites. Afin d'être sûrs que le pulse de courant détecté provient bien d'un photon, un seuil est fixé au-dessus duquel toute impulsion est attribuée au comptage d'un photon. En dessous, le comptage est attribué à un événement de bruit. Le but de cette opération est de supprimer toutes les contributions photoniques, thermiques ou électriques qui peuvent contribuer au bruit. L'étape de fixation de ce seuil doit donc être réalisée avec précautions pour ne pas placer le seuil trop haut et considérer comme étant du bruit des photons associés au signal. Le photomultiplicateur peut être utilisé avec plusieurs tensions d'amplification différentes, plus la tension est élevée et plus le signal est amplifié. Il faut cependant faire attention à bien rester dans les limites de linéarité du photomultiplicateur afin d'éviter toute distorsion du signal. Lorsque le seuil, encore appelé discriminant, est proche de zéro, le signal est très important car tous les coups comptés sont associés au signal, y compris le bruit. En revanche, lorsque le discriminant augmente, le signal tend à disparaître car de moins en moins de coups sont associés aux photons du signal. En déterminant le seuil de détection et la largeur temporelle des portes, le montage expérimental est en principe optimisé pour obtenir le rapport signal sur bruit maximal.

Enfin, il est préférable avant de réaliser les expériences sur des échantillons à étudier dont les propriétés optiques linéaires et surtout non linéaires sont mal connues de tester le bon

fonctionnement et d'optimiser le dispositif expérimental avec un matériau non linéaire de référence dont les propriétés optiques sont bien connues.

2.4. Expérience SHG résolue en polarisation

Avec le dispositif expérimental que nous venons de décrire, on peut réaliser une multitude d'expériences SHG. En effet, les mesures de l'intensité SHG peuvent s'effectuer dans différentes configurations de polarisation pour le faisceau fondamental et pour le faisceau harmonique, permettant ainsi de mesurer les différents éléments du tenseur de susceptibilité d'ordre deux ou d'hyperpolarisabilité et ainsi déterminer la symétrie de l'échantillon étudié [39]. Dans le cadre du modèle théorique que nous allons décrire dans la suite de ce chapitre, on s'est intéressé à une expérience bien précise appelée SHG résolue en polarisation. Il s'agit de mesurer l'intensité SHG en fonction de la polarisation du champ incident pour les deux composantes, verticale (V) et horizontale (H), de la polarisation de l'onde à la fréquence harmonique. Sur la Figure 2.2, φ est l'angle de polarisation du champ incident à la fréquence fondamentale. Il est fixé par la lame demi-onde disposée avant l'échantillon sur un dispositif motorisé. Cet angle est défini par rapport à la direction horizontale, c'est-à-dire l'axe X du laboratoire. La rotation de la lame demi-onde fait tourner la polarisation incidente du double de l'angle de rotation de l'axe optique de la lame. L'angle β est celui de la polarisation du champ diffusé à la fréquence harmonique. Il est défini aussi par rapport à la direction horizontale. La polarisation horizontale (selon l'axe OX) correspond à un angle $\beta = 0$ et la polarisation verticale (selon l'axe OY) correspond à l'angle $\beta = 90^\circ$.

Notons enfin que dans ces expériences, la lumière diffusée à la fréquence harmonique est collectée suivant la direction d'incidente, c'est-à-dire suivant l'axe Z du laboratoire. Ce sont les mesures dites « en transmission ».

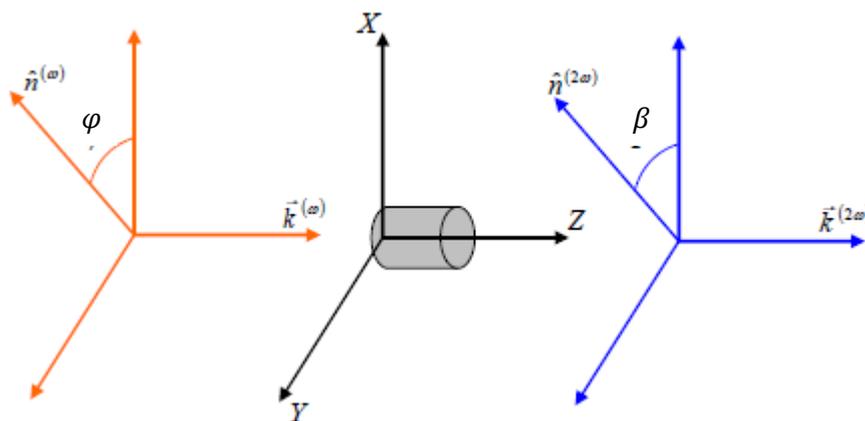


Figure 2.2 : Représentation schématique des angles de polarisation des faisceaux fondamental et harmonique.

3. Formalisme des matrices de Jones

3.1. La polarisation de la lumière

La polarisation de la lumière à une position fixe est déterminée par l'évolution dans le temps du vecteur de champ électrique $\vec{E}(\vec{r}, t)$. Dans un milieu simple, ce vecteur se situe dans un plan tangentiel au front d'onde à cette position. Pour la lumière monochromatique, deux composantes orthogonales quelconques du vecteur amplitude complexe $\vec{e}(\vec{r}, t)$ dans ce plan varient de manière sinusoïdale avec le temps, avec des amplitudes et des phases généralement différentes, de sorte que l'extrémité du vecteur $\vec{E}(\vec{r}, t)$ trace une ellipse. Etant donné que le front d'onde a généralement des directions différentes à différentes positions, le plan, l'orientation et la forme de l'ellipse varient également avec la position, comme illustré sur la figure 2.3 (a) [23].

Pour une onde plane, cependant, les fronts d'onde sont des plans transversaux parallèles et les ellipses de polarisation sont les mêmes partout, comme illustré sur la figure 2.3 (b) [23], bien que les vecteurs de champ ne soient pas nécessairement parallèles à un instant donné. L'onde plane est donc décrite par une seule ellipse, et elle est dite elliptiquement polarisée. L'orientation et l'ellipticité de l'ellipse de polarisation déterminent l'état de polarisation de l'onde plane, tandis que la taille de l'ellipse détermine par l'intensité optique. Lorsque l'ellipse dégénère en une ligne droite ou devient un cercle, on dit que l'onde est polarisée linéairement ou circulairement, respectivement.

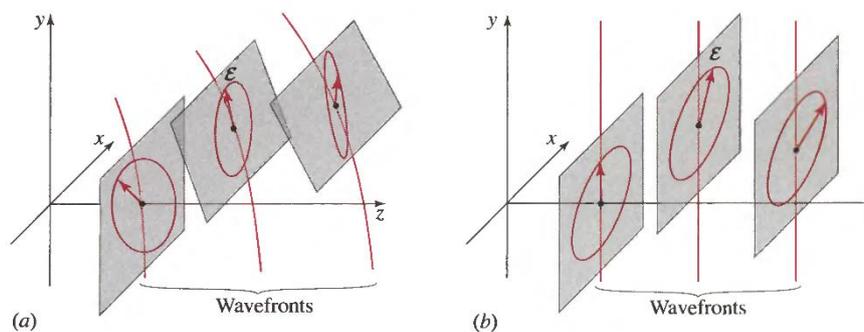


Figure 2.3 : Évolution temporelle du vecteur champ électrique de la lumière monochromatique pour plusieurs positions : (a) onde arbitraire (b) onde plane ou onde paraxiale se déplaçant dans la direction z [23].

Dans l'optique paraxiale, la lumière se propage le long de directions qui se trouvent dans un cône étroit centré autour de l'axe optique (l'axe z), comme dans le cas des lasers par exemple. Les ondes sont approximativement transverses électromagnétiques (TEM) et les vecteurs du champ électrique se trouvent donc approximativement dans des plans transverses avec des

composantes axiales négligeables. Du point de vue de la polarisation, les ondes paraxiales peuvent être approximées par des ondes planes et décrites par une seule ellipse de polarisation (ou cercle ou ligne).

La polarisation joue un rôle important dans l'interaction de la lumière avec la matière comme l'attestent les exemples suivants :

- ✓ La quantité de lumière réfléchiée à la frontière entre deux matériaux dépend de la polarisation de l'onde incidente.
- ✓ La quantité de lumière absorbée par certains matériaux dépend de la polarisation.
- ✓ La diffusion de la lumière par la matière est généralement sensible à la polarisation.
- ✓ L'indice de réfraction des matériaux anisotropes dépend de la polarisation. Les ondes avec différentes polarisations se déplacent à des vitesses différentes et subissent différents déphasages, de sorte que l'ellipse de polarisation est modifiée à mesure que l'onde avance (par exemple, la lumière polarisée linéairement peut être transformée en lumière polarisée d'une manière circulaire). Cette propriété est utilisée dans la conception de nombreux dispositifs optiques.
- ✓ Le plan de polarisation de la lumière polarisée linéairement est mis en rotation par passage à travers certains milieux, y compris ceux qui sont optiquement actifs, les cristaux liquides et certaines substances en présence d'un champ magnétique externe.

3.2.Polarisation elliptique

Considérons une onde plane monochromatique de fréquence ν , de fréquence angulaire $\omega = 2\pi\nu$ et se déplaçant dans la direction z avec une vitesse c . Le champ électrique se situe dans le plan (XY) et il est décrit par l'expression suivante [23] :

$$\vec{E}(z, t) = \text{Re}\{\vec{\mathcal{E}} \exp[i(\omega t - kz)]\} \quad (2.1)$$

où k est le vecteur d'onde ($k = \omega/c$) et $\vec{\mathcal{E}}$ l'enveloppe complexe du champ, dont les composantes complexes sont :

$$\vec{\mathcal{E}} = \mathcal{E}_x \vec{i} + \mathcal{E}_y \vec{j} \quad (2.2)$$

Pour décrire la polarisation de cette onde, on trace l'extrémité du vecteur $\vec{E}(z, t)$ à chaque position z en fonction du temps.

Exprimons \mathcal{E}_x et \mathcal{E}_y en fonctions de leurs normes et phases :

$$\mathcal{E}_x = a_x \exp(i\varphi_x) \quad (2.3.1)$$

$$\mathcal{E}_y = a_y \exp(i\varphi_y) \quad (2.3.2)$$

où a_x et a_y sont des amplitudes réelles. En substituant ces expressions dans les relations (2.1) et (2.2), on trouve :

$$\vec{E}(z, t) = E_x(z, t)\vec{i} + E_y(z, t)\vec{j} \quad (2.4)$$

Où :

$$E_x(z, t) = a_x \cos(\omega t - kz + \varphi_x) \quad (2.4 - 1)$$

$$E_y(z, t) = a_y \cos(\omega t - kz + \varphi_y) \quad (2.4 - 2)$$

qui représentent les deux composantes cartésiennes du vecteur champ électrique. Ces composantes sont des fonctions périodiques de $(\omega t - kz)$ qui oscillent à la fréquence ν . Les équations (2.4-1 et 2.4-2) sont les équations paramétriques de l'ellipse, dont l'équation est :

$$\frac{E_x^2}{a_x^2} + \frac{E_y^2}{a_y^2} - 2 \cos \varphi \frac{E_x E_y}{a_x a_y} = \sin^2 \varphi \quad (2.5)$$

où $\varphi = \varphi_y - \varphi_x$ est la différence de phase. Pour une valeur fixe de z , la pointe du vecteur de champ électrique tourne périodiquement dans le plan XY , traçant cette ellipse. A un instant t fixe, la pointe du vecteur champ électrique suit une trajectoire hélicoïdale dans l'espace qui se trouve sur la surface d'un cylindre elliptique (voir figure 2.4 [23]). Le champ électrique tourne au fur et à mesure que l'onde avance, répétant périodiquement son mouvement pour chaque distance correspondant à une longueur d'onde $\lambda = c/\nu$.

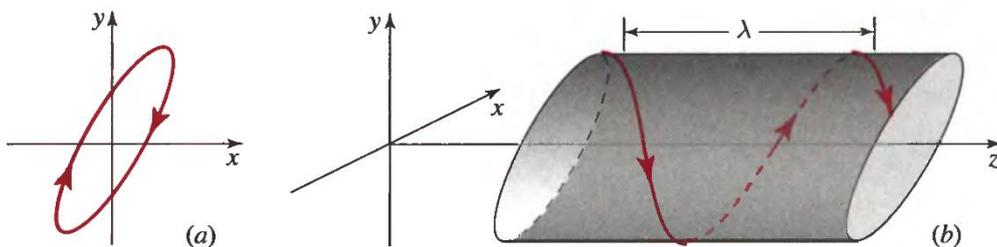


Figure 2.4 : (a) Rotation de l'extrémité du vecteur champ électrique dans le plan XY à une position fixe z . (b) Trajectoire de l'extrémité du vecteur champ électrique à un instant t fixe [23].

L'état de polarisation de l'onde est déterminé par l'orientation et la forme de l'ellipse de polarisation, qui est caractérisée par les deux angles définis sur la figure 2.5 [23] :

- l'angle ψ qui détermine la direction du grand axe ;
- l'angle χ qui détermine l'ellipticité, c'est-à-dire le rapport entre les axes mineur et majeur de l'ellipse (b/a).

Ces angles dépendent du rapport $r = a_y/a_x$ et de la différence de phase $\varphi = \varphi_y - \varphi_x$, conformément aux relations suivantes :

$$\tan(2\psi) = \frac{2r}{1 - r^2} \cos \varphi \quad (2.6 - 1)$$

$$\sin(2\chi) = \frac{2r}{1 + r^2} \sin \varphi \quad (2.6 - 2)$$

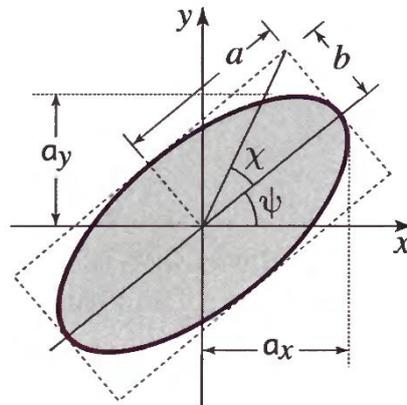


Figure 2.5 : Polarisation elliptique [23]

Les équations (2.6-1) et (2.6-2) peuvent être démontrées en trouvant l'angle ψ qui réalise une transformation du système de coordonnées de E_x et E_y dans les équations 2.4-1 et 2.4-2 de telle sorte que l'équation de l'ellipse tournée n'a pas de terme croisé. La taille de l'ellipse est déterminée par l'intensité de l'onde, qui est proportionnelle à $\mathcal{E}_x^2 + \mathcal{E}_y^2 = a_x^2 + a_y^2$.

3.3. Polarisation linéaire

Si l'une des composantes disparaît ($a_x = 0$, par exemple), la lumière est polarisée linéairement en direction de l'autre composante (la direction y). L'onde est également polarisée linéairement si la différence de phase $\varphi = 0$ ou π , puisque la relation (2.5) donne $E_y = \pm(a_y/a_x)E_x$, qui est l'équation d'une droite de pente ($\pm a_y/a_x$) (les signes + et - correspondent respectivement à $\varphi = 0$ ou π). Dans ces cas, le cylindre elliptique de la figure 2.4 (b) se réduit à un plan comme illustré sur la figure 2.6 [23]. On dit donc aussi que l'onde a une polarisation plane. Si $a_x = a_y$,

par exemple, le plan de polarisation fait un angle de 45° avec l'axe X . Si $a_x = 0$, le plan de polarisation est contenu dans le plan YZ .

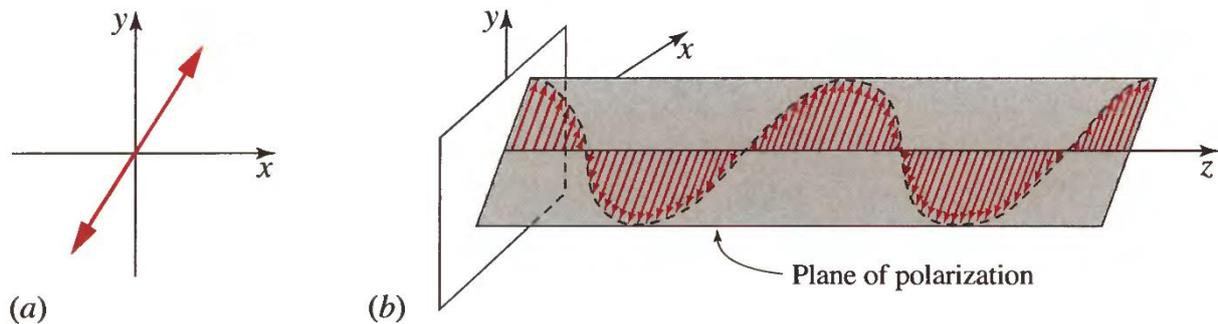


Figure 2.6 : Lumière polarisée linéairement. (a) Évolution dans le temps à une position fixe z . (b) évolution dans l'espace à temps t [23]

3.4.Polarisation circulaire

Si $\varphi = \pm \pi/2$ et $a_x = a_y = a_0$, les équations (2.4-1) et (2.4-2) deviennent $E_x = a_0 \cos(\omega t - kz + \varphi_x)$ et $E_y = a_0 \cos(\omega t - kz + \varphi_x)$, à partir desquelles on obtient $E_x^2 + E_y^2 = a_0^2$, qui représente l'équation d'un cercle. Le cylindre elliptique de la figure 2.4 (b) devient un cylindre circulaire et l'onde est dite polarisée de manière circulaire. Dans le cas $\varphi = +\pi/2$, le champ électrique, à une position fixe z , tourne dans le sens des aiguilles d'une montre lorsqu'il est vu depuis la direction vers laquelle l'onde avance. On dit alors qu'on a une polarisation circulaire droite (RCP). Le cas $\varphi = -\pi/2$ correspond à une rotation dans le sens antihoraire et à une polarisation dite circulaire gauche (LCP). Dans le cas d'une polarisation circulaire, les extrémités des vecteurs de champ électrique, à un instant donné et à différentes positions, tracent une hélice, comme illustré sur la figure 2.7 [23].

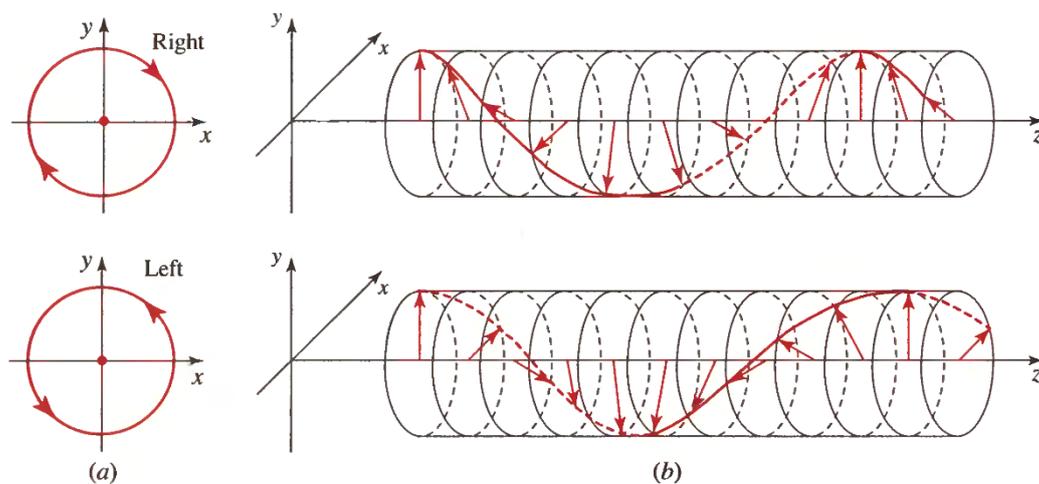


Figure 2.7 : Trajectoires de la pointe du vecteur champ électrique d'une onde plane à polarisation circulaire. (a) Évolution dans temps à une position fixe z . (b) Evolution dans l'espace à un temps t fixes [23].

3.5. La représentation matricielle de la polarisation

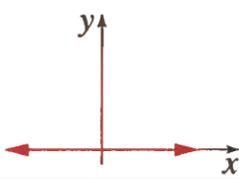
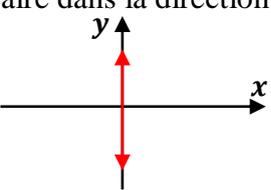
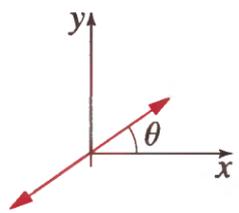
3.5.1. Vecteur de Jones

Comme indiqué ci-dessus, une onde plane monochromatique, de fréquence ν se déplaçant dans la direction z , est complètement caractérisée par les enveloppes complexes $\mathcal{E}_x = a_x \exp(i\varphi_x)$ et $\mathcal{E}_y = a_y \exp(i\varphi_y)$ associées aux composantes cartésiennes du vecteur champ électrique. Ces quantités complexes peuvent être représentées par une matrice colonne dite vecteur de Jones :

$$\vec{J} = \begin{pmatrix} \mathcal{E}_x \\ \mathcal{E}_y \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

Connaissant \vec{J} , nous pouvons déterminer l'intensité totale de l'onde $I = |\mathcal{E}_x|^2 + |\mathcal{E}_y|^2 = |a_x|^2 + |a_y|^2$, et en utilisant le rapport $r = a_x/a_y = |\mathcal{E}_y|/|\mathcal{E}_x|$ et la différence de phase $\varphi = \varphi_y - \varphi_x = \arg\{\mathcal{E}_y\} - \arg\{\mathcal{E}_x\}$, nous pouvons également déterminer l'orientation et la forme de l'ellipse de polarisation.

Les vecteurs de Jones pour certains états de polarisation spéciaux sont donnés dans le tableau 2.1. L'intensité dans chaque cas a été normalisée de sorte que $|\mathcal{E}_x|^2 + |\mathcal{E}_y|^2 = 1$ et la composante suivant x de phase est prise égale à zéro ($\varphi_x = 0$).

Type de polarisation	Matrice de Jones
Linéaire dans la direction X 	$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$
Linéaire dans la direction Y 	$\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$
Linéaire dans une direction qui fait un angle θ avec l'axe X 	$\begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix}$

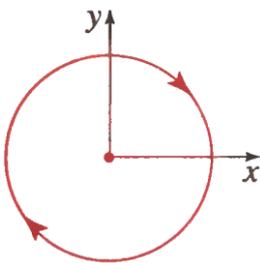
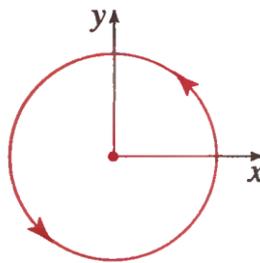
<p>Circulaire droite</p> 	$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ j \end{pmatrix}$
<p>Circulaire gauche</p> 	$\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -j \end{pmatrix}$

Tableau 2.1 : Vecteurs de Jones pour les états de polarisation linéaires et circulaires

3.5.2. Les polarisations orthogonales

Deux états de polarisation représentés par les vecteurs de Jones \vec{J}_1 et \vec{J}_2 sont dits orthogonaux si le produit scalaire entre ces deux vecteurs est nul. Ce produit est défini par :

$$(\vec{J}_1, \vec{J}_2) = \varepsilon_{1x} \varepsilon_{2x}^* + \varepsilon_{1y} \varepsilon_{2y}^* \quad (2.8)$$

où ε_{1x} et ε_{1y} sont les composantes de \vec{J}_1 , ε_{2x} et ε_{2y} sont les composantes de \vec{J}_2 et l'indice « * » indique le complexe conjugué. Un exemple de vecteurs de Jones orthogonaux sont ceux associés aux polarisations linéaires dans les directions X et Y , ou toute autre paire de directions orthogonales. Un autre exemple est fourni par les polarisations circulaires droite et gauche.

3.5.3. Développement d'une polarisation arbitraire en tant que superposition de deux polarisations orthogonales

Un vecteur de Jones arbitraire \vec{J} peut toujours être considéré comme une superposition pondérée de deux vecteurs de Jones orthogonaux, disons \vec{J}_1 et \vec{J}_2 , qui forment une base. On a donc :

$$\vec{J} = \alpha \vec{J}_1 + \beta \vec{J}_2 \quad (2.9)$$

Si \vec{J}_1 et \vec{J}_2 sont normalisés tels que $(\vec{J}_1, \vec{J}_1) = (\vec{J}_2, \vec{J}_2) = 1$, les coefficients du développement sont donnés par les produits scalaires suivants :

$$\alpha = (\vec{J}, \vec{J}_1) \quad (2.10 - 1)$$

$$\beta = (\vec{J}, \vec{J}_2) \quad (2.10 - 2)$$

Par exemple, en utilisant les vecteurs de Jones associés aux polarisations linéaires suivant x et y comme base, les coefficients du développement pour un vecteur de Jones de composantes \mathcal{E}_x et \mathcal{E}_y avec $|\mathcal{E}_x|^2 + |\mathcal{E}_y|^2 = 1$ sont, par définition, $\alpha = \mathcal{E}_x$ et $\beta = \mathcal{E}_y$.

De même, en utilisant les vecteurs de Jones associés aux polarisations circulaires droite et gauche comme base, les coefficients du développement sont donnés par :

$$\alpha(\text{droite}) = \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathcal{E}_x - i\mathcal{E}_y) \quad (2.11 - 1)$$

$$\beta(\text{gauche}) = \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathcal{E}_x + i\mathcal{E}_y) \quad (2.11 - 2)$$

3.5.4. Représentation matricielle des systèmes optiques

Considérons la transmission d'une onde plane de polarisation arbitraire à travers un système optique qui maintient la nature plane de l'onde, mais modifie sa polarisation, comme illustré schématiquement sur la figure 2.8 [23]. Le système est supposé linéaire, de sorte que le principe de superposition des champs optiques soit respecté. Deux exemples de tels systèmes sont la réflexion de la lumière à partir d'une frontière plane entre deux milieux et la transmission de la lumière à travers une plaque aux propriétés optiques anisotropes.

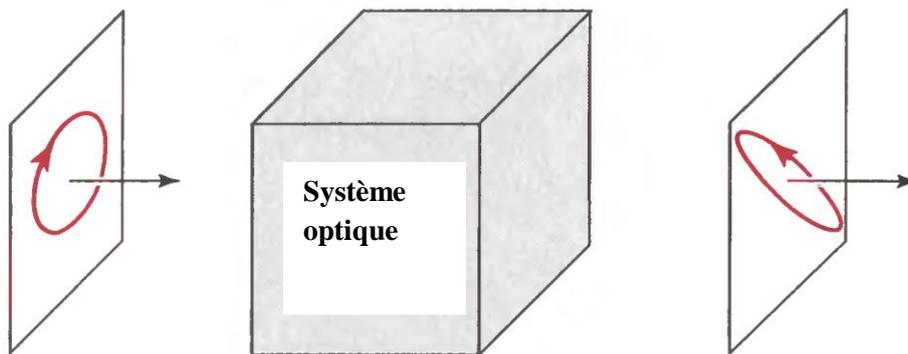


Figure 2.8 : Illustration de la modification de la polarisation d'une onde plane lors de son passage à travers un système optique [23].

Les enveloppes complexes des deux composantes du champ électrique de l'onde incidente, \mathcal{E}_{1x} et \mathcal{E}_{1y} , et celles de l'onde à la sortie (transmise ou réfléchi), \mathcal{E}_{2x} et \mathcal{E}_{2y} , sont reliées par les relations suivantes :

$$\mathcal{E}_{2x} = T_{11}\mathcal{E}_{1x} + T_{12}\mathcal{E}_{1y} \quad (2.12 - 1)$$

$$\mathcal{E}_{2y} = T_{21}\mathcal{E}_{1x} + T_{22}\mathcal{E}_{1y} \quad (2.12 - 2)$$

où T_{11}, T_{12}, T_{21} et T_{22} sont des constantes décrivant le système optique. Les équations (2.12-1) et (2.12-2) sont des relations générales que tous les dispositifs optiques à réponse linéaire doivent satisfaire.

Ces relations peuvent être réécrites en utilisant la notation matricielle. Pour cela, on définit une matrice $[T]$ d'ordre (2×2) , telle que ;

$$\begin{pmatrix} \mathcal{E}_{2x} \\ \mathcal{E}_{2y} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{11} & T_{12} \\ T_{21} & T_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{E}_{1x} \\ \mathcal{E}_{1y} \end{pmatrix} \quad (2.13 - 1)$$

ou sous forme condensée :

$$\vec{\mathcal{E}}_2 = [T] \vec{\mathcal{E}}_1 \quad (2.13 - 2)$$

Si les polarisations des ondes incidente et de sortie sont décrites par les vecteurs de Jones \vec{J}_1 et \vec{J}_2 , respectivement, alors la relation (2.13-2) peut être écrit sous la forme suivante :

$$\vec{J}_2 = [T] \vec{J}_1 \quad (2.14)$$

La matrice $[T]$, appelée matrice de Jones, décrit le système optique, tandis que les vecteurs de Jones \vec{J}_1 et \vec{J}_2 décrivent les états de polarisations des ondes d'entrée et de sortie.

La structure de la matrice de Jones $[T]$ d'un système optique donné détermine l'effet qu'elle va produire sur l'état de polarisation et l'intensité d'une onde lumineuse. Dans ce qui suit, on va donner les matrices de Jones de certains systèmes optiques avec des caractéristiques simples.

- **Polariseurs linéaires** : le système optique représenté par la matrice de Jones :

$$T \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.15)$$

transforme une onde de composantes $(\mathcal{E}_{1x}, \mathcal{E}_{1y})$ en une onde de composantes $(\mathcal{E}_{1x}, 0)$ en éliminant la composante suivant Y , donnant ainsi une onde polarisée le long de la direction X , comme illustré sur la figure 2.9 [23]. Ce système optique est un polariseur linéaire avec un axe de transmission pointant dans la direction X .

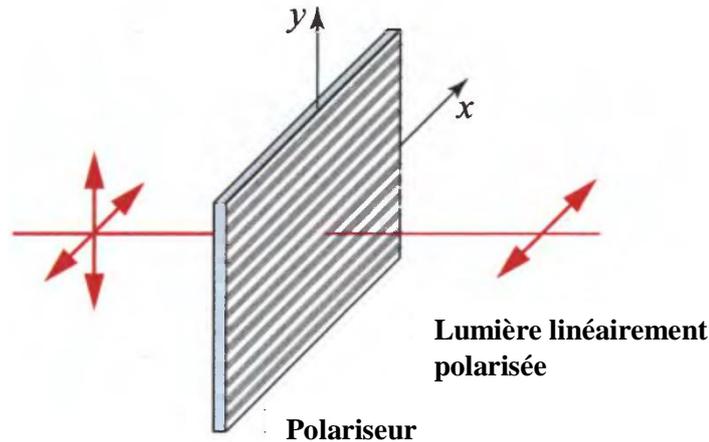


Figure 2.9 : Le polariseur linéaire. Les lignes dans le polariseur représentent la composante du champ qui est autorisée à passer [23].

Il est clair qu'un polariseur avec un axe de transmission pointant dans la direction Y est représenté par la matrice de Jones suivante :

$$[T] = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.16)$$

- **Retardateurs d'onde :** le système optique représenté par la matrice de Jones :

$$T \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{-i\Gamma} \end{pmatrix} \quad (2.17)$$

transforme une onde avec des composantes de champ $(\mathcal{E}_{1x}, \mathcal{E}_{1y})$ en une autre onde avec des composantes $(\mathcal{E}_{1x}, e^{-i\Gamma} \mathcal{E}_{1y})$, retardant ainsi la composante Y d'une phase Γ tout en laissant la composante X inchangée. On l'appelle donc un retardateur d'onde. Les axes X et Y sont appelés respectivement axes rapide et lent du retardateur.

- ✓ Lorsque $\Gamma = \pi/2$, le retardateur (appelé retardateur quart d'onde) transforme une polarisation linéaire en une polarisation circulaire gauche, et une polarisation circulaire droite en une polarisation linéaire (voir figure 2.10 [23]). Dans ce cas, la matrice de Jones prend la forme suivante :

$$T \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -i \end{pmatrix} \quad (2.17 - 1)$$

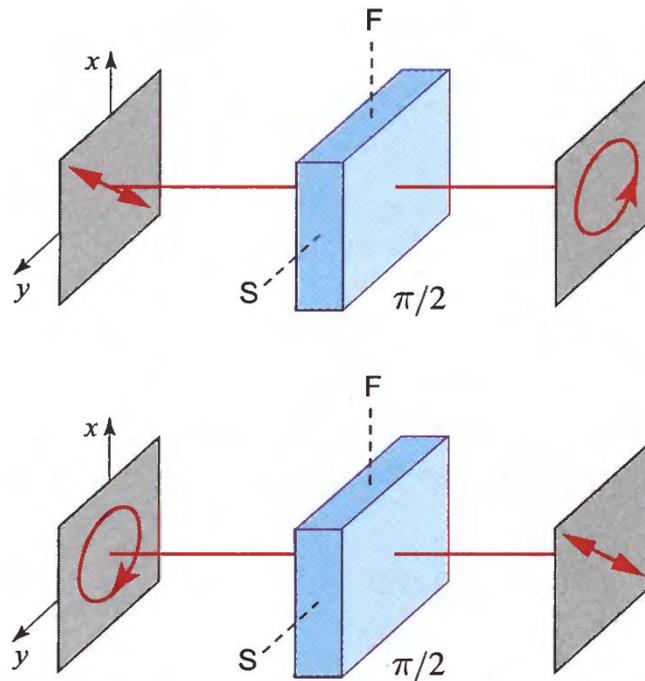


Figure 2.10 : Les opérations du retardateur quart d'onde sur plusieurs états particuliers de polarisation. Les lettres F et S représentent respectivement les axes rapide et lent du retardateur [23].

- ✓ Lorsque $\Gamma = \pi$, le retardateur (appelé retardateur demi-onde) transforme une polarisation linéaire en une autre polarisation linéaire en faisant tourner le plan de polarisation de 90° , et une polarisation circulaire droite en une polarisation linéaire (voir figure 2.11 [23]). Ce retardateur demi-onde transforme également une polarisation circulaire droite en une polarisation circulaire gauche (voir figure 2.11 [23]). Dans ce cas, la matrice de Jones prend la forme suivante :

$$T \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (2.17 - 2)$$

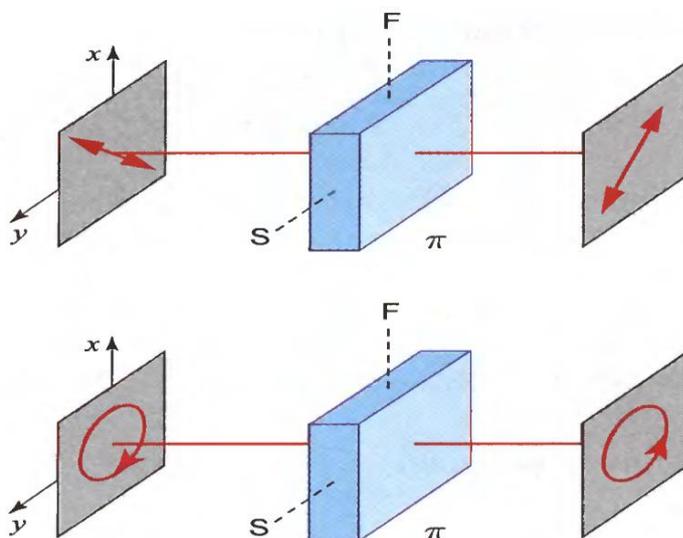


Figure 2.11 : Les opérations du retardateur demi-onde sur plusieurs états particuliers de polarisation. Les lettres F et S représentent respectivement les axes rapide et lent du retardateur [23].

L'application simple de l'algèbre matricielle permet de comprendre les résultats illustrés sur la figure 2.11.

- **Rotateurs de polarisation :** alors qu'un retardateur d'onde transforme la forme de la polarisation d'une onde, un rotateur de polarisation maintient toujours la polarisation linéaire d'une onde, mais fait tourner le plan de polarisation d'un angle particulier α . La matrice de Jones :

$$T = \begin{pmatrix} \cos \alpha & -\sin \alpha \\ \sin \alpha & \cos \alpha \end{pmatrix} \quad (2.18)$$

représente un système optique qui peut transformer une polarisation linéaire $(\cos \alpha_1, \sin \alpha_1)$ en une autre polarisation linéaire $(\cos \alpha_2, \sin \alpha_2)$, avec $\alpha_2 = \alpha_1 + \alpha$ (voir figure 2.12 [23]). Il fait donc tourner le plan de polarisation d'un angle α .

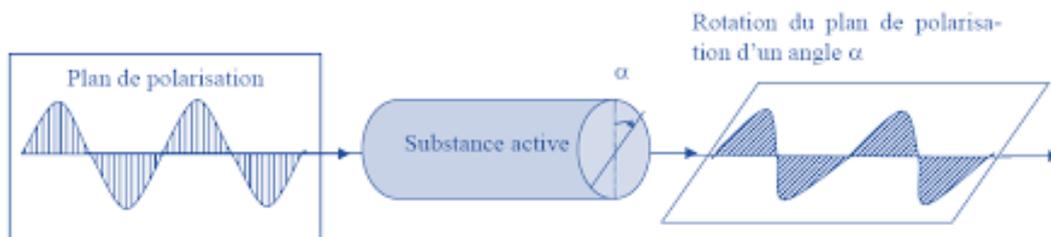


Figure 2.12 : Schéma de principe d'un rotateur de polarisation [23].

3.5.5. Dispositifs de polarisation en cascade

L'action des systèmes optiques en cascade sur la lumière polarisée peut être déterminée de manière appropriée en utilisant les formules de la multiplication matricielle classique. Un système optique caractérisé par la matrice de Jones $[T_1]$ suivi d'un autre système optique caractérisé par la matrice de Jones $[T_2]$ équivaut à un système unique caractérisé par la matrice produit $[T_2][T_1]$. La matrice du système à travers laquelle la lumière est d'abord transmise doit se trouver à droite dans le produit matriciel, car elle est la première à affecter le vecteur de Jones associé à la polarisation du faisceau incident. Sachant que le produit matriciel n'est pas commutatif, l'ordre du produit matriciel est très important.

L'intérêt donc de la représentation matricielle de Jones tient dans le fait qu'un état de polarisation, caractérisé par un vecteur de Jones \vec{j} , transmis par une association d'éléments optiques doués de propriétés biréfringentes (anisotropes) peut être déterminé en effectuant le produit matriciel $[T]\vec{j}$, où $[T]$ est la matrice produit des matrices élémentaires associées aux différents éléments optiques :

$$[T] = [T_n][T_{n-1}][T_{n-2}] \dots [T_k] \dots [T_3][T_2][T_1] \quad (2.19)$$

où n est le nombre de systèmes optiques. Il faut toutefois que les différentes matrices mises en jeu soient exprimées dans la même base, et dans l'ordre inverse de celui rencontré par la lumière.

3.5.6. Transformation des coordonnées

Les éléments des vecteurs et matrices de Jones dépendent du choix du système de coordonnées. Cependant, si ces éléments sont connus dans un système de coordonnées, ils peuvent être déterminés dans un autre système de coordonnées à l'aide de la méthode matricielle. Si \vec{j} est le vecteur de Jones dans le système de coordonnées (x, y) , alors dans un nouveau système de coordonnées (x', y') , où la direction X' fait un angle θ avec la direction X (voir figure 2.13), le vecteur de Jones \vec{j}' est donné par :

$$\vec{j}' = [R(\theta)]\vec{j} \quad (2.20)$$

où la matrice $[R(\theta)]$ est définie par :

$$[R(\theta)] = \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \quad (2.21)$$

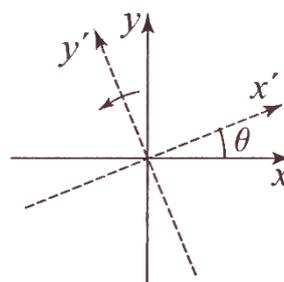


Figure 2.13 : Transformation des coordonnées

De même, La matrice de Jones $[T]$, qui représente un système optique, est transformée en une autre matrice $[T']$, conformément aux relations suivantes :

$$[T'] = [R(\theta)][T][R(-\theta)] \quad (2.22 - 1)$$

$$[T] = [R(-\theta)][T'][R(\theta)] \quad (2.22 - 2)$$

où $[R(-\theta)]$ est donné par la relation (2.21) en remplaçant θ par $(-\theta)$. La matrice $[R(-\theta)]$ est l'inverse de la matrice $[R(\theta)]$ de sorte que le produit $[R(\theta)][R(-\theta)]$ donne une matrice unitaire.

4. Modélisation de la génération de la seconde harmonique dans les cristaux de quartz

4.1.Introduction

Dans cette section, nous allons étudier la génération de la seconde harmonique dans les cristaux de quartz pour différentes dispositions expérimentales. En d'autres termes, on va déterminer l'expression de l'intensité seconde harmonique (I_{SHG}) générée par ces cristaux pour différents états de polarisation du faisceau incident (faisceau fondamentale), et pour des états de polarisation bien déterminés du faisceau harmonique (polarisations horizontale H et verticale V).

4.2. Tenseur de susceptibilité d'ordre 2 du quartz

Sachant que le quartz est un matériau non-centrosymétrique et un cristal uniaxial (classe cristalline trigonale et groupe ponctuel $32 = D_3$), et en supposant qu'il n'y a pas de perte et que la symétrie de Kleinman s'applique, le tenseur effectif de susceptibilité d'ordre 2 s'écrit comme suit [37] :

$$d^{(2)} = \begin{pmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

Notons que dans le cas où la symétrie de Kleinman s'applique, le coefficient d_{14} doit s'annuler en principe. Cependant, il prend une valeur très faible mais ne s'annule pas [37] :

$$d_{11} = 0.96 \cdot 10^{-9} \text{ cm/stat volt} \quad (2.24 - 1)$$

$$d_{14} = 0.02 \cdot 10^{-9} \text{ cm/stat volt} \quad (2.24 - 2)$$

4.3. Dispositif expérimental simplifié

En se basant sur le dispositif expérimental général, illustré sur la figure 2.1, nous avons représenté sur la figure 2.14 un dispositif expérimental réduit en tenant compte que des systèmes optiques qui peuvent modifier l'état de polarisation du faisceau laser. Il s'agit essentiellement de la lame demi-onde (HWP) qui permet de faire varier l'angle de polarisation du faisceau fondamental, du cristal de quartz (Q) qui introduit un déphasage et de l'analyseur (A) constitué d'une lame demi-onde et d'un cube polariseur pour sélectionner la polarisation du faisceau harmonique.

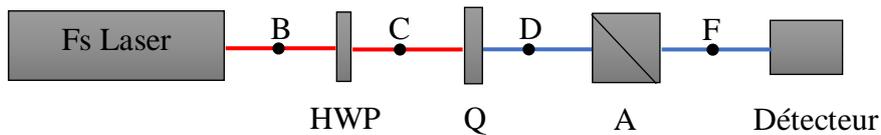


Figure 2.14 : Dispositif expérimental réduit pour les mesures SHG résolues en polarisation

4.4. Intensité seconde harmonique

On suppose que le champ électrique incident associé au faisceau sortant de la cavité laser est celui d'une onde plane, donné par l'équation :

$$\vec{E}_{inc}(z, t) = \vec{E} \exp[i(\omega t - kz)] \quad (2.25)$$

L'intensité incidente est donc donnée par :

$$I_{inc} = |\vec{E}_{inc}(z, t)|^2 = |\vec{\mathcal{E}}|^2 = \mathcal{E}^2 = |\mathcal{E}_x|^2 + |\mathcal{E}_y|^2 = (2.26)$$

En traversant les divers systèmes optiques, représentés sur la figure 2.14, c'est essentiellement la polarisation de ce champ qui change.

Dans ce qui suit, on va déterminer l'expression de l'intensité seconde harmonique qui est collectée au niveau du détecteur en utilisant le formalisme des vecteurs et matrice de Jones. Ces derniers seront exprimés dans la base cartésienne du référentiel du laboratoire. La procédure générale consiste à exprimer le champ électrique de proche en proche du point B jusqu'au point E. Nous allons considérer une polarisation incidente linéaire.

4.4.1. Polarisation incidente linéaire

Si la polarisation du faisceau sortant de la cavité laser est linéaire dans une direction qui fait un angle α avec l'axe X , alors le vecteur de Jones associé est :

$$\vec{J}_{inc} = \begin{pmatrix} \cos \alpha \\ \sin \alpha \end{pmatrix} (2.27)$$

Par conséquent, le champ électrique au point B s'écrit comme suit :

$$\vec{E}_A = a\vec{J}_{inc} = \mathcal{E} \begin{pmatrix} \cos \alpha \\ \sin \alpha \end{pmatrix} (2.28)$$

Dans ses axes propres, la lame demi-onde possède la matrice de Jones suivant :

$$[T]_{HWP} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} (2.29)$$

Les axes propres de la lame demi-onde sont tournés d'un angle θ par rapport à ceux du référentiel du laboratoire. Par rapport à ce dernier, la matrice de Jones associée à la lame demi-onde devient :

$$\begin{aligned} [M_1] &= \begin{pmatrix} \cos \theta & -\sin \theta \\ \sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos^2 \theta - \sin^2 \theta & 2 \cos \theta \sin \theta \\ 2 \sin \theta \cos \theta & \sin^2 \theta - \cos^2 \theta \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} \cos(2\theta) & \sin(2\theta) \\ \sin(2\theta) & -\cos(2\theta) \end{pmatrix} (2.30) \end{aligned}$$

Par conséquent, le champ électrique au point C se présente sous la forme suivante :

$$\vec{E}_C = \begin{pmatrix} E_{CX} \\ E_{CY} \end{pmatrix} = [M_1]\vec{E}_A = \mathcal{E} \begin{pmatrix} \cos(2\theta) & \sin(2\theta) \\ \sin(2\theta) & -\cos(2\theta) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \alpha \\ \sin \alpha \end{pmatrix}$$

$$= \varepsilon \begin{pmatrix} \cos(2\theta) \cos \alpha + \sin(2\theta) \sin \alpha \\ \sin(2\theta) \cos \alpha - \cos(2\theta) \sin \alpha \end{pmatrix} \quad (2.31)$$

Le quartz est un matériau biréfringent et à sa traversée, il apparaît un déphasage φ entre les deux modes propres de la polarisation. Cependant, il y a également génération de la seconde harmonique. Pour tenir compte de ces deux phénomènes, on suppose que le champ au point D est proportionnel à la polarisation en ce point :

$$\vec{E}_D = c_1 \vec{P}_c = c_1 \varepsilon_0 \overleftrightarrow{\chi}^{(2)} \vec{E} \vec{E} = 2c_1 \varepsilon_0 \overleftrightarrow{d}^{(2)} \vec{E}_c \vec{E}_c \quad (2.32)$$

où c_1 est une constante. Les tenseurs $\overleftrightarrow{\chi}^{(2)}$ et $\overleftrightarrow{d}^{(2)}$ sont exprimés dans la base des axes propres du cristal de quartz. Dans la base du repère du laboratoire, le tenseur contracté des susceptibilités du second ordre est donné par la relation suivante [37] :

$$\overleftrightarrow{d}_{(XYZ)}^{(2)} = [R_\varphi] [R_{hkl}] \overleftrightarrow{d}^{(2)} \quad (2.33)$$

où $[R_\varphi]$ est la matrice de rotation des axes propres du cristal par rapport à ceux du laboratoire, donnée par :

$$[R_\varphi] = \begin{pmatrix} \cos \varphi & \sin \varphi & 0 \\ -\sin \varphi & \cos \varphi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.34)$$

et $[R_{hkl}]$ est la matrice de passage entre la base associée aux plans atomiques du quartz et celle du laboratoire. Dans le cas d'un cristal de quartz de types Z-cut et Y-cut, cette matrice s'identifie à la matrice unité d'ordre 3. Par conséquent :

$$\begin{aligned} \overleftrightarrow{d}_{(XYZ)}^{(2)} &= [R_\varphi] [R_{hkl}] \overleftrightarrow{d}^{(2)} = \begin{pmatrix} \cos \varphi & \sin \varphi & 0 \\ -\sin \varphi & \cos \varphi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} & d_{11} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} d_{11} \cos \varphi & -d_{11} \cos \varphi & 0 & d_{14} \cos \varphi & -d_{14} \sin \varphi & d_{11} \sin \varphi \\ -d_{11} \sin \varphi & d_{11} \sin \varphi & 0 & -d_{14} \sin \varphi & -d_{14} \cos \varphi & d_{11} \cos \varphi \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} \end{pmatrix} \quad (2.35) \end{aligned}$$

Donc, le champ électrique au point D se présente sous la forme suivante :

$$\vec{E}_D = \begin{pmatrix} P_{CX} \\ P_{CY} \\ P_{CZ} \end{pmatrix} = 2c_1 \varepsilon_0 \begin{pmatrix} d_{11} \cos \varphi & -d_{11} \cos \varphi & 0 & d_{14} \cos \varphi & -d_{14} \sin \varphi & d_{11} \sin \varphi \\ -d_{11} \sin \varphi & d_{11} \sin \varphi & 0 & -d_{14} \sin \varphi & -d_{14} \cos \varphi & d_{11} \cos \varphi \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -d_{14} \end{pmatrix}$$

$$\left(\begin{array}{c} E_{CX}^2 = \mathcal{E}^2 [\cos(2\theta) \cos \alpha + \sin(2\theta) \sin \alpha]^2 \\ E_{CY}^2 = \mathcal{E}^2 [\sin(2\theta) \cos \alpha - \cos(2\theta) \sin \alpha]^2 \\ E_{CZ}^2 = 0 \\ 2E_{CY}E_{CZ} = 0 \\ 2E_{CX}E_{CZ} = 0 \\ 2E_{CX}E_{CY} = 2\mathcal{E}^2 [\cos(2\theta) \cos \alpha + \sin(2\theta) \sin \alpha] [\sin(2\theta) \cos \alpha - \cos(2\theta) \sin \alpha] \end{array} \right)$$

$$= \begin{pmatrix} E_{DX} \\ E_{DY} \\ E_{DZ} \end{pmatrix} \quad (2.36)$$

où :

$$E_{DX} = 2c_1 \mathcal{E}^2 \varepsilon_0 d_{11} [\cos(2\theta) \cos \alpha + \sin(2\theta) \sin \alpha]^2 \cos \phi$$

$$- 2a^2 \varepsilon_0 d_{11} [\sin(2\theta) \cos \alpha - \cos(2\theta) \sin \alpha]^2 \cos \phi$$

$$+ 4a^2 \varepsilon_0 d_{11} [\cos(2\theta) \cos \alpha + \sin(2\theta) \sin \alpha] [\sin(2\theta) \cos \alpha - \cos(2\theta) \sin \alpha] \sin \phi \quad (2.36 - 1)$$

$$E_{DY} = -2c_1 \mathcal{E}^2 \varepsilon_0 d_{11} [\cos(2\theta) \cos \alpha + \sin(2\theta) \sin \alpha]^2 \sin \phi$$

$$+ 2\varepsilon_0 a^2 d_{11} [\sin(2\theta) \cos \alpha - \cos(2\theta) \sin \alpha]^2 \sin \phi$$

$$+ 4a^2 \varepsilon_0 d_{11} [\cos(2\theta) \cos \alpha + \sin(2\theta) \sin \alpha]$$

$$[\sin(2\theta) \cos \alpha - \cos(2\theta) \sin \alpha] \cos \phi \quad (2.36 - 2)$$

$$E_{DZ} = -2c_1 \mathcal{E}^2 \varepsilon_0 d_{14} [\cos(2\theta) \cos \alpha + \sin(2\theta) \sin \alpha]$$

$$[\sin(2\theta) \cos \alpha - \cos(2\theta) \sin \alpha] \quad (2.36 - 3)$$

Après développement et en utilisant les transformations trigonométriques suivantes [40] :

$$\cos^2(2\theta) - \sin^2(2\theta) = \cos(4\theta) \quad (2.37 - 1)$$

$$2 \cos(2\theta) \sin(2\theta) = \sin(4\theta) \quad (2.37 - 2)$$

$$\cos^2 \alpha - \sin^2 \alpha = \cos(2\alpha) \quad (2.37 - 3)$$

$$2 \cos \alpha \sin \alpha = \sin(2\alpha) \quad (2.37 - 4)$$

et les formules trigonométriques suivantes [40] :

$$\cos(a - b) = \cos a \cos b + \sin a \sin b \quad (2.37 - 5)$$

$$\sin(a - b) = \sin a \cos b - \cos a \sin b \quad (2.37 - 6)$$

les composantes du champ électrique au point D deviennent :

$$E_{DX} = 2c_1 \mathcal{E}^2 \varepsilon_0 d_{11} \cos(4\theta - 2\alpha - \varphi) \quad (2.38 - 1)$$

$$E_{DY} = 2c_1 \mathcal{E}^2 \varepsilon_0 d_{11} \sin(4\theta - 2\alpha - \varphi) \quad (2.38 - 2)$$

$$E_{DZ} = -c_1 \mathcal{E}^2 \varepsilon_0 d_{14} \sin(4\theta - 2\alpha) \quad (2.38 - 3)$$

Dans ses axes propres, la matrice de Jones associée à l'analyseur est :

$$[T_A] = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.39)$$

Les axes propres de l'analyseur sont tournés d'un angle β par rapport à ceux du référentiel du laboratoire. Par rapport à ce dernier, la matrice de Jones associée à l'analyseur devient :

$$[M_2] = \begin{pmatrix} \cos \beta & -\sin \beta \\ \sin \beta & \cos \beta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \beta & \sin \beta \\ -\sin \beta & \cos \beta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos^2 \beta & \cos \beta \sin \beta \\ \sin \beta \cos \beta & \sin^2 \beta \end{pmatrix} \quad (2.40)$$

En introduisant la composante de la polarisation suivant l'axe (OZ), cette matrice s'écrit sous la forme suivante :

$$[M_2] = \begin{pmatrix} \cos^2 \beta & \cos \beta \sin \beta & 0 \\ \sin \beta \cos \beta & \sin^2 \beta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.41)$$

Le champ électrique au point F s'écrit alors :

$$\vec{E}_F = \begin{pmatrix} E_{FX} \\ E_{FY} \\ E_{FZ} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos^2 \beta & \cos \beta \sin \beta & 0 \\ \sin \beta \cos \beta & \sin^2 \beta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{DX} \\ E_{DY} \\ E_{DZ} \end{pmatrix} \quad (2.42)$$

où :

$$E_{FX} = \cos^2 \beta E_{DX} + \cos \beta \sin \beta E_{DY} \quad (2.42 - 1)$$

$$E_{FY} = \sin \beta \cos \beta E_{DX} + \sin^2 \beta E_{DY} \quad (2.42 - 2)$$

$$E_{FZ} = E_{DZ} \quad (2.42 - 3)$$

En remplaçant les composantes du champ électrique au point D, on obtient :

$$E_{FX} = 2c_1 \mathcal{E}^2 \varepsilon_0 d_{11} [\cos(4\theta - 2\alpha - \varphi) \cos^2 \beta + \sin(4\theta - 2\alpha - \varphi) \cos \beta \sin \beta] \quad (2.42 - 4)$$

$$E_{FY} = 2c_2 \mathcal{E}^2 \varepsilon_0 d_{11} [\cos(4\theta - 2\alpha - \varphi) \sin \beta \cos \beta + \sin(4\theta - 2\alpha - \varphi) \sin^2 \beta] \quad (2.42 - 5)$$

$$E_{FZ} = -c_1 \mathcal{E}^2 \varepsilon_0 d_{14} \sin(4\theta - 2\alpha) \quad (2.42 - 6)$$

Notons que la composante E_{DZ} n'a pas varié lors de son passage à travers l'analyseur. En effet, seules les composantes de la polarisation se trouvant dans le plan (XY) seront affectées.

Finalement l'intensité seconde harmonique s'obtient en calculant le carré du module du champ électrique au point F :

$$I_{SHG}(\theta, \alpha, \varphi, \beta) = \|\vec{E}_F\|^2 = E_{FX}^2 + E_{FY}^2 + E_{FZ}^2$$

$$= 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\begin{array}{l} \cos^2(4\theta - 2\alpha - \varphi) \cos^4 \beta + \sin^2(4\theta - 2\alpha - \varphi) \sin^4 \beta \\ + 2 \cos(4\theta - 2\alpha - \varphi) \sin(4\theta - 2\alpha - \varphi) \cos \beta \sin \beta \\ \sin^2 \beta \cos^2 \beta + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \sin^2(4\theta - 2\alpha) \end{array} \right] \quad (2.43)$$

Examinons maintenant quelques cas particuliers correspondants à des états spécifiques de la polarisation du faisceau lumineux sortant de la cavité laser et pour les deux composantes, verticale (V) et horizontale (H), de la polarisation de l'onde à la fréquence harmonique.

- **Premier cas : polarisation linéaire suivant l'axe (OX)**

Dans ce cas $\alpha = 0$ et la relation (2.43) devient :

$$I_{SHG}(\theta, \alpha = 0, \varphi, \beta) = 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\begin{array}{l} \cos^2(4\theta - \varphi) \cos^4 \beta + \sin^2(4\theta - \varphi) \sin^4 \beta \\ + 2 \cos(4\theta - \varphi) \sin(4\theta - \varphi) \cos \beta \sin \beta \\ \sin^2 \beta \cos^2 \beta + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \sin^2(4\theta) \end{array} \right] \quad (2.44)$$

Pour une polarisation horizontale ($\beta = 0$) du champ harmonique, la relation (2.44) s'écrit :

$$I_{SHG}^H(\theta, \alpha = 0, \varphi, \beta = 0) = 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\cos^2(4\theta - \varphi) + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \sin^2(4\theta) \right] \quad (2.44 - 1)$$

Pour une polarisation verticale ($\beta = \pi/2$) du champ harmonique, la relation (2.44) s'écrit :

$$I_{SHG}^V(\theta, \alpha = 0, \varphi, \beta = \pi/2) = 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\sin^2(4\theta - \varphi) + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \sin^2(4\theta) \right] \quad (2.44 - 2)$$

- **Deuxième cas : polarisation linéaire suivant l'axe (OY)**

Dans ce cas $\alpha = \pi/2$ et la relation (2.43) devient :

$$I_{SHG}(\theta, \alpha = \pi/2, \varphi, \beta)$$

$$= 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\begin{array}{l} \cos^2(4\theta - \pi - \varphi) \cos^4 \beta + \sin^2(4\theta - \pi - \varphi) \sin^4 \beta \\ + 2 \cos(4\theta - \pi - \varphi) \sin(4\theta - \pi - \varphi) \cos \beta \sin \beta \\ \sin^2 \beta \cos^2 \beta + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \sin^2(4\theta - \pi) \end{array} \right] \quad (2.45)$$

Pour une polarisation horizontale ($\beta = 0$) du champ harmonique, la relation (2.45) s'écrit :

$$\begin{aligned} I_{SHG}^H(\theta, \alpha = \pi/2, \varphi, \beta = 0) \\ = 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\cos^2(4\theta - \pi - \varphi) + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \sin^2(4\theta - \pi) \right] \quad (2.45 - 1) \end{aligned}$$

Pour une polarisation verticale ($\beta = \pi/2$) du champ harmonique, la relation (2.45) s'écrit :

$$\begin{aligned} I_{SHG}^V(\theta, \alpha = \pi/2, \varphi, \beta = \pi/2) \\ = 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\sin^2(4\theta - \pi - \varphi) + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \sin^2(4\theta - \pi) \right] \quad (2.45 - 2) \end{aligned}$$

En utilisant les formules trigonométriques suivantes [40] :

$$\cos(a - \pi) = \cos(\pi - a) = -\cos a \quad (2.45 - 3)$$

$$\sin(a - \pi) = -\sin(\pi - a) = -\sin a \quad (2.45 - 4)$$

Les relations (2.45-1) et (2.45-2) deviennent :

$$I_{SHG}^H(\theta, \alpha = \pi/2, \varphi, \beta = 0) = 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\cos^2(4\theta - \varphi) + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \sin^2(4\theta) \right] \quad (2.45 - 5)$$

$$\begin{aligned} I_{SHG}^V(\theta, \alpha = \pi/2, \varphi, \beta = \pi/2) \\ = 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\sin^2(4\theta - \varphi) + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \sin^2(4\theta) \right] \quad (2.45 - 6) \end{aligned}$$

- **Troisième cas : Polarisation linéaire dans une direction qui fait un angle $\alpha = 45^\circ = \pi/4$ avec l'axe X**

Dans ce cas $\alpha = \pi/4$ et la relation (2.43) devient :

$$I_{SHG}(\theta, \alpha = \pi/4, \varphi, \beta)$$

$$= 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \begin{bmatrix} \cos^2 \left(4\theta - \frac{\pi}{2} - \varphi \right) \cos^4 \beta + \sin^2 \left(4\theta - \frac{\pi}{2} - \varphi \right) \sin^4 \beta \\ + 2 \cos \left(4\theta - \frac{\pi}{2} - \varphi \right) \sin \left(4\theta - \frac{\pi}{2} - \varphi \right) \cos \beta \sin \beta \\ \sin^2 \beta \cos^2 \beta + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \sin^2 \left(4\theta - \frac{\pi}{2} \right) \end{bmatrix} \quad (2.46)$$

Pour une polarisation horizontale ($\beta = 0$) du champ harmonique, la relation (2.46) s'écrit :

$$I_{SHG}^H(\theta, \alpha = \pi/4, \varphi, \beta = 0) \\ = 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\cos^2 \left(4\theta - \frac{\pi}{2} - \varphi \right) + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \sin^2 \left(4\theta - \frac{\pi}{2} \right) \right] \quad (2.46 - 1)$$

Pour une polarisation verticale ($\beta = \pi/2$) du champ harmonique, la relation (2.46) s'écrit :

$$I_{SHG}^V(\theta, \alpha = \pi/4, \varphi, \beta = \pi/2) \\ = 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\sin^2 \left(4\theta - \frac{\pi}{2} - \varphi \right) + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \sin^2 \left(4\theta - \frac{\pi}{2} \right) \right] \quad (2.46 - 2)$$

En utilisant les formules trigonométriques suivantes [40] :

$$\cos \left(a - \frac{\pi}{2} \right) = \cos \left(\frac{\pi}{2} - a \right) = \sin a \quad (2.46 - 3)$$

$$\sin \left(a - \frac{\pi}{2} \right) = -\sin \left(\frac{\pi}{2} - a \right) = -\cos a \quad (2.46 - 4)$$

Les relations (2.46-1) et (2.46-2) deviennent :

$$I_{SHG}^H(\theta, \alpha = \pi/4, \varphi, \beta = 0) \\ = 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\sin^2(4\theta - \varphi) + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \cos^2(4\theta) \right] \quad (2.46 - 5)$$

$$I_{SHG}^V(\theta, \alpha = \pi/4, \varphi, \beta = \pi/2) \\ = 4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 \left[\cos^2(4\theta - \varphi) + \frac{d_{14}}{4d_{11}} \cos^2(4\theta) \right] \quad (2.46 - 6)$$

Remarque :

Dans tous les cas que venons de traiter, il est aisé de vérifier que :

$$I_{SHG}^H \left(\frac{\pi}{2} \pm (4\theta - \varphi) \right) = I_{SHG}^V(4\theta - \varphi) \quad (2.47)$$

Chapitre 3

Simulation, résultats et interprétations

1. Introduction

Après avoir trouvé l'expression de l'intensité seconde harmonique générée par les cristaux de quartz alpha, en fonction de l'angle de polarisation du champ incidente, pour différents états de polarisation des faisceaux sortant de la cavité et incident et pour des polarisations horizontale et verticale du faisceau harmonique, nous allons étudier dans ce dernier chapitre, à travers des simulations, l'influence de de quelques paramètres pertinents sur l'intensité seconde harmonique. Il s'agit essentiellement de la polarisation harmonique, la polarisation du champ sortant de la cavité laser, l'intensité incidente, l'angle du quartz et la nature tensorielle de la réponse seconde harmonique.

2. Origine du signal SHG

Avant d'entamer les simulations, il est nécessaire d'éclaircir l'origine du signal seconde harmonique observée dans les cristaux de quartz alpha. Dans l'approximation dipolaire électrique, l'interaction entre le champ électromagnétique et la matière se fait de manière locale. Dans ce cas, il est donc considéré qu'un atome en un point est uniquement sensible au champ en ce point et que les effets dus à la variation du champ autour de la position initiale sont négligeables. Cette approximation n'est valable que pour des matériaux dans lesquels le déplacement des électrons, dû à l'application d'un champ, reste négligeable devant la distance nécessaire pour que la variation de ce champ soit appréciable. Dans cette approximation, la génération de second harmonique ne peut être modélisée que pour des matériaux n'ayant pas d'électrons libres. Pour modéliser le mouvement de l'électron, lié à son noyau, crée par un champ exciteur, on utilise le modèle de l'oscillateur anharmonique, comme cela a été précisé dans le premier chapitre.

Cette approche est en fait réductrice et les effets des ordres supérieurs de la polarisation sont souvent importants, voir prédominants, par rapport aux effets dipolaires électriques.

Nous partons de l'expression générale de la polarisation non linéaire développée en série de multipôles [41] :

$$\vec{P}_{tot}^{(2)}(\vec{r}, t) = \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, t) + \vec{\nabla} \cdot \vec{Q}^{(2)}(\vec{r}, t) \quad (3.1)$$

où $\vec{P}^{(2)}(\vec{r}, t)$ est la contribution dipolaire électrique locale et $\vec{\nabla} \cdot \vec{Q}^{(2)}(\vec{r}, t)$ représente la contribution quadripolaire électrique non locale. Dans ce développement multipolaire, on a négligé les effets magnétiques ainsi que les multipôles d'ordre supérieur.

La relation (3.1) peut se mettre aussi sous la forme :

$$\vec{P}_{tot}^{(2)}(\vec{r}, t) = \varepsilon_0 \left[\vec{\chi}^{(2)} : \vec{E}\vec{E} + \vec{\nabla} \cdot \left(\vec{\chi}_Q^{(2)} : \vec{E}\vec{E} \right) \right] \quad (3.2)$$

où nous avons introduit le tenseur de susceptibilité dipolaire électrique $\vec{\chi}^{(2)}$ et le tenseur de susceptibilité quadripolaire électrique $\vec{\chi}_Q^{(2)}$.

Pour un milieu matériel soumis à une onde incidente monochromatique plane et progressive, la divergence de la polarisation non linéaire quadripolaire s'exprime par [42] :

$$\left[\vec{\nabla} \cdot \left(\vec{\chi}_Q^{(2)} : \vec{E}\vec{E} \right) \right]_i = \varepsilon_0 \left[a_1 \nabla_i (\vec{E} \cdot \vec{E}) + a_2 (\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) E_i + a_3 (E_i \nabla_i) E_i \right] + \varepsilon_0 \left[\nabla_j \chi_{Q,ijkl}^{(2)} \right] E_k E_l \quad (3.3)$$

Avec :

$$a_1 = \chi_{Q,iiij}^{(2)} \quad (3.3 - 1)$$

$$a_2 = \frac{1}{2} \chi_{Q,ijij}^{(2)} \quad (3.3 - 2)$$

$$a_3 = \chi_{Q,iiii}^{(2)} - \left(\chi_{Q,ijji}^{(2)} + \chi_{Q,iiij}^{(2)} + \chi_{Q,ijij}^{(2)} \right) \quad (3.3 - 3)$$

Les paramètres a_1 et a_2 , décrivant la réponse harmonique d'un milieu isotrope (la réponse est indépendante de l'orientation du milieu), ont été introduits par Bloembergen et al. [43]. La réponse due à une possible anisotropie du milieu est caractérisé par le terme a_3 [42].

Si l'on considère un milieu homogène, exempt de charges libres, le deuxième terme de l'équation (3.3) est nul selon l'équation de Maxwell :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0 \quad (3.4)$$

On néglige aussi les variations spatiales de la susceptibilité, en d'autres termes, on suppose que sa valeur varie d'une manière abrupte d'un milieu à un autre. De plus, si on considère un milieu anisotrope, l'équation (3.3) se réduit à :

$$\left[\vec{\nabla} \cdot \left(\vec{\chi}_Q^{(2)} : \vec{E}\vec{E} \right) \right]_i = \varepsilon_0 \left[a_1 \nabla_i (\vec{E} \cdot \vec{E}) + a_3 (E_i \nabla_i) E_i \right] \quad (3.5)$$

En utilisant l'identité vectorielle $\vec{\nabla} \cdot (\vec{E} \cdot \vec{E}) = 2(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) \vec{E}$, on obtient l'expression suivante :

$$\left[\vec{\nabla} \cdot \left(\vec{\chi}_Q^{(2)} : \vec{E}\vec{E} \right) \right]_i = \varepsilon_0 \left[a_1 E_i \nabla_i (\vec{E} \cdot \vec{E}) + a_3 (E_i \nabla_i) E_i \right] = \varepsilon_0 \left[a_1 \nabla_i (\vec{E} \cdot \vec{E}) + a_3 (E_i \nabla_i) E_i \right] \quad (3.6)$$

qui s'écrit sous forme vectorielle :

$$\vec{\nabla} \cdot \left(\vec{\chi}_Q^{(2)} : \vec{E}\vec{E} \right) = \varepsilon_0 \chi_b^{(2)} : \vec{E}\vec{\nabla}\vec{E} + \varepsilon_0 \chi_{ani}^{(2)} : (\vec{E}\vec{\nabla})\vec{E} \quad (3.7)$$

Le tenseur $\chi_b^{(2)}$ et l'indice "b" se réfère au volume (bulk en anglais). Cette contribution d'origine volumique apparait généralement dans les matériaux non centrosymétriques. Le tenseur $\chi_{ani}^{(2)}$ et l'indice "ani" se réfère à l'anisotropie. Cette seconde contribution peut être d'origine volumique ou surfacique et elle indépendante de la centrosymétrie ou non du matériau. Il apparaît ainsi, pour ces deux contributions, que la polarisation non linéaire quadratique est due essentiellement au gradient du champ électrique.

L'expression de la polarisation non linéaire totale d'ordre deux s'écrit donc pour des charges liées :

$$\vec{P}_{tot}^{(2)}(\vec{r}, t) = \varepsilon_0 \left[\chi^{(2)} : \vec{E}\vec{E} + \chi_b^{(2)} : \vec{E}\vec{\nabla}\vec{E} + \chi_{ani}^{(2)} : (\vec{E}\vec{\nabla})\vec{E} \right] \quad (3.8)$$

Dans le cas du quartz alpha, qui est un cristal non centrosymétrique, les contributions dominantes sont celles du volume et de l'anisotropie qui sont de caractère quadripolaire. Notons que la contribution d'origine volumique ($\chi_{ani,b}^{(2)}$) domine celle d'origine surfacique ($\chi_{ani,s}^{(2)}$) dans l'apport de l'anisotropie. En effet, dans le cas d'un cristal, le nombre d'atomes se trouvant sur sa surface est très négligeable devant celui en volume. Donc, pour le quartz alpha, on peut écrire avec une bonne approximation :

$$\vec{P}_{tot}^{(2)}(\vec{r}, t) = \varepsilon_0 \left[\chi_b^{(2)} : \vec{E}\vec{\nabla}\vec{E} + \chi_{ani,b}^{(2)} : (\vec{E}\vec{\nabla})\vec{E} \right] \quad (3.9)$$

Enfin, la contribution d'origine surfacique est due à la brisure de la centrosymétrie au niveau de la surface du cristal. Cette contribution s'annule si le cristal possède une forme centrosymétrique parfaite.

3. Champs et rayonnements multipolaires électriques

Tout système contenant des charges mobiles est source d'un champ électromagnétique. En régime variable ce champ est de nature propagative ; on dit que la source rayonne ce champ. En Régime permanent sinusoïdal l'onde rayonnée est monochromatique. La résolution d'un problème de rayonnement consiste à calculer les champs électrique et magnétique pour une distribution de charges ou de courants donnée. L'utilisation des potentiels vecteur et scalaire comme intermédiaires de calculs permet de simplifier le problème. La structure du champ généré est particulièrement complexe, vu le forçage imposé par le mouvement des charges. Le modèle de l'onde plane progressive harmonique n'est pas valable, sauf pour étudier la propagation à grande distance du champ généré dans le milieu, en approximant les fronts d'onde par des plans tangents. On suppose donc que l'on étudie le champ à un rayon r du point O grand devant la longueur d'onde λ . C'est l'approximation dite du champ lointain.

En électromagnétisme, le développement multipolaire correspond au développement en série du potentiel électrique. Dans ce développement, on utilise des puissances (ou des puissances inverses) de la distance à l'origine ainsi que de la dépendance angulaire, dont les coefficients sont appelés moments multipolaires. En principe, un développement multipolaire procure une description exacte du potentiel et converge généralement sous deux conditions : si les sources (i.e. charges) sont localisées près de l'origine et le point auquel le potentiel est observé est éloigné de l'origine ; ou à l'inverse : les charges sont éloignées de l'origine alors que les potentiels sont observés près de cet origine.

Dans le premier cas (le plus courant), les coefficients du développement en série sont appelés moments multipolaires extérieurs, alors que dans le second cas, ils sont appelés moments multipolaires intérieurs. Le terme d'ordre zéro du développement est appelé monopôle, le terme du premier ordre est appelé moment dipolaire et les 3^e, 4^e...etc. termes sont appelés moments quadripolaire, octupolaire...etc. Le potentiel en une position donnée \vec{r} , dans une distribution de charges, peut être calculé par une combinaison des multipôles intérieurs et extérieurs. Signalons que la théorie des champs radiatifs et multipôles est très abondante dans la littérature [44].

Dans notre cas, on s'intéresse particulièrement à la distribution angulaire du rayonnement, communément connue sous le nom de diagramme polaire du rayonnement. Il s'agit de déterminer et représenter l'intensité lumineuse, en d'autres termes la puissance rayonnée par unité de surface, en fonction de l'angle d'émission ou angle de polarisation du champ incident.

Ces diagrammes de rayonnement se présentent sous forme de lobes d'émission dans les trois dimensions. Dans notre cas, on se contentera d'une représentation des lobes d'émission à deux dimensions. Le nombre de lobes représentés indique le caractère du rayonnement en question. Une structure à deux lobes indique un caractère dipolaire du rayonnement et une structure à quatre lobes indique un caractère quadripolaire du rayonnement...etc. (Figure 3.1)

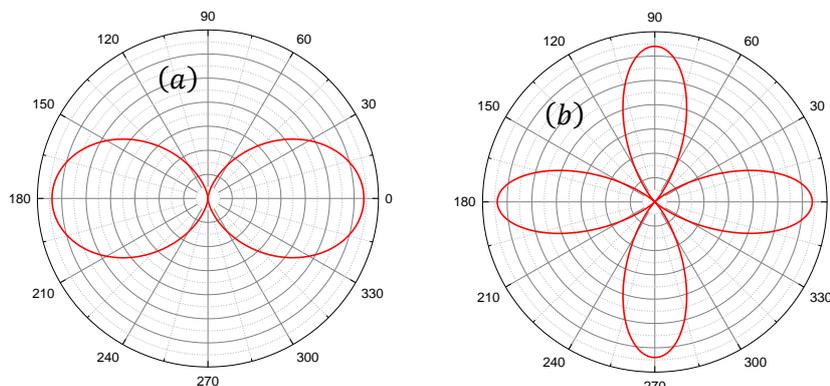


Figure 3.1 : Diagrammes polaires de rayonnement dipolaire (a) et quadripolaire (b) en deux dimensions

4. Considérations générales

Les intensités secondes harmoniques, établies dans le second chapitre pour différents états de polarisation des faisceaux sortant de la cavité, fondamentale et harmonique, seront représentées en fonction de l'angle θ , qui représente l'angle de polarisation du faisceau fondamentale. Comme on l'a déjà mentionné, dans les expériences SHG résolues en polarisation, on fait varier cette angle grâce une lame demi-onde qui est montée sur une platine de rotation motorisée, automatisée et contrôlée par un programme informatique. Les mesures sont effectuées généralement avec un pas de 2° et sur un intervalle de 360° . Ce qui nous fait donc 180 mesures au total.

Les expressions de l'intensité seconde harmonique comportent des fonctions trigonométriques (cosinus et sinus). Dans le but d'avoir des courbes polaires continue et complète, il est nécessaire de réajuster les arguments de ces fonctions ($(4\theta - \varphi)$ et 4θ), qui doivent varier entre 0° et 360° , en les multipliant par le facteur ($180/360 = 1/2 = 0.5$).

L'influence de l'intensité incidente I_0 sur l'échantillon est représentée par la quantité \mathcal{E}^4 , où \mathcal{E} est l'enveloppe complexe du champ électrique fondamentale. En effet $I_0^2 = \mathcal{E}^4$. Dans le cas d'une polarisation linéaire, cette quantité est constante. Pour faire varier l'intensité incidente, on agit sur la puissance incidente grâce à un cube polariseur (CP) disposé après la lame demi-onde dans le dispositif expérimentale. Dans les expressions de l'intensité SHG générée par le quartz alpha, on peut poser :

$$4c_1^1 \mathcal{E}^4 \varepsilon_0^2 d_{11}^2 = m I_0^2 = I_{SHG}^{max} \quad (3.10)$$

où la quantité $m = 4c_1^1 \varepsilon_0^2 d_{11}^2$ est une constante et I_{SHG}^{max} l'intensité SHG maximale. Dans les simulations, nous allons donner des valeurs à I_{SHG}^{max} , extraites des ajustements des courbes expérimentales, correspondant ainsi à certaines valeurs de I_0 [35].

Comme on l'a déjà signalé dans le chapitre 2, l'angle φ introduit dans les expressions de l'intensité seconde harmonique est dû au fait que le quartz est un cristal anisotrope ou un système optique qui agit sur la polarisation de l'onde lumineuse. En effet, la direction d'une vibration lumineuse de polarisation rectiligne qui traverse une lame de quartz tourne d'un angle φ indépendant de l'orientation primitive de cette polarisation. Le quartz est donc un rotateur de polarisation. L'angle de rotation est proportionnel à l'épaisseur l de la lame de quartz. On a :

$$\varphi = [\varphi]l \quad (3.11)$$

où $[\varphi]$ est une constante caractéristique du cristal, appelée pouvoir rotatoire spécifique. Elle est égale à 21^0 mm^{-1} pour le quartz [32]. Selon que, pour l'observateur qui reçoit la lumière, la rotation φ a lieu dans le sens des aiguilles d'une montre ou en sens inverse, le pouvoir rotatoire est dit droit ou gauche. Par conséquent, pour faire varier l'angle de rotation φ , il suffit de faire varier l'épaisseur de l'échantillon. Dans une expérience, cela revient à utiliser plusieurs lames de quartz d'épaisseurs différentes.

5. Effet de la polarisation du champ harmonique

La figure 3.2 représente les graphes polaires de l'intensité SHG généré par le quartz alpha en fonction de l'angle de polarisation du champ incident θ , pour trois états spécifiques de la polarisation du faisceau lumineux sortant de la cavité laser ($\alpha = 0, \pi/4, \pi/2$), et pour deux états de polarisation orthogonaux : horizontal ($\beta = 0$) et vertical ($\beta = \pi/2$) du champ harmonique. Ces courbes polaires sont obtenues en représentant les équations (2.44-1), (2.44-2), (2.45-5), (2.45-6), (2.46-5) et (2.46-6), dans lesquelles nous avons négligé le second terme en posant $d_{14} = 0$ et pris en compte les considérations énoncées dans le paragraphe 4. Pour les simulations, nous avons utilisé les valeurs suivantes pour les différents paramètres : $I_{SHG}^{max} = 3200 \text{ u.a}$; $\varphi = \pi/3$

Ces diagrammes de rayonnement SHG présentent une géométrie à quatre lobes. La réponse SHG est donc quadripolaire électrique. On remarque que pour chaque état de polarisation du faisceau lumineux sortant de la cavité laser, les diagrammes correspondant aux états de polarisation : horizontal et vertical sont identiques et les intensités correspondantes sont reliées par la relation (2.47). En d'autres termes, les courbes polaires correspondantes sont décalées l'une par rapport à l'autre d'un angle de 45° . Ce résultat est prévisible vu la forme de mathématique de l'intensité SHG. En effet :

$$\sin\left(4\theta - \varphi + \frac{\pi}{2}\right) = \sin\left[2\left(2\theta - \frac{\varphi}{2} + \frac{\pi}{4}\right)\right] = \cos(4\theta - \varphi) = \cos\left[2\left(2\theta - \frac{\varphi}{2}\right)\right] \quad (3.12)$$

Et en tenant compte des considérations énoncées dans le paragraphe 4, il s'en suit que :

$$\sin\left(2\theta - \frac{\varphi}{2} + \frac{\pi}{4}\right) = \cos\left(2\theta - \frac{\varphi}{2} + \frac{\pi}{4}\right) \quad (3.13)$$

On remarque également que les intensités SHG polarisés horizontalement et verticalement s'annulent pour $\theta = 15^\circ$ ou $\theta = 60^\circ$. En effet :

$$\sin\left(2\theta - \frac{\pi}{6}\right) = 0 \Rightarrow \theta = \frac{\pi}{12} = 15^\circ \left[\frac{\pi}{2}\right] \quad (3.14)$$

$$\cos\left(2\theta - \frac{\pi}{6}\right) = 0 \Rightarrow \theta = \frac{\pi}{30} = 60^\circ \left[\frac{\pi}{2}\right] \quad (3.15)$$

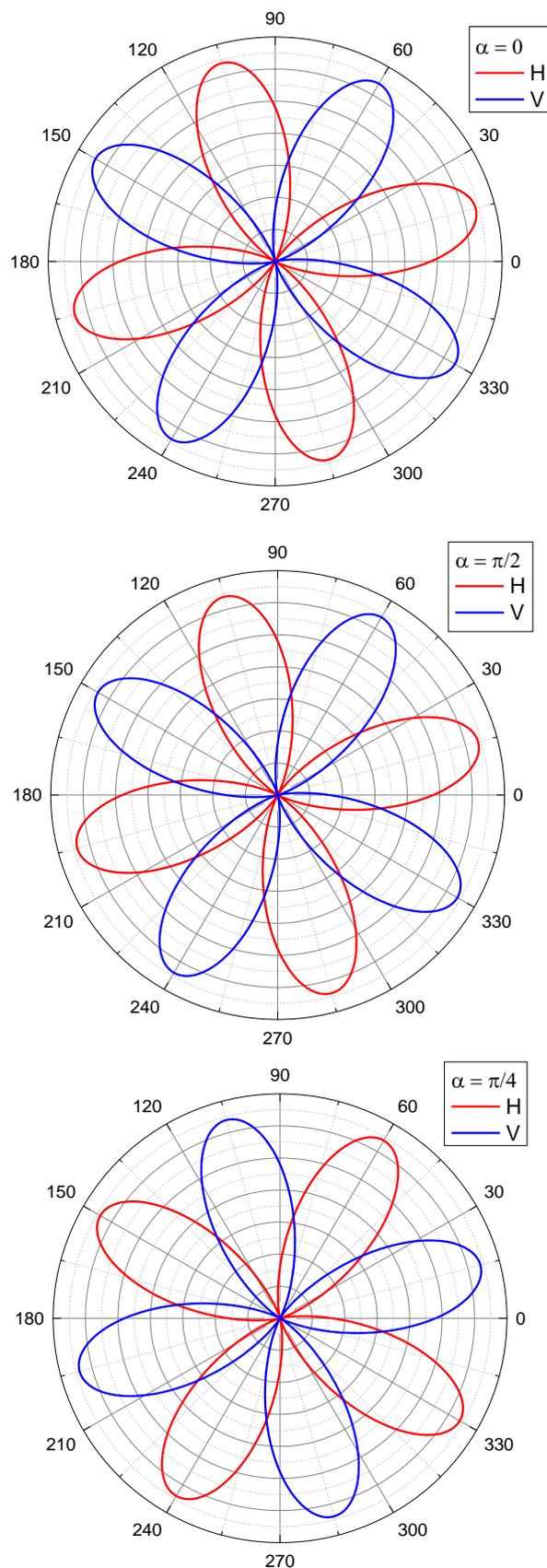


Figure 3.2 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident pour deux états de polarisation orthogonaux : horizontal et vertical du champ harmonique.

Dans la figure 3.3, nous avons représenté les mêmes graphes polaires que précédemment mais en prenant comme paramètre la polarisation du faisceau gaussien sortant de la cavité laser. On remarque que, pour les deux états de polarisation orthogonaux : horizontal et vertical du champ harmonique, les graphes polaires de l'intensité SHG correspondant aux deux états de polarisation horizontal ($\alpha = 0^\circ$) et vertical ($\alpha = 90^\circ$) sont identiques et se superposent. Par contre, les graphes polaires de l'intensité SHG correspondant à l'état de polarisation $\alpha = 45^\circ$ est tourné d'un angle de 45° par rapport aux graphes précédents.

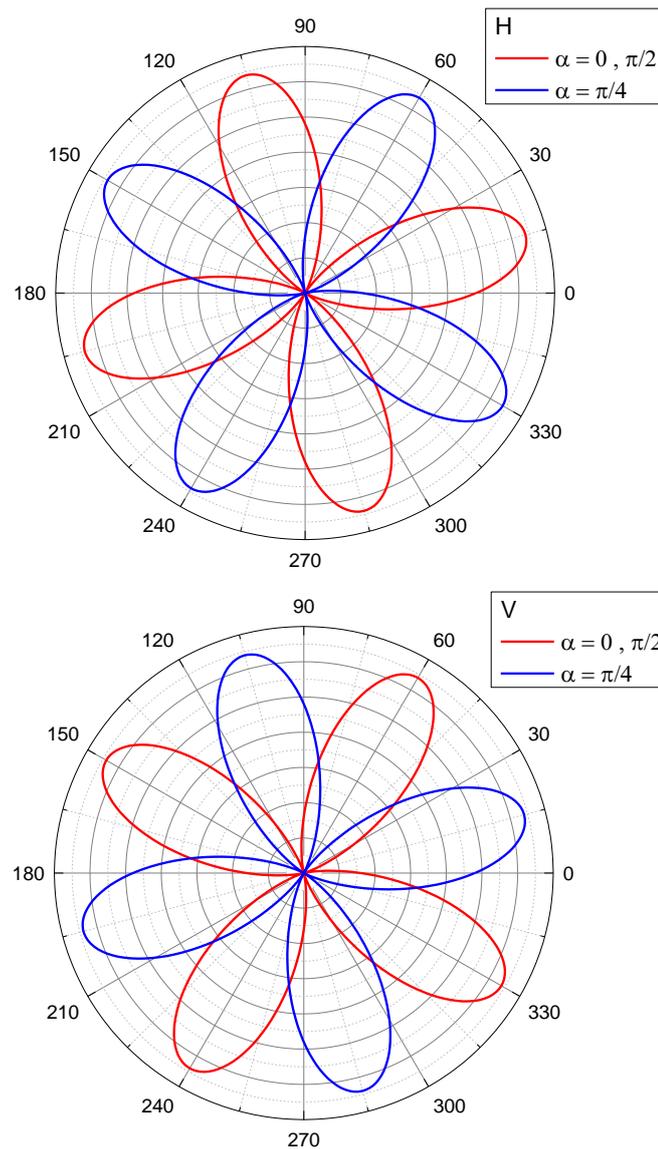


Figure 3.3 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident pour trois états spécifiques de la polarisation du faisceau lumineux sortant de la cavité laser ($\alpha = 0, \pi/4, \pi/2$).

6. Effet de l'intensité incidente

La figure 3.4 représente les graphes polaires de l'intensité SHG généré par le quartz alpha, pour différentes valeurs de l'intensité SHG maximale I_{SHG}^{max} correspondant à différentes valeurs de l'intensité incidente I_0 , en fonction de l'angle de polarisation du champ incident θ , pour trois états spécifiques de la polarisation du faisceau lumineux sortant de la cavité laser ($\alpha = 0, \pi/4, \pi/2$), et pour deux états de polarisation orthogonaux : horizontal ($\beta = 0$) et vertical ($\beta = \pi/2$) du champ harmoniques. Ces courbes polaires sont obtenues en représentant les équations (2.44-1), (2.44-2), (2.45-5), (2.45-6), (2.46-5) et (2.46-6), dans lesquelles nous avons négligé le second terme en posant $d_{14} = 0$ et pris en compte les considérations énoncées dans le paragraphe 4. Pour les simulations, nous avons pris $\varphi = \pi/3$.

On remarque que l'augmentation ou la diminution de l'intensité incidente I_0 n'affecte pas la forme et l'orientation des graphes polaires. La nature de la réponse SHG est toujours quadripolaire. Par conséquent, les remarques émises dans le paragraphe précédent restent valables. Par contre, on remarque qu'un accroissement de I_0 entraînent un grossissement des lobes. Ce grossissement est un signe de l'augmentation de l'intensité SHG émise dans toutes les directions. On remarque que cette augmentation n'est pas isotrope. En effet, les intensités SHG maximales correspondent aux directions $\theta = 15^\circ$ et $\theta = 60^\circ$. Notons que ces directions peuvent correspondre également à des intensités SHG minimales, comme on l'a mentionné dans le paragraphe précédent.

L'augmentation de l'intensité incidente signifie également l'augmentation de l'énergie incidente. Par conséquent, les énergies absorbé et émise par le quartz augmenteront également. Ce fait explique l'accroissement de l'intensité SHG émise. Néanmoins, cette quantité d'énergie émise dépend de la direction d'émission, qui elle-même dépend de la direction du champ incident exciteur par rapport aux dipôles émetteurs, en d'autres termes, de l'angle entre les moments dipolaires \vec{p} et le champ incident. En effet, on montre que l'énergie potentielle électrique d'un dipôle (qui sera ensuite émise sous forme de rayonnement) dans un champ électrique uniforme \vec{E} est donnée par [44] :

$$E_p = -\vec{p} \cdot \vec{E} = -pE \cos(\vec{p}, \vec{E}) \quad (3.16)$$

Il est clair que cette énergie est maximale lorsque les dipôles et le champ incident ont la même direction. On remarque enfin que la dépendance l'intensité SHG en fonction de I_0 (équation 3.10) suit une loi quadratique. Ce fait est une signature du processus de doublage de fréquence.

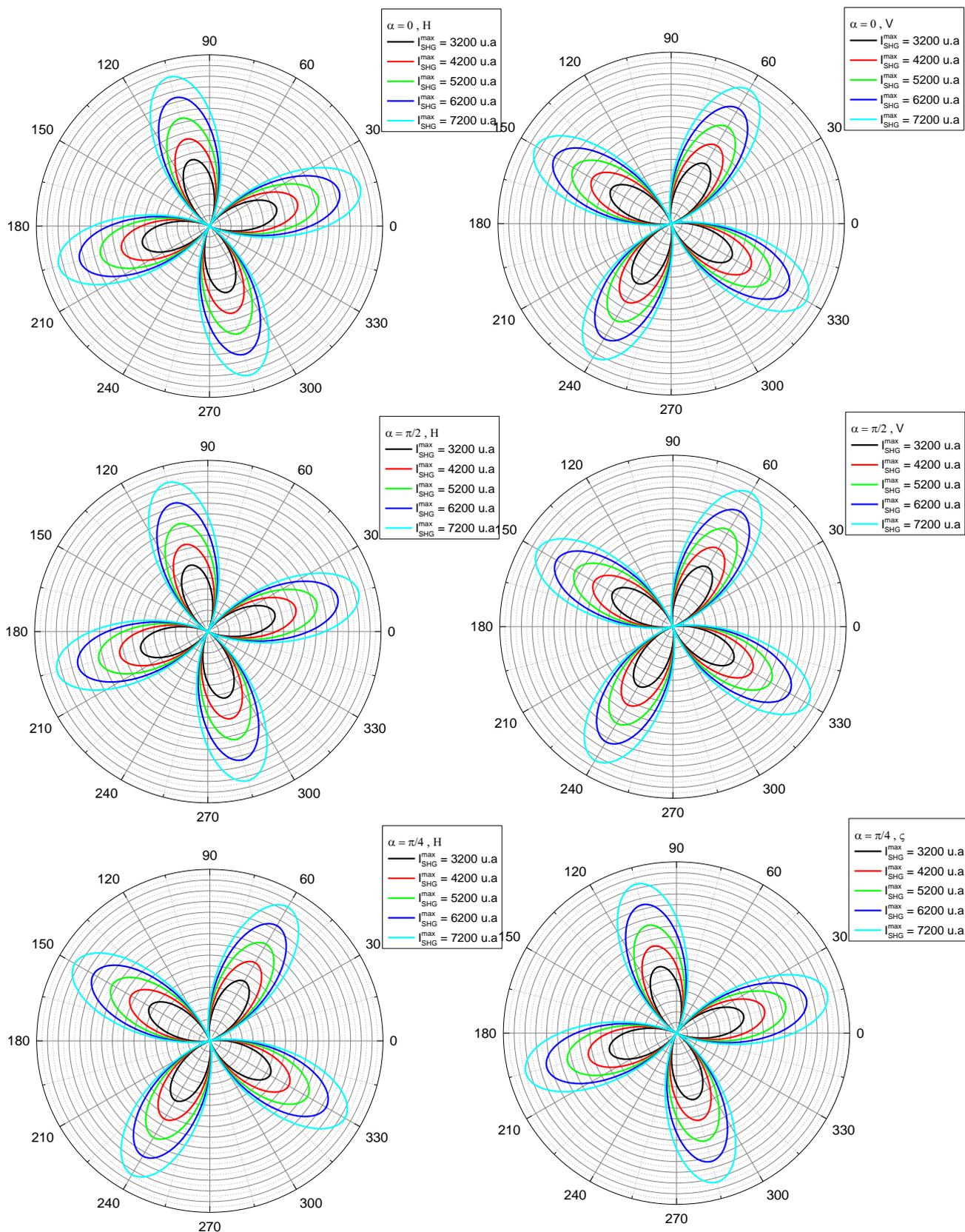


Figure 3.4 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident pour différentes valeurs de l'intensité I_{SHG}^{max} correspondant à différentes valeurs de l'intensité incidente I_0

7. Effet de l'anisotropie

La figure 3.5 représente les graphes polaires de l'intensité SHG généré par le quartz alpha, pour différentes valeurs de l'angle du quartz φ , en fonction de l'angle de polarisation du champ incident θ , pour trois états spécifiques de la polarisation du faisceau lumineux sortant de la cavité laser ($\alpha = 0, \pi/4, \pi/2$), et pour deux états de polarisation orthogonaux : horizontal ($\beta = 0$) et vertical ($\beta = \pi/2$) du champ harmoniques. Ces courbes polaires sont obtenues en représentant les équations (2.44-1), (2.44-2), (2.45-5), (2.45-6), (2.46-5) et (2.46-6), dans lesquelles nous avons négligé le second terme en posant $d_{14} = 0$ et pris en compte les considérations énoncées dans le paragraphe 4. Pour les simulations, nous avons pris $I_{SHG}^{max} = 3200 \text{ u. a.}$

On remarque que la variation de l'angle du quartz alpha φ n'a pas d'influence sur la forme et les dimensions des graphes polaires. La nature de la réponse est toujours quadripolaire et l'intensité SHG maximale est la même dans tous les cas. Par conséquent, certaines remarques émises dans les deux paragraphes précédents restent valables. Par contre, la variation de l'angle du quartz alpha φ entraîne une rotation des graphes polaires. Ainsi, il apparait un décalage angulaire $\Delta\theta$ de ces graphes lorsque l'angle φ varie. Ce fait est une conséquence de l'anisotropie ou la biréfringence du cristal de quartz alpha. L'effet de l'anisotropie est de faire tourner d'un angle φ la polarisation du champ électrique qui traverse le cristal.

Le décalage angulaire des graphes polaires a pour conséquence de varier les angles pour lesquels l'intensité SHG est minimale (nulle) ou maximale. En effet, ces angles seront dépendants de l'angle φ :

$$\sin\left(2\theta - \frac{\varphi}{2} + \frac{\pi}{4}\right) = 0 \Rightarrow \theta = \frac{\varphi}{4} \left[\frac{\pi}{2}\right] \quad (3.17)$$

$$\cos\left(2\theta - \frac{\varphi}{2} + \frac{\pi}{4}\right) = 0 \Rightarrow \theta = \frac{\pi + \varphi}{4} \left[\frac{\pi}{2}\right] \quad (3.18)$$

On remarque également que le décalage angulaire, noté $\Delta\theta$, entre les graphes polaires est proportionnel à l'angle φ , en d'autres termes, la dépendance fonctionnelle entre $\Delta\theta$ et φ est linéaire. D'après la figure 3.5, la pente p de la droite correspondante est :

$$p = \frac{\Delta\theta}{\Delta\varphi} = 0.25 \quad (3.19)$$

Signalons enfin que le sens du décalage angulaire est celui du sens trigonométrique lorsque l'angle φ augmente et vice versa.

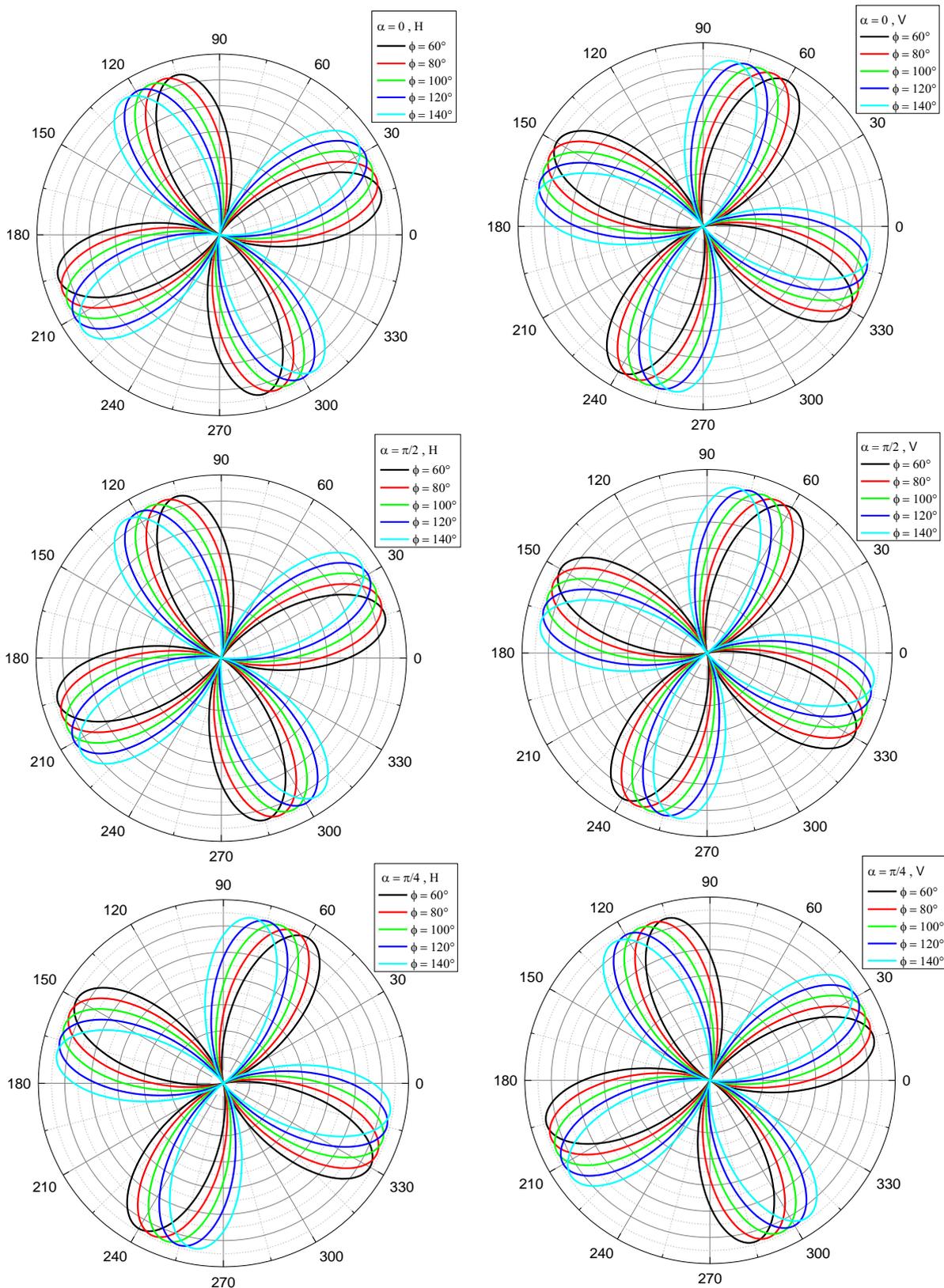


Figure 3.5 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident pour différentes valeurs de l'angle du quartz ϕ .

8. Effet de la nature tensorielle de la réponse

La figure 3.6 représente les graphes polaires de l'intensité SHG généré par le quartz alpha en fonction de l'angle de polarisation du champ incident θ , pour trois états spécifiques de la polarisation du faisceau lumineux sortant de la cavité laser ($\alpha = 0, \pi/4, \pi/2$), et pour deux états de polarisation orthogonaux : horizontal ($\beta = 0$) et vertical ($\beta = \pi/2$) du champ harmoniques. Ces courbes polaires sont obtenues en représentant les équations (2.44-1), (2.44-2), (2.45-5), (2.45-6), (2.46-5) et (2.46-6), dans lesquelles nous avons pris en considération le second terme en posant $d_{14} \neq 0$ et pris en compte les considérations énoncées dans le paragraphe 4. Pour les simulations, nous avons pris $\varphi = \pi/6$ et $I_{SHG}^{max} = 3200 u. a.$

Les premières simulations que nous avons réalisées en utilisant les expressions de l'intensité SHG établies dans le second chapitre n'ont pas montré de grandes différences avec les cas étudiés dans les paragraphes précédents, car le deuxième terme dans les expressions de l'intensité SHG est négligeable devant le premier, du fait que le rapport ($d_{14}/4d_{11}$) est très petit (de l'ordre de 0.005). Pour pallier à ce problème et donner un poids significatif au deuxième terme, nous allons nous intéresser aux coefficients non linéaires d_{ij} . En effet, les valeurs de ces coefficients dépendent de la longueur d'onde à laquelle on souhaite obtenir l'accord de phase et le type du cristal considéré. Ils ont des valeurs comprises entre 0,1 pm/V et 15 pm/V pour les cristaux couramment utilisés en conversion de fréquence vers le visible et l'ultraviolet [32]. Plus ces coefficients sont importants, plus la conversion sera efficace. Pour obtenir des valeurs importantes des coefficients non linéaires, il faut utiliser des cristaux plus minces et des diamètres de focalisation plus importants. Dans le chapitre 1, nous avons donné leurs valeurs de ces coefficients (d_{11} et d_{14}) pour le quartz alpha à une longueur d'onde particulière ($\lambda = 1.064 \mu m$). Dans notre cas, nous allons prendre le rapport ($d_{14}/4d_{11}$) égal à 0.2, correspondant ainsi à une certaine longueur d'onde d'excitation et à une certaine épaisseur de l'échantillon. Sur la figure 3.6, on remarque que la nature de la réponse est toujours quadripolaire. Par conséquent, certaines remarques émises dans les paragraphes précédents restent valables. Ensuite, on remarque que les intensités SHG polarisés horizontalement et verticalement ne s'annulent pas complètement, à cause de la présence du second terme dans les expressions de l'intensité SHG. La présence de ce second membre est responsable aussi du fait que les graphes polaires des intensités SHG polarisées horizontalement et verticalement ne font plus un angle de 45° entre eux. L'intensité SHG résiduelle résulte de la nature tensorielle de la non linéarité. En effet, un champ exciteur dont la polarisation possède des composantes non nulles le long des axes X et Y peut engendrer une réponse le long de l'axe Z .

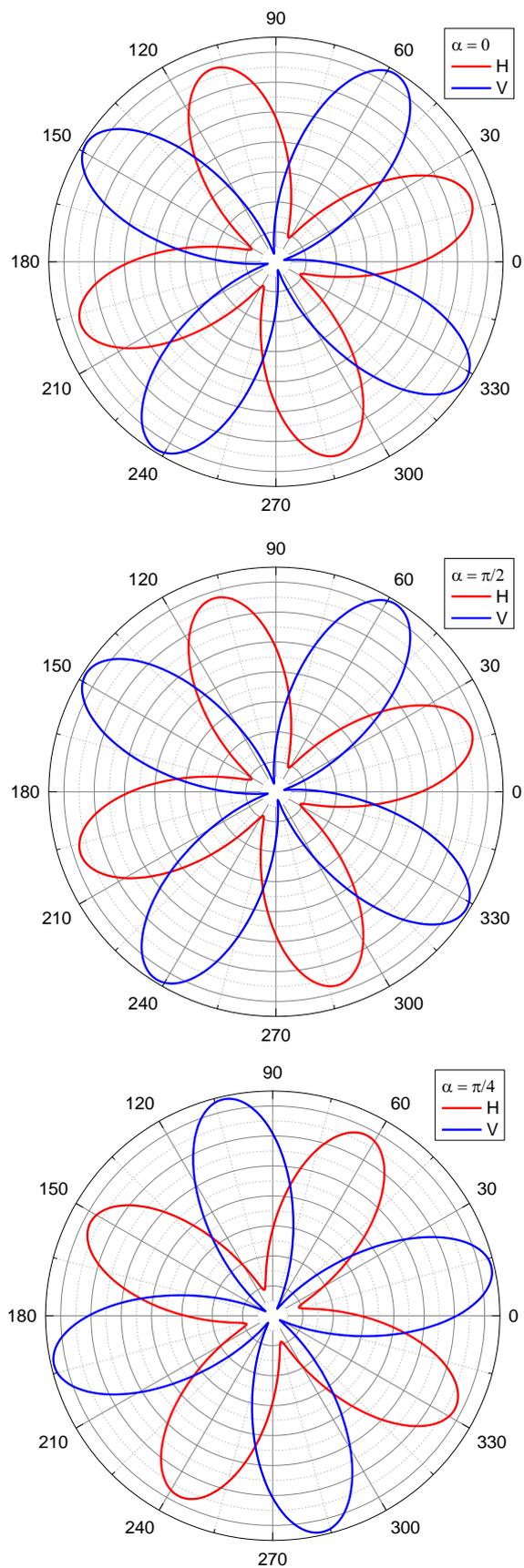


Figure 3.6 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident dans le cas où $d_{14} \neq 0$.

Ce phénomène est le résultat de l'existence de deux éléments non nuls dans le tenseur contracté des susceptibilités du quartz alpha, et en particulier le coefficient non linéaire d_{14} . En effet, l'effet tensoriel n'a pas été observé dans le cas où ce coefficient est nul. On remarque également une légère différence entre les deux minima correspondant aux intensités SHG polarisées horizontalement et verticalement. Les angles correspondant sont $\theta = \pi/12$ [$\pi/2$] et $\theta = \pi/3$ [$\pi/2$], respectivement. Les valeurs de ces deux minima peuvent être évaluées en utilisant les expressions des intensités SHG correspondantes. Enfin, on observe également une légère différence entre les maxima des intensités SHG dans un même graphe polaire correspondant à une intensité SHG polarisée verticalement ou horizontalement. Les valeurs de ces maxima peuvent être évaluées en utilisant les expressions des intensités SHG correspondantes.

Dans cette dernière section, nous allons étudier l'effet de l'intensité incidente I_0 et de l'anisotropie (angle φ) sur la nature tensoriel de la réponse SHG. Pour ce faire, nous avons réalisés des simulations en utilisant différentes valeurs de ceux deux paramètres. Les figures 3.7 et 3.8 représentent les graphes polaires de l'intensité SHG générée par le quartz alpha, obtenus grâce à ces simulations, en fonction de l'angle de polarisation du champ incident θ , pour trois états spécifiques de la polarisation du faisceau lumineux sortant de la cavité laser ($\alpha = 0, \pi/4, \pi/2$), et pour deux états de polarisation orthogonaux : horizontal ($\beta = 0$) et vertical ($\beta = \pi/2$) du champ harmonique. Pour étudier l'influence de l'intensité incidente, nous avons pris $\varphi = \pi/3$ et pour étudier l'influence de l'anisotropie, nous avons pris $I_{SHG}^{max} = 3200 \text{ u.a.}$ Les graphes polaires de la figure 3.7 montrent que l'intensité SHG résiduelle augmente avec l'accroissement de l'intensité incidente. Cette augmentation est isotrope, c'est-à-dire, elle a la même valeur dans les quatre directions correspondant aux minima de l'intensité SHG. Cependant, elle est beaucoup plus prononcée dans le cas de l'intensité SHG polarisée horizontalement que celui de l'intensité SHG polarisée verticalement. Les graphes polaires de la figure 3.8 montrent qu'en augmentant l'angle φ , l'intensité SHG résiduelle diminue dans le cas d'une polarisation harmonique horizontale avec une augmentation de l'intensité SHG générée, et augmente dans le cas d'une polarisation harmonique verticale avec une diminution de l'intensité SHG générée. Ainsi, il existe une compétition entre l'anisotropie et la nature tensorielle, puisque chaque phénomène annule l'effet de l'autre. En effet, dans le cas d'une polarisation harmonique horizontale, l'intensité SHG résiduelle est maximale pour $\varphi = 0$ puis diminue avec l'augmentation de φ pour s'annuler pour $\varphi = \pi$. Par contre, dans le cas d'une polarisation harmonique verticale, l'intensité SHG résiduelle est nul pour $\varphi = 0$ puis augmente

avec l'accroissement de φ pour atteindre sa valeur maximale pour $\varphi = \pi$. Notons enfin que la variation de l'intensité SHG résiduelle est la même que celle de l'intensité SHG générée.

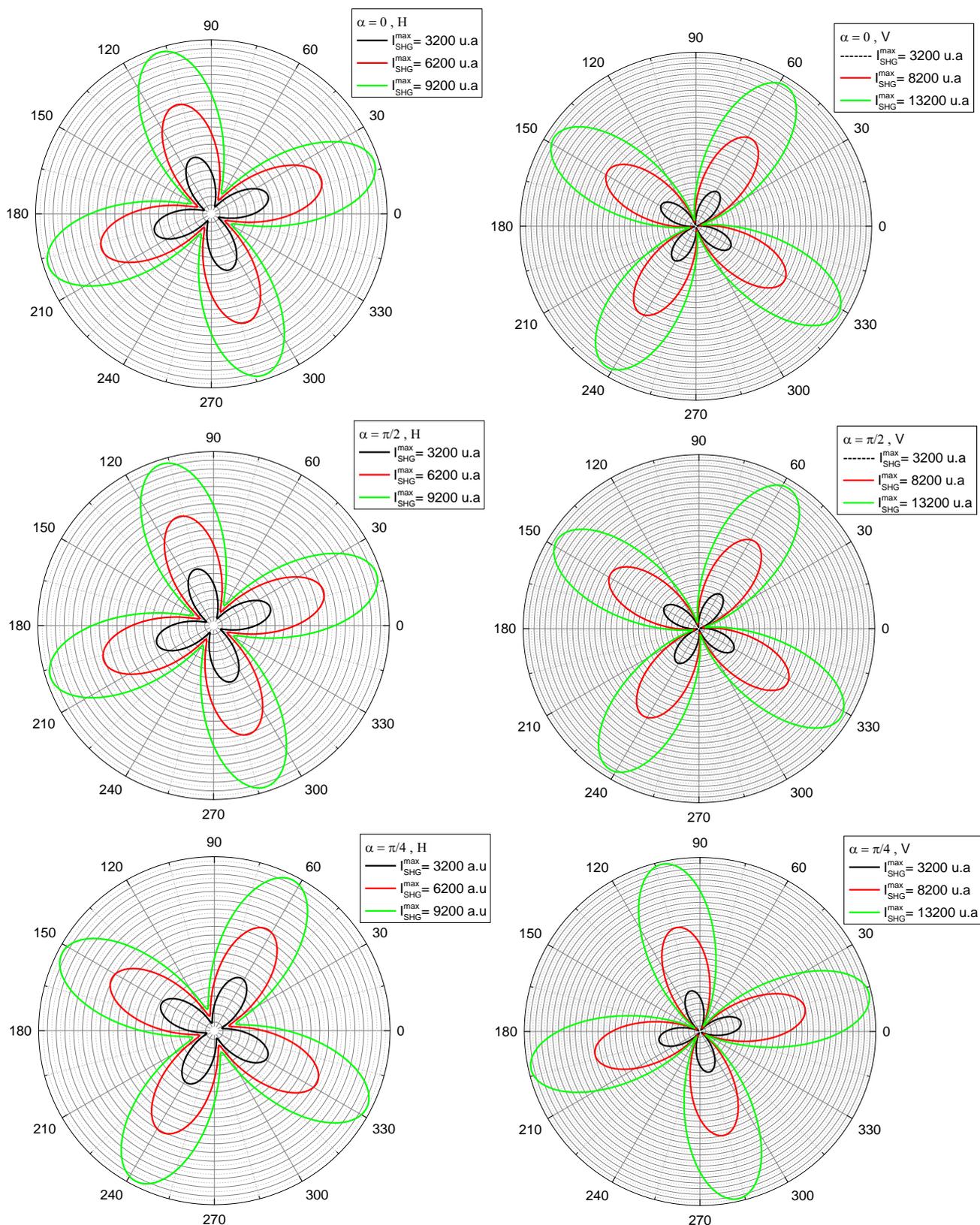


Figure 3.7 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident pour différentes valeurs de l'intensité I_{SHG}^{max} correspondant à différentes valeurs de l'intensité incidente I_0 dans le cas où $d_{14} \neq 0$.

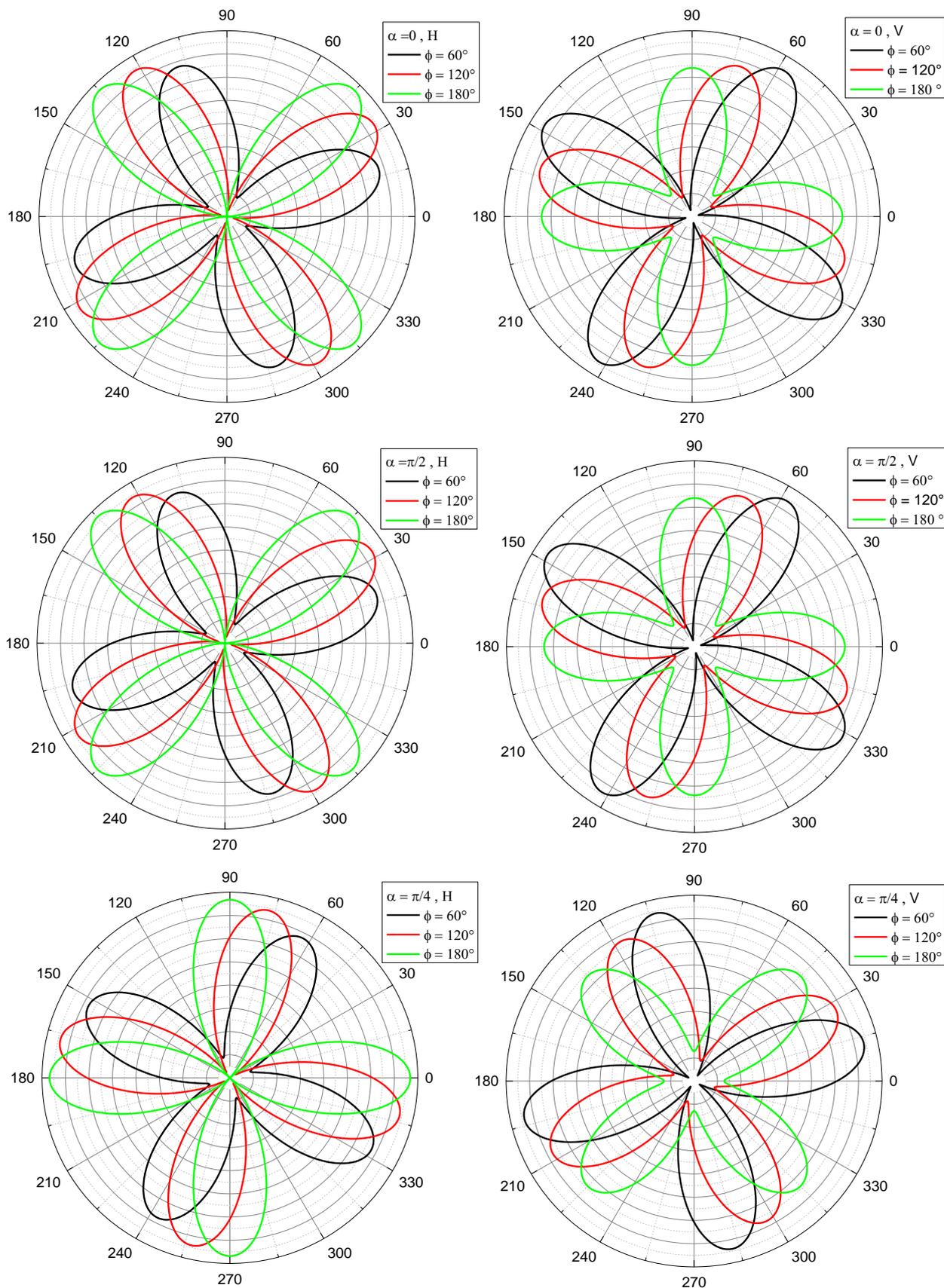


Figure 3.8 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident pour différentes valeurs de l'angle du quartz ϕ dans le cas où $d_{14} \neq 0$.

Conclusion générale et perspectives

Le but de notre travail était la modélisation et la simulation de la génération de la seconde harmonique dans les cristaux de quartz. Ce dernier a eu un double objectif : d'une part, construire un modèle théorique pour la génération de la seconde harmonique dans les cristaux de quartz et d'autre part, étudier l'influence de certains paramètres importants sur l'intensité SHG générée par ces cristaux. Le modèle théorique que nous avons proposé est associé à la technique SHG résolue en polarisation. Pour tenir compte de toutes les situations envisageables, nous avons considéré deux types de polarisation pour le faisceau fondamental : une polarisation à la sortie de la cavité laser et une autre à l'entrée de l'échantillon (incidente).

Afin de déterminer l'expression de l'intensité SHG générée par les cristaux de quartz en fonction de l'angle de polarisation du faisceau incident sur l'échantillon, nous avons fait appel au formalisme des vecteurs et matrices de Jones. Dans ce formalisme, nous avons associé aux états de polarisation des vecteurs et aux différents systèmes optiques agissant sur cette polarisation des matrices. Nous avons ainsi pu déterminer l'expression du champ à la sortie de chaque système optique par de simples multiplications matricielles. Au niveau de l'échantillon, nous avons également considéré le phénomène de génération de la seconde harmonique. Allant de proche en proche, nous avons obtenu l'expression du champ harmonique et l'intensité optique associée. Enfin, nous avons envisagé trois cas pour la polarisation du faisceau sortant de la cavité laser et dans chaque cas, nous avons déterminé l'expression de l'intensité SHG polarisée horizontalement et verticalement, conformément à l'expérience SHG résolue en polarisation. Ces expressions de l'intensité SHG peuvent être utilisées dans le réajustement des données expérimentales, afin d'extraire les valeurs des coefficients non linéaires du tenseur contracté des susceptibilités.

Néanmoins, dans ce mémoire nous avons suivi la procédure inverse. Connaissant les valeurs des coefficients non linéaires, nous avons reproduit les graphes polaires de l'intensité SHG. En d'autres termes, on a réalisé des simulations et étudié l'influence de certains paramètres pertinents sur l'intensité SHG. Dans cette procédure, on fait varier la valeur d'un paramètre et on fixe les valeurs des autres paramètres. Cette étude a mis en lumière plusieurs résultats intéressants :

- L'origine de la réponse SHG dans les cristaux de quartz de type alpha est volumique et de caractère quadripolaire. Elle est le résultat de deux contributions : la première est due à la

non centrosymétrie de la structure cristalline du quartz alpha et la seconde à la nature anisotrope de ce cristal.

- Dans le cas où on néglige l'effet de la nature tensorielle de la réponse SHG ($d_{14} = 0$), les graphes polaires de l'intensité SHG polarisée horizontalement et verticalement sont identiques et font un angle de 45° entre eux. Ces intensités s'annulent pour $\theta = 15^\circ$ ou $\theta = 60^\circ$.
- Les graphes polaires de l'intensité SHG polarisée horizontalement et verticalement correspondant aux deux états de polarisation horizontal ($\alpha = 0^\circ$) et vertical ($\alpha = 90^\circ$) du faisceau lumineux sortant de la cavité laser sont identiques et se superposent, et ceux correspondant à un angle $\alpha = 45^\circ$ sont décalés d'un angle de 45° par rapport aux précédents.
- L'augmentation de l'intensité incidente I_0 entraîne un accroissement non isotrope de l'intensité SHG. L'intensité SHG est proportionnelle au carré de l'intensité incidente (I_0^2). Ce fait est une signature du processus SHG.
- L'anisotrope ou la biréfringence du cristal de quartz alpha entraîne la rotation d'un angle φ de la polarisation du champ électrique qui traverse ce cristal. La variation de cet angle fait apparaître un décalage angulaire $\Delta\theta$ entre les graphes polaires correspondants. Le sens du décalage angulaire est celui du sens trigonométrique lorsque l'angle φ augmente et vice versa, et la dépendance fonctionnelle entre ce décalage et l'angle φ est linéaire.
- La nature tensorielle de la réponse SHG est la conséquence de la non nullité du coefficient non linéaire d_{14} . L'existence de ce paramètre engendre une réponse supplémentaire le long de l'axe Z. Une telle réponse se manifeste par l'apparition d'une intensité SHG résiduelle dans les graphes polaires. L'intensité SHG résiduelle augmente d'une manière isotrope avec l'accroissement de l'intensité incidente. L'étude de l'influence de l'angle du quartz sur l'intensité SHG résiduelle a mis en lumière l'existence d'une compétition entre l'anisotropie et la nature tensorielle, puisque chaque phénomène annule l'effet de l'autre.

Ces résultats laissent entrevoir plusieurs perspectives :

- Refaire la modélisation avec un faisceau incident de profile spatiale gaussien au lieu de celui d'une onde plane ; qui est une approximation.
- La mise en place d'un dispositif expérimental SHG résolue en polarisation pour valider le modèle élaboré et les résultats obtenus.

Bibliographie

- [1] P. Franken, A. Hill, C. Peters, G. Weinreich, Generation of Optical Harmonics, *Physical Review Letters*, 7 (4) : 118 (1961).
- [2] Boyd R. W. *Nonlinear Optics*. Academic Press, 2003.
- [3] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, Interactions between light waves in a nonlinear dielectric. *Phys. Rev*, 127 : 1918 (1962).
- [4] Elsa Garmire, Nonlinear optics in daily life, *Optical Society of America*, 21(25) : 30532 (2013).
- [5] T. H. Maiman, Optical and microwave-optical experiments in ruby, *Phys. Rev. Lett*, 4 : 564 (1960).
- [6] VishalThakur, Niti Kant, Shivani Vij, Harmonic generation by an interaction of laser with an array of anharmonic carbon nanotubes, *Chinese Journal of Physics*, 71 : 660 (2021).
- [7] Dezheng Liao, Jun Xin, Jietai Jing, Nonlinear interferometer based on two-port feedback nondegenerate optical parametric amplification, *Optics Communications*, 496 : 127137 (2021).
- [8] Qian Cheng, Yupeng Miao, Joseph Wild, Wei Min, Yuan Yang, Emerging applications of stimulated Raman scattering microscopy in materials science, *Matter*, 4(5) : 1460 (2021).
- [9] Mathias Hedegaard Kristensen, Peter Kjær Kristensen, Kjeld Pedersen, Esben Skovsen, Fourier transform second harmonic generation for high-resolution nonlinear spectroscopy, *Optics Communications*, 482 : 126593 (2021).
- [10] Tuanjie Du, Xiaojiao Wan, Runhua Yang, Weiwei Li, Qiujuan Ruan, Nan Chen, Zhengqian Luo, Effects of nanomaterial saturable absorption on gain-guide soliton in a positive group-dispersion fiber laser: Simulations and experiments, *Optics Communications*, 406 : 163 (2018).
- [11] Luís C. B.Silva, Carlos E. S. Castellani, Recent progress in optical dark pulses generation based on saturable absorber materials, *Optical Fiber Technology*, 64 : 102560 (2021).
- [12] H.Jerominek, J.Y.D. Pomerleau, R.Tremblay, C. Delisle, An integrated acousto-optic bistable device, *Optics Communications*, 51(1) : 6 (1984).
- [13] Y. R. Shen. *Principles of Nonlinear Optics*. Wiley, New York, 1988

- [14] R. L. Sutherland, Handbook of Nonlinear Optics, 2nd edn, CRC Press, New York, 2003.
- [15] Geoffrey New, Introduction to Nonlinear Optics, 1st edition, Cambridge university press, 2011.
- [16] D. A. Kleinman, A. Ashkin, and G. D. Boyd, Second-Harmonic Generation of Light by Focused Laser Beams, Phys. Rev, 145 : 338 (1966).
- [17] Lei Lei Yin Win, Dai Taguchi, Takaaki Manaka, Transient carrier visualization of organic-inorganic hybrid perovskite thin films by using time-resolved microscopic second-harmonic generation (TRM-SHG), Organic Electronics, 75 : 105416 (2019).
- [18] P-F. Brevet. Second-harmonic generation in nanostructures, In Handbook of Nanoscale Optics and Electronics. Elsevier, Amsterdam, 2010.
- [19] P.D. Maker, R.W. Terhune, M Nisenoff, and C.M. Savage, Effects of dispersion and focusing on the production of optical harmonics. Phys. Rev. Lett, 8 : 21 (1962).
- [20] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, Interactions between light waves in a nonlinear dielectric. Phys. Rev, 127 : 1918 (1962).
- [21] R. L. Byer, Quasi-phasematched nonlinear interactions and devices, J. Nonlinear Opt. Phys. Mater, 6 : 549 (1997).
- [22] M. M. Fejer, D. A Magel, D. H. Jundt, and R.L. Byer, Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances, IEEE J. Quantum Electron, 28 : 2631 (1992).
- [23] B. E. A. Saleh and M. C. Teich, Fundamentals of Photonics, 2nd edition, Wiley, 2007.
- [24] Chunfei Li, Nonlinear Optics : Principles and Applications, Springer, 2015.
- [25] François Sanchez, Optique non-linéaire, ellipses, 1999.
- [26] Christian Delsart, Lasers et optique non linéaire, ellipses, 2005.
- [27] C. Stambaugh, H. Shakeel, D. Kalteyer, P. Abbott, and J. Pomeroy, Traceability of frequency based mass measurements using a quartz crystal microbalance, J. Phys. Conf. Ser, 1065(4) : 042002 (2018).
- [28] C. L. Phillips, R. J. Magyar, and P. S. Crozier, A two-temperature model of radiation damage in α -quartz, J. Chem. Phys., 133(14) : 144711 (2010).

- [29] Maria Camila Garcia Toro, Modification of the optical response of alpha quartz via the deposition of gold nanoparticles in etched ion tracks, Thèse de doctorat, MISSOURI UNIVERSITY OF SCIENCE AND TECHNOLOGY, USA, 2020.
- [30] C. Hernandez-Rodriguez and P. Gomez-Garrido, Optical anisotropy of quartz in the presence of temperature-dependent multiple reflections using a high-accuracy universal polarimeter, *J. Phys. D. Appl. Phys.*, 33 : 2985 (2000).
- [31] C. Gao and W. Li, Theoretical Research on the Bending Effect of Piezoelectric Quartz and Experimental Verification, in 2009 International Conference on Mechatronics and Automation, pp. 1957-1961, 2009.
- [32] V. G. Drnitsriev G. G. Gurzadyan, D. N. Nikogosyan, *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*, Springer, 1999.
- [33] H. B. Liao, R. F. Xiao, J. S. Fu, P. Yu, G. K. L. Wong and P. Sheng, Large third-order optical nonlinearity in Au : SiO₂ composite films near the percolation threshold , *Appl. Phys. Lett.*, 70 : 1 (1997).
- [34] Jean-Michel Lamarre, Propriétés optiques linéaires et non-linéaires de nanocomposites métal-diélectrique anisotropes, Thèse de doctorat, Université Paul Cézanne, Aix-Marseille III, France, 2008.
- [35] Ksssi Ferhat, Elaboration et études des propriétés des agrégats métalliques, Université Mouloud Mammeri de Tizi Ouzou, Algérie, 2013.
- [36] Sunao Kurimura, Masaki Harada, Ken-ichi Muramatsu, Motoi Ueda, Muneyuki Adachi, Tsuyoshi Yamada, and Tokio Ueno, Quartz revisits nonlinear optics: twinned crystal for quasi-phase matching, *Optical Society of America*, 1(7) : 1367 (2011).
- [37] K. Clays and A. Persoons, Hyper-Rayleigh scattering in solution, *Rev. Sci. Instrum.*, 63 : 3285 (1992).
- [38] M. Zdanowicz, S. Kujala, H. Hannu, and M. Kauranen, Effective medium multipolar tensor analysis of second-harmonic generation from metal nanoparticles, *New Journal of Physics*, 13 : 023025 (2011).
- [39] J. L. Oudar, and J. Zyss, Structural dependence of nonlinear-optical properties of methyl-(2,4-dinitrophenyl)-aminopropanoate crystals, *Phys. Rev. A*, 26 : 2016 (1982).
- [40] Fulvio Frisone, *Handbook of Mathematics*, Fifth edition, Springer, 2007.

- [41] P. Guyot-Sionnest and Y. R. Shen, Bulk contribution in surface second-harmonic generation, *Phys. Rev B*, 38 : 7985 (1988).
- [42] T. F. Heinz, *Modern Problems in Condensed Matter Sciences*, Vol. 29, edited by H.-E. Ponath and G. I. Stegeman (North-Holland, Amsterdam), 1991.
- [43] N. Bloembergen, R. K. Chang, S. S. Jha, and C. H. Lee, Optical second-harmonic generation in reflection from media with inversion symmetry, *Phys. Rev*, 174 : 813 (1968).
- [44] J. D. Jackson, *Classical electrodynamics*, 3rd edition, John Wiley & Sons, Inc, 1998.

Liste des tableaux et des figures

Liste des figures

Figure 1.1 : Schémas illustrant la propriété de centrosymétrie au niveau des caractéristiques électroniques d'un système donné. Le point noir de chaque cercle est l'élément de symétrie bien connu appelé centre d'inversion.....13

Figure1.2 : Processus de la génération de second harmonique schématisant l'interaction de l'onde fondamentale ω avec un milieu non linéaire et les niveaux d'énergie impliqués.18

Figure 1.3 : Ellipsoïde des indices[23].25

Figure 1.4 : Forme cristalline du quartz alpha. (A) Projections de la forme du cristal de quartz sur les plans a et c. (B) définition des vecteur du réseau cristallin et des coordonnées cartésiennes.28

Figure 1.5 : Structure cristalline du Quartz.....29

Figure 2 .1 : Dispositif expérimental pour les mesures SHG33

Figure 2.2 : Représentation schématique des angles de polarisation des faisceaux fondamental et harmonique35

Figure2.3 : Évolution temporelle du vecteur champ électrique de la lumière monochromatique pour plusieurs positions: (a) onde arbitraire (b) onde plane ou onde paraxiale se déplaçant dans la direction z.....36

Figure 2.4 : (a) Rotation de l'extrémité du vecteur champ électrique dans le plan XY à une position fixe z. (b) Trajectoire del'extrémité du vecteur champ électrique à un instant t fixe.39

Figure 2.5 : Polarisation elliptique39

Figure 2.6 : Lumière polarisée linéairement. (a) Évolution dans le temps à une position fixe z. (b) évolution dans l'espace à temps fixe t 40

Figure 2.7 : Trajectoires de la pointe du vecteur champ électrique d'une onde plane à polarisation circulaire. (a) Évolution dans temps à une position fixe z. (b) Evolution dans l'espace à un temps t fixe.40

Figure 2.8 : Illustration de la modification de la polarisation d'une onde plane lors de son passage à travers un système optique.44

Figure 2.9 : Le polariseur linéaire. Les lignes dans le polariseur représentent la composante du champ qui est autorisée à passer.45

Figure 2.10 : Les opérations du retardateur quart d'onde sur plusieurs états particuliers de polarisation. Les lettres F et S représentent respectivement les axes rapide et lent du retardateur.46

Figure 2.11 : Les opérations du retardateur demi-onde sur plusieurs états particuliers de polarisation. Les lettres F et S représentent respectivement les axes rapide et lent du retardateur.47

Figure 2.12 : Schéma de principe d'un rotateur de polarisation.47

Figure 2.13 : Transformation des coordonnées.....48

Figure 2.14 : Dispositif expérimental réduit pour les mesures SHG résolues en polarisation 50

Figure 3.1 : Diagrammes polaires de rayonnement dipolaire (a) et quadripolaire (b) en deux dimensions.....61

Figure 3.2 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident pour deux états de polarisation orthogonaux : horizontal et vertical du champ harmonique.....65

Figure 3.3 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident pour trois états spécifiques de la polarisation du faisceau lumineux sortant de la cavité laser ($\alpha = 0, \pi/4, \pi/2$).66

Figure 3.4 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident pour différentes valeurs de l'intensité I_{SHG}^{max} correspondant à différentes valeurs de l'intensité incidente I_068

Figure 3.5 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident pour différentes valeurs de l'angle du quartz φ70

Figure 3.6 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident dans le cas où $d_{14} \neq 0$72

Figure 3.7 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident pour différentes valeurs de l'intensité I_{SHG}^{max} correspondant à différentes valeurs de l'intensité incidente I_0 dans le cas où $d_{14} \neq 0$74

Figure 3.8 : Graphes polaires de l'intensité SHG en fonction de l'angle de polarisation du champ incident pour différentes valeurs de l'angle du quartz φ dans le cas où $d_{14} \neq 0$75

Liste des tableaux

Tableau 1.1 : Quelques processus optiques non linéaires du second ordre.....17

Tableau 1.2 : Quelques propriétés optiques linéaires et non linéaires du quartz alpha.....29

Tableau 2.1 : Vecteurs de Jones pour les états de polarisation linéaires et circulaires.....42

Résumé

Dans ce travail, un modèle théorique a été construit et des simulations ont été réalisées pour étudier la génération de la seconde harmonique dans les cristaux de quartz alpha. En utilisant le formalisme des vecteurs et matrices de Jones, nous avons obtenu une expression de l'intensité SHG générée par ces cristaux en rapport avec l'expérience SHG résolue en polarisation. Grâce à l'expression de cette intensité, nous avons réalisé des simulations pour étudier l'effet de la polarisation harmonique, la polarisation du faisceau lumineux sortant de la cavité laser, l'intensité incidente, l'anisotropie et la nature tensorielle sur cette intensité.

Mots clés : génération de la seconde harmonique, quartz, polarisation, intensité SHG, anisotropie, nature tensorielle

Abstract

In this work, a theoretical model was developed and simulations were performed to study the second harmonic generation in alpha quartz crystals. Using the Jones vectors and matrices calculus, we have thus obtained an expression of the SHG intensity generated by these crystals in relation to the polarization resolved SHG experiment. Using the expression of the SHG intensity, we performed simulations to study the effect of the harmonic polarization, the polarization of the light beam exiting the laser cavity, the incident intensity, the anisotropy and the tensorial nature on this intensity.

Keywords: second harmonic generation, quartz, polarization, SHG intensity, anisotropy, tensorial nature
