Promotion 2004 Année 3 Majeure 2 PHY557A

Majeure de Physique

# **Optique quantique 2 : Photons**

Tome 2

Alain Aspect, Philippe Grangier

Édition 2006 Réimpression 2007

## Table des matières

4	Équ	ations	de Heisenberg en optique quantique	7
	4.1	Le poi	nt de vue de Heisenberg en mécanique quantique	7
	4.2	Équati	ions de Heisenberg pour le champ électromagnétique	9
		4.2.1	Évolution du champ libre	9
		4.2.2	Équations de Maxwell-Heisenberg	10
	4.3	Interfé	rométrie avec des champs quantiques	11
		4.3.1	Champ « monomode » (onde plane monochromatique)	11
		4.3.2	« Traitement quantique » de lame séparatrice	11
		4.3.3	L'interféromètre de Mach-Zehnder : description quantique	13
		4.3.4	Détection d'ondes gravitationnelles	14
		4.3.5	Le bruit quantique dans un interféromètre	15
		4.3.6	Le rôle de la voie habituellement vide	16
		4.3.7	Les états comprimés	17
		4.3.8	La réduction du bruit quantique : en théorie	18
		4.3.9	Et en pratique	18
	4.4	Équati	ions de Heisenberg-Langevin	19
		4.4.1	Introduction	19
		4.4.2	Opérateurs pour un système à deux niveaux	19
		4.4.3	Les trois composantes de l'hamiltonien pour un système à deux	
			niveaux	20
		4.4.4	Évolution des opérateurs	20
		4.4.5	Équations de Heisenberg du système atome-champ	21
		4.4.6	Intégration des équations d'évolution	22
		4.4.7	Approximation de « mémoire courte »	23
		4.4.8	Équations de Heisenberg-Langevin	23
		4.4.9	Évolution des valeurs moyennes	24
		4.4.10	Retour sur l'état de l'atome	24
	4.5	Équati	ions de Heisenberg-Langevin en présence d'un laser	25
		4.5.1	Système étudié	25
		4.5.2	Évolution des valeurs moyennes : équations de Bloch optiques	27
	4.6	Conclu	nsion	27

<b>5</b>	Mat	trice I	Densité et Équations de Bloch Optiques	29
	5.1	L'opé	rateur densité en mécanique quantique	29
		5.1.1	Position du problème	29
		5.1.2	Formulation de la mécanique quantique en termes de	
			projecteurs	30
		5.1.3	La matrice densité	30
		5.1.4	Exemples	32
	5.2	Descri	iption d'un sous-système.	
		Intrica	ation quantique	32
		5.2.1	Matrice densité d'un sous-système	32
		5.2.2	Exemple de systèmes intriqués	33
		5.2.3	Quelques considérations sur les systèmes intriqués	34
	5.3	Équat	ions de Bloch optiques	35
		5.3.1	Formulation mathématique	35
		5.3.2	Discussion	36
	5.4	Absor	ption et diffusion de lumière laser par un atome	38
		5.4.1	Solution typique des EBO en régime transitoire	38
		5.4.2	État stationnaire des EBO : populations	38
		5.4.3	État stationnaire des EBO : cohérences	39
		5.4.4	Nombre de photons diffusés par l'atome	39
	5.5	Spect	re de fluorescence d'un atome irradié par une onde laser	41
		5.5.1	Spectre de fluorescence	41
		5.5.2	Expression du spectre de fluorescence	41
		5.5.3	Spectre de fluorescence inélastique	43
	5.6	Concl	usion $\ldots$	43
C	ompl	ément	5A : Le dégroupement de photons	47
	5A.1	Systèr	me étudié	47
	5A.2	$2 Lien \epsilon$	entre le champ ravonné et le dipôle émetteur	48
	5A.3	8 Corré	lation d'intensité en fonction du dipôle émetteur	48
	5A.4	l Dégro	pupement de photons	50
Co	ompl	ément	5B : Traitement de la relaxation dans le formalisme de la	a
	mat	rice d	ensité	53
	5B.1	Positi	on du problème	53
	5B.2	2 Systèr	nes à deux niveaux	54
Co	ompl	ément	5C : Traitement perturbatif de la matrice densité	59
	5C.1	Résolu	ution par itération de l'équation d'évolution	59
	$5\mathrm{C.2}$	2 Atom	e interagissant avec un champ oscillant	61
6	Opt	ique r	on-linéaire	65
	6.1	Introd	luction	65

6.2	Traiter	ment semi-classique	. 66
	6.2.1	Susceptibilité linéaire	. 66
	6.2.2	Susceptibilité non-linéaire	. 67
	6.2.3	Propagation dans un milieu non-linéaire	. 69
6.3	Mélang	ge à 3 ondes : traitement semi-classique	. 71
	6.3.1	Addition de fréquences	. 71
	6.3.2	Accord de phase	. 74
	6.3.3	Mélange à 3 ondes : évolutions couplées	. 76
	6.3.4	Amplification paramétrique	. 79
	6.3.5	Fluorescence paramétrique	. 80
6.4	Traiter	ment quantique de la fluorescence paramétrique	. 81
	6.4.1	Nécessité et intérêt d'un traitement quantique	. 81
	6.4.2	Traitement quantique du mélange à 3 ondes	. 82
	6.4.3	Traitement perturbatif de la fluorescence paramétrique	. 83
	6.4.4	Paires de photons jumeaux	. 84
	6.4.5	Interférence à deux photons	. 87
	6.4.6	Discussion : photons jumeaux intriqués	. 91
6.5	Conclu	nsion	. 94
~ .			
Compl	ément	6A : Optique non-linéaire dans les milieux Kerr optiques	95
6A.1	Exemp	bles de non-linéarités Kerr	. 96
	6A.1.1	Réponse non-linéaire d'atomes à deux niveaux	. 96
	6A.1.2	Non-linéarités par pompage optique	. 100
	6A.1.3	Autres non-linéarités Kerr	. 102
	6A.1.4	Propagation des champs dans un milieu Kerr	. 103
6A.2	2 Bistab	ilité optique	. 105
	6A.2.1	Milieu Kerr dans une cavité	. 105
	6A.2.2	Transistor optique	. 108
	6A.2.3	Les conditions de la bistabilité optique	. 112
	6A.2.4	Processeur optique	. 114
6A.3	3 Miroir	à conjugaison de phase	. 115
	6A.3.1	Mélange dégénéré à quatre ondes	. 115
	6A.3.2	Conjugaison de phase	. 117
	6A.3.3	Coefficient de réflexion. Amplification par conjugaison de phase	. 120
	6A.3.4	Conjugaison de phase par diffusion stimulée	. 123
6A.4	Propag	gation d'une onde dans un milieu Kerr	. 124
	6A.4.1		. 125
	6A.4.2	Onde autoguidée. Filamentation	. 126
_ •	6A.4.3	Soliton spatial	. 128
6A.5	Propag	gation d'une impulsion dans un milieu Kerr	. 129
	6A.5.1	Automodulation de phase	. 129
	6A.5.2	Dispersion	. 131

$6A.5.3$ Soliton temporel $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$	133
Complément 6B : Non-linéarité du second ordre dans les milieux non cen	<b>.</b> —
trosymétriques	137
6B.1 Non-linéarités du second ordre	137
6B.1.1 Étude d'un modèle simple	137
6B.1.2 Propriétés de la susceptibilité d'ordre 2 à la limite paramétrique	140
6B.2 Exemples d'effets non-linéaires du second ordre	141
6B.2.1 Doublage de fréquence	141
$6B.2.2$ Rectification optique $\ldots$	145
6B.2.3 Mélange paramétrique à trois ondes	146
6B.2.4 Interprétation en terme de photons	148
Complément 6C : L'oscillateur paramétrique optique : un autre type d'os	<u>;</u> -
cillateur optique	151
6C.1 Principe d'un oscillateur paramétrique optique	151
6C.1.1 Rappels sur l'interaction paramétrique	151
6C.1.2 Description de l'Oscillateur Paramétrique Optique	152
6C.2 Fonctionnement de l'OPO en régime stationnaire	152
6C.2.1 Condition d'oscillation pour la phase	153
6C.2.2 Condition d'oscillation pour l'amplitude	154
6C.2.3 Intensité des champs sortants	155
6C.3 Intérêt de l'OPO	156
Complément 6D : Cavité résonnante Fabry-Perot	159
6D.1 Position du problème. Cavité linéaire	159
6D.2 Facteur de transmission et de réflexion de la cavité	161
6D.3 Cavité en anneau à un seul miroir de couplage	163
6D.4 Finesse. Facteur de qualité	164
6D.5 Exemple. Cavité de grande finesse	166
6D.6 Cavité laser linéaire	167
Complément 6E : Faisceaux gaussiens. Modes transverses d'un laser	169
6E.1 Faisceau gaussien	170
6E.2 Mode gaussien fondamental d'une cavité stable	171
6E.3 Modes gaussiens	173
6E.4 Modes longitudinaux et transverses d'un laser	177

## Chapitre 4

## Équations de Heisenberg en optique quantique

## 4.1 Le point de vue de Heisenberg en mécanique quantique

Le formalisme de la mécanique quantique décrit les systèmes physiques en introduisant deux types d'objets mathématiques : d'une part les *états quantiques*, vecteurs d'un espace de Hilbert, et d'autre part les *observables*, opérateurs hermitiens agissant dans l'espace des états.

L'évolution d'un système physique peut alors être décrite dans deux « points de vue » (appelés aussi « représentations »), qui peuvent sembler à première vue différents, mais qui sont en fait mathématiquement équivalents :

- 1. Le point de vue de Schrödinger. Dans ce point de vue, l'évolution du système correspond à celle de l'état quantique, et est régie par *l'équation de Schrödinger*. Les opérateurs décrivant les quantités physiques usuelles (position et impulsion des particules, énergie, moment cinétique...) sont par contre indépendants du temps.
- 2. Le point de vue de Heisenberg. Dans ce point de vue, l'état du système est indépendant du temps, alors que *les opérateurs évoluent*. Cette évolution est régie par *l'équation de Heisenberg*, que nous allons introduire dans le paragraphe suivant.

Alors que le point de vue de Schrödinger est utilisé dans la plupart des cours élémentaires de Mécanique Quantique, le point de vue de Heisenberg est très utile en Optique Quantique, car les équations d'évolution des opérateurs champs électrique et magnétique sont formellement identiques à celles de l'électromagnétisme classique, c'est-à-dire aux équations de Maxwell. Les analogies aussi bien que les différences entre l'optique classique et l'optique quantique sont alors particulièrement simples à comprendre et à analyser. Le lien entre ces deux points de vue s'effectue en utilisant *l'opérateur d'évolution*, que nous allons introduire maintenant. Pour cela, rappellons la forme générale de l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar \frac{d|\Psi(t)\rangle}{dt} = H(t)|\Psi(t)\rangle \tag{4.1}$$

Si le Hamiltonien H est indépendant du temps, on peut écrire formellement

$$\frac{d|\Psi(t)\rangle}{|\Psi(t)\rangle} = -\frac{iHdt}{\hbar} \tag{4.2}$$

si bien qu'il apparaît immédiatement que

$$|\Psi(t)\rangle = e^{-iHt/\hbar}|\Psi(0)\rangle = U(t)|\Psi(0)\rangle$$
(4.3)

où  $U(t) = e^{-iHt/\hbar}$  est un opérateur unitaire appelé opérateur d'évolution.

Dans le cas général où le hamiltonien H dépend du temps, on a toujours

$$|\Psi(t)\rangle = U(t)|\Psi(0)\rangle \tag{4.4}$$

où U(t) est solution de l'équation différentielle

$$i\hbar \frac{dU(t)}{dt} = H(t)U(t) \tag{4.5}$$

Il faut remarquer que U(t) n'est en général **pas** égal à  $e^{-i\int_0^t H(t')dt'/\hbar}$ , sauf dans le cas particulier où  $[H(t), \int_0^t H(t')dt'] = 0.$ 

Pour introduire la point de vue de Heisenberg, nous allons effectuer une transformation simple sur l'expression de la valeur moyenne de l'opérateur  $A_S$  dans l'état  $|\Psi(t)\rangle$ :

$$\begin{array}{ll} \langle \Psi(t) | & A_S & |\Psi(t)\rangle = \\ \langle \Psi(0) | U(t)^{\dagger} & A_S & U(t) | \Psi(0)\rangle = \\ \langle \Psi(0) | & U(t)^{\dagger} A_S U(t) & |\Psi(0)\rangle = \\ \langle \Psi(0) | & A_H(t) & |\Psi(0)\rangle \end{array}$$

$$(4.6)$$

où  $A_H(t) = U(t)^{\dagger} A_S U(t)$  est l'opérateur A en point de vue de Heisenberg. On voit ainsi que l'évolution temporelle de la valeur moyenne d'une quantité physique peut être « transférée » de l'état à l'observable. Il en est bien sûr de même de l'évolution temporelle des probabilités de mesures, qui sont les valeurs moyennes de projecteurs (opérateurs hermitiens).

En pratique, plutôt que de passer par l'opérateur d'évolution, il est commode d'établir directement une équation d'évolution de l'opérateur  $A_H(t)$ . Si on considère d'abord le cas simple où  $A_S$  et H sont indépendants du temps, on a :

$$\frac{dA_H(t)}{dt} = \frac{dU(t)^{\dagger}}{dt} A_S U(t) + U(t)^{\dagger} A_S \frac{dU(t)}{dt}$$

$$\tag{4.7}$$

et par conséquent

$$i\hbar \frac{dA_H(t)}{dt} = -U(t)^{\dagger} H A_S U(t) + U(t)^{\dagger} A_S H U(t) = [U(t)^{\dagger} A_S U(t), H]$$
(4.8)

On obtient ainsi l'équation de Heisenberg :

$$i\hbar \frac{dA_H(t)}{dt} = [A_H(t), H]$$
(4.9)

Dans le cas plus général où  $A_S$  et  $H_S$  dépendent de t, cette équation s'écrit :

$$i\hbar \frac{dA_H(t)}{dt} = \left[ A_H(t), H_H(t) \right] + i\hbar \left( \frac{\partial A_S(t)}{\partial t} \right)_H$$
(4.10)

en posant pour tous les opérateurs (y compris le Hamiltonien H(t)) :

$$A_H(t) = U(t)^{\dagger} A_S U(t)$$
(4.11)

Il est important de remarquer que si on prend la valeur moyenne de l'équation de Heisenberg dans l'état  $|\Psi(0)\rangle$  on obtient pour un hamiltonien indépendant du temps :

$$i\hbar \frac{d\langle A\rangle(t)}{dt} = \langle [A, H]\rangle(t)$$
(4.12)

Ce résultat est bien connu sous le nom de « théorème d'Ehrenfest », et on peut aussi l'obtenir dans le point de vue de Schrödinger. Si  $H_S$  ou  $A_S$  dépendent explicitement du temps, on retrouve le théorème d'Ehrenfest généralisé qui fait intervenir la dérivée partielle  $\langle \partial A/\partial t \rangle$ .

## 4.2 Équations de Heisenberg pour le champ électromagnétique quantifié

#### 4.2.1 Évolution du champ libre

Afin d'étudier un premier exemple simple d'équation de Heisenberg, considérons le Hamiltonien du champ libre, écrit en fonction des opérateurs  $\hat{a}$  et  $\hat{a}^{\dagger}$  (indépendants du temps) :

$$\hat{H} = \sum_{\ell} \hbar \omega_{\ell} \left( \hat{a}_{\ell}^{\dagger} \hat{a}_{\ell} + 1/2 \right)$$
(4.13)

En représentation de Heisenberg, et en sous-entendant l'indice «  $_H$  », on a :

$$i\hbar \frac{d\hat{a}_{\ell}}{dt} = [\hat{a}_{\ell}, \hbar\omega_{\ell} \hat{a}_{\ell}^{\dagger} \hat{a}_{\ell}]$$
  
$$= \hbar\omega_{\ell} (\hat{a}_{\ell} \hat{a}_{\ell}^{\dagger} - \hat{a}_{\ell}^{\dagger} \hat{a}_{\ell}) \hat{a}_{\ell}$$
  
$$= \hbar\omega_{\ell} \hat{a}_{\ell}$$
  
(4.14)

qui s'intègre immédiatement en :

$$\hat{a}_{\ell}(t) = \hat{a}_{\ell}(0) \ e^{-i\omega_{\ell}t}$$

$$= \hat{a}_{\ell,S} \ e^{-i\omega_{\ell}t}$$

$$(4.15)$$

On en déduit l'expression des opérateurs du champ libre en représentation de Heisenberg :

$$\hat{\vec{E}}_{\perp}(\vec{r}, t) = \sum_{\ell} i \mathfrak{S}_{\ell} \ \vec{\epsilon}_{\ell} \ \left( \hat{a}_{\ell}(0) \ e^{i\phi_{\ell}} - \hat{a}_{\ell}^{\dagger}(0) \ e^{-i\phi_{\ell}} \right)$$
(4.16)

$$\hat{\vec{A}}_{\perp}(\vec{r}, t) = \sum_{\ell} \frac{\mathcal{E}_{\ell}}{\omega_{\ell}} \vec{\epsilon}_{\ell} \left( \hat{a}_{\ell}(0) \ e^{i\phi_{\ell}} + \hat{a}_{\ell}^{\dagger}(0) \ e^{-i\phi_{\ell}} \right)$$
(4.17)

où  $\mathcal{E}_{\ell} = \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\ell}}{2\epsilon_0 L^3}}$ , et où

$$\phi_{\ell} = (\dot{k_{\ell}} \cdot \vec{r} - \omega_{\ell} t) \tag{4.18}$$

Ces opérateurs prennent donc la forme d'une superposition d'ondes planes, caractérisées par la phase  $\phi_{\ell}$  qui est identique à l'expression classique.

#### 4.2.2 Équations de Maxwell-Heisenberg

Considérons maintenant l'expression générale du Hamiltonien décrivant le champ quantifié en interaction avec des particule chargées :

$$\hat{H} = \sum_{\alpha} \frac{1}{2m_{\alpha}} \left( \hat{\vec{p}}_{\alpha} - q_{\alpha} \hat{\vec{A}}_{\perp} (\hat{\vec{r}}_{\alpha}) \right)^2 + \hat{V}_{\text{Coulomb}} + \sum_{\ell} \hbar \omega_{\ell} \left( \hat{a}_{\ell}^{\dagger} \hat{a}_{\ell} + 1/2 \right)$$
(4.19)

En utilisant l'équation de Heisenberg, on peut déterminer les équations d'évolution de tous les opérateurs. Ces calculs relativement lourds sont effectués dans le paragraphe II.B.2 de la référence CDG1, et le résultat obtenu est très simple. Les équations d'évolution des opérateurs champs et des opérateurs positions et impulsions des particules sont en effet identiques aux équations de Maxwell-Lorentz, dans lesquelles les champs classiques, ainsi que les positions et impulsions des particules, sont remplacés par les opérateurs quantiques correspondant. Les équations de Maxwell-Lorentz étant linéaires, leur expression formelle est en fait inchangée. Par contre, il faudra bien sûr prendre garde en utilisant ces équations au fait qu'elles font intervenir des opérateurs qui ne commutent pas; nous en verrons des exemples dans la suite.

Soulignons enfin que dans le vide, les équations d'évolution des opérateurs champs sont les équations de Maxwell habituelles. Les équations de propagation classiques (ondes planes progressives...) se transposent donc immédiatement aux opérateurs champs. Il en est de même pour la propagation dans les milieux optiques « linéaires » sans absorption, qui sont décrits en changeant  $\epsilon_0$  en  $\epsilon_r \epsilon_0$  (phénomènes de réflexion et de réfraction). On peut donc très souvent utiliser « l'intuition » classique pour propager des champs quantiques, ce qui est très utile en pratique. Il faut néanmoins remarquer que cette approche est insuffisante pour décrire les détails de l'interaction atome-champ, en particulier les phénomènes d'émission spontanée, ainsi que les effets non-linéaires, qui apparaissent lorsqu'un milieu matériel est irradié par un champ intense (produit par exemple par un laser). Nous verrons plusieurs exemples de tels phénomènes dans la suite de ce cours.

### 4.3 Interférométrie avec des champs quantiques

#### 4.3.1 Champ « monomode » (onde plane monochromatique)

Dans ce paragraphe nous allons revoir dans le point de vue de Heisenberg des notions déjà abordées dans le point de vue de Schrödinger : description du rayonnement monomode (paragraphe C du chapitre II) et états comprimés du rayonnement (complément II.1).

Si l'on se restreint à un seul mode du champ, désigné par un indice  $\ell$ , l'opérateur champ électrique s'écrit :

$$\vec{E}_{\perp}(\vec{r}, t) = i\tilde{\varepsilon}_{\ell} \ \vec{\epsilon}_{\ell} \ \left(\hat{a}_{\ell}(0) \ e^{i\phi_{\ell}} - \hat{a}^{\dagger}_{\ell}(0) \ e^{-i\phi_{\ell}}\right)$$
(4.20)

Dans la suite nous allons considérer des ondes planes de polarisation linéaire  $\vec{\epsilon}_{\ell}$  et de fréquence  $\omega_{\ell}$  bien définies, mais de vecteur d'onde  $\vec{k}_{\ell}$  quelconque, et nous poserons :

$$\hat{E}_{\ell}^{(+)} = i \mathfrak{S}_{\ell} \, \hat{a}_{\ell}(0) \qquad \hat{E}_{\ell}^{(-)} = -i \mathfrak{S}_{\ell} \, \hat{a}_{\ell}^{\dagger}(0) = \left(\hat{E}_{\ell}^{(+)}\right)^{\dagger} \tag{4.21}$$

et par conséquent<sup>1</sup> :

$$\hat{\vec{E}}_{\perp}(\vec{r}, t) = \vec{\epsilon}_{\ell} \left( \hat{E}_{\ell}^{(+)} e^{i(\vec{k}_{\ell} \cdot \vec{r} - \omega_{\ell} t)} + \hat{E}_{\ell}^{(-)} e^{-i(\vec{k}_{\ell} \cdot \vec{r} - \omega_{\ell} t)} \right)$$
(4.22)

Il apparaît ainsi que l'opérateur  $\hat{E}_{\ell}^{(+)}$  correspond à « l'amplitude complexe » de l'onde plane, et va donc d'après le raisonnement du paragraphe précédent obéir à des équations de propagations classiques.

#### 4.3.2 « Traitement quantique » de lame séparatrice

Considérons une la me séparatrice représentée sur la figure ci-dessus. La transformation des opérateurs champs au niveau de la la me (placée en  $\vec{r} = \vec{0}$ ) suit les lois de l'optique classique, et on a pour une la me 50% - 50%:

$$\hat{E}_{3}^{(+)} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left( \hat{E}_{1}^{(+)} + \hat{E}_{2}^{(+)} \right) \qquad \hat{E}_{4}^{(+)} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left( \hat{E}_{1}^{(+)} - \hat{E}_{2}^{(+)} \right)$$
(4.23)

Ces équations garantissent que les valeurs moyennes obéissent aux lois classiques, et préservent les relations de commutation  $[\hat{E}_3^{(\pm)}, \hat{E}_4^{(\pm)}] = 0$ 

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Par commodité les termes en  $i\vec{k}_{\ell}\cdot\vec{r}$  ne sont ici pas inclus dans la définition de  $\hat{E}_{\ell}^{(+)}$ .



FIG. 4.1:



FIG. 4.2 :

Dans le cas général où la lame est placée en  $\vec{r} = \vec{r_s}$ , on aura :

$$\hat{E}_{3}^{(+)}e^{i\vec{k}_{3}\cdot\vec{r}_{s}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left( \hat{E}_{1}^{(+)}e^{i\vec{k}_{1}\cdot\vec{r}_{s}} + \hat{E}_{2}^{(+)}e^{i\vec{k}_{2}\cdot\vec{r}_{s}} \right)$$
(4.24)

$$\hat{E}_{4}^{(+)}e^{i\vec{k}_{4}\cdot\vec{r}_{s}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left( \hat{E}_{1}^{(+)}e^{i\vec{k}_{1}\cdot\vec{r}_{s}} - \hat{E}_{2}^{(+)}e^{i\vec{k}_{2}\cdot\vec{r}_{s}} \right)$$
(4.25)

Si la lame est suivie par un miroir placé en  $\vec{r}_m$ , le champ  $\hat{E}_3^{\prime(+)}$  après le miroir sera relié au champ  $\hat{E}_3^{(+)}$  avant le miroir par la relation :

$$\hat{E}_{3}^{\prime(+)}e^{i\vec{k}_{3}^{\prime}\cdot\vec{r}_{m}} = \hat{E}_{3}^{(+)}e^{i\vec{k}_{3}\cdot\vec{r}_{m}}$$

$$(4.26)$$

Les déphasages s'accumulent donc en suivant la propagation selon les vecteurs d'ondes  $\vec{k_i}$  successifs, ce qui correspond à la définition du chemin optique utilisé en optique classique. Remarquons que si la la lame séparatrice et le miroir sont parallèles, la différence de chemin optique ne dépend pas de la position latérale dans le faisceau, et est donc la même pour les points  $(\vec{r_s}, \vec{r_m})$  et  $(\vec{r'_s}, \vec{r'_m})$ . Par contre, la différence de chemin optique dépend de la direction initiale de  $\vec{k}$ , mais nous considérerons ici que l'onde incidente est une onde plane dont le vecteur d'onde  $\vec{k}$  est bien défini (une « ouverture angulaire » du faisceau peut aussi être décrite comme en optique classique).



FIG. 4.3 :

#### 4.3.3 L'interféromètre de Mach-Zehnder : description quantique

En combinant des lames séparatrices et des miroirs, on peut réaliser un interféromètre de Mach-Zehnder dont la structure apparaît sur la figure ci-dessus. Pour un champ incident de fréquence et de polarisation fixées, les opérateurs champs en sortie de l'interféromètre s'écrivent :

$$\hat{E}_{3}^{(+)} = e^{ikl} \left( \hat{E}_{1}^{(+)} \cos \frac{k \, \delta l}{2} + i \hat{E}_{2}^{(+)} \sin \frac{k \, \delta l}{2} \right)$$
(4.27)

$$\hat{E}_{4}^{(+)} = e^{ikl} \left( i\hat{E}_{1}^{(+)} \sin \frac{k \,\delta l}{2} + \hat{E}_{2}^{(+)} \cos \frac{k \,\delta l}{2} \right). \tag{4.28}$$

En sortie de l'interféromètre, la probabilité de photodétection au point  $\vec{r}$  et à l'instant t est proportionnelle à la quantité (voir § II.D) :

$$w(\vec{r},t) \propto \langle \psi(0) | \hat{\vec{E}}^{(-)}(\vec{r},t) \cdot \hat{\vec{E}}^{(+)}(\vec{r},t) | \psi(0) \rangle$$
 (4.29)

Donc si on envoie dans l'interféromètre un état quasi-classique dans la voie 1 et rien dans la voie 2, c'est-à-dire l'état :

$$|\Psi\rangle = |\alpha\rangle \otimes |0\rangle \tag{4.30}$$

alors le signal de sortie dans la voie 3 est donné par :

$$w_{3}(t) = \langle \Psi(0) | \hat{E}_{3}^{(-)} \hat{E}_{3}^{(+)} | \Psi(0) \rangle$$
  
=  $\langle \alpha(0) | \otimes \langle 0 | \left( C \hat{E}_{1}^{(-)} - iS \hat{E}_{2}^{(-)} \right) \times \left( C \hat{E}_{1}^{(+)} + iS \hat{E}_{2}^{(+)} \right) | \alpha(0) \rangle \otimes | 0 \rangle$  (4.31)

où on a posé  $C = \cos(k \, \delta l/2)$  et  $S = \sin(k \, \delta l/2)$ . On en déduit :

$$w_3 = C^2 \langle \alpha | \hat{E}_1^{(-)} \hat{E}_1^{(+)} | \alpha \rangle = \cos^2(k \, \delta l/2) \, |\alpha|^2 \, \delta^2$$
(4.32)

et de même :

$$w_4 = \sin^2(k \ \delta l/2) \ |\alpha|^2 \ \delta^2 \tag{4.33}$$

$$w_3 - w_4 = \cos(k \ \delta) \ |\alpha|^2 \ \delta^2 \tag{4.34}$$

Ces signaux sont identiques aux prédictions classiques, comme on pouvait s'y attendre compte tenu des remarques précédentes sur la validité générale des équations de Maxwell.

#### 4.3.4 Détection d'ondes gravitationnelles

Le passage sur terre d'une onde gravitationnelle, produite par exemple par une catastrophe galactique (supernovae), est susceptible de provoquer un changement de longueur relative des deux bras d'un interféromètre de Michelson :

$$L \longrightarrow L \left( 1 + h_0 \, \cos(\nu_q t) \right) \tag{4.35}$$

où  $\nu_g$  est la fréquence de l'onde gravitationnelle (100 Hz à 10 kHz), et  $h_0$  vaut typiquement  $10^{-21}$  pour les sources que l'on souhaiterait observer (supernovae à l'extérieur de notre galaxie).



FIG. 4.4 :

L'intensité en sortie de l'interféromètre vaut alors :

$$I = I_0 \cos^2(\phi + k(L_x - L_y))$$
(4.36)

et la variation d'intensité en sortie due au passage de l'onde est :

$$\frac{\delta I}{I_0} = 2k(L_x - L_y) = 2kLh_0 \,\cos(\nu_g t) \tag{4.37}$$

Par exemple, pour L = 1 km,  $k = 2\pi/\lambda$  avec  $\lambda = 1 \mu$ m, on a :

$$\delta I/I_0 = 10^{-11}.\tag{4.38}$$

Cette valeur est extrêmement petite, mais il est néanmoins envisageable de la détecter. Il faut pour cela examiner en détail les différentes sources de « bruit », qui peuvent causer des variations parasites de la différence de marche susceptibles de masquer le signal recherché. Ici nous ignorerons les nombreuses sources de bruit d'origine « technique » (bruit sismique, thermique, d'environnement...) pour examiner seulement le bruit associé aux propriétés quantiques de la lumière envoyée dans l'interféromètre.

#### 4.3.5 Le bruit quantique dans un interféromètre

Le problème considéré est donc de détecter un déphasage  $\phi$  très faible entre les deux bras d'un interféromètre, lorsque l'on envoie un état cohérent  $|\alpha\rangle$  (produit par un laser très stable) dans la voie 1.



FIG. 4.5:

On se met en situation équilibrée  $(k \ \delta l = \pi/2)$  et on mesure  $I_3 - I_4$  pendant une durée T. Pour un très petit déphasage  $\phi$  on a :

$$\langle I_3 - I_4 \rangle = \mathcal{E}^2 |\alpha|^2 \phi = \mathcal{E}^2 \langle N \rangle \phi \tag{4.39}$$

On suppose que l'on détecte un très petit écart entre les deux voies, par exemple  $1,001 \ 10^{20}$  photons en voie 3 et 0,999  $10^{20}$  photons en voie 4, et on veut savoir si cet écart est significatif, ou s'il peut être attribué aux fluctuations quantiques de la lumière. Pour répondre à cette question, on s'intéresse à l'observable :

$$\hat{D} = \hat{I}_3 - \hat{I}_4 = \hat{E}_3^{(-)} \hat{E}_3^{(+)} - \hat{E}_4^{(-)} \hat{E}_4^{(+)}$$
(4.40)

Par hypothèse, l'interféromètre est réglé de sorte que :

$$\hat{I}_{3} = \hat{E}_{3}^{(-)}\hat{E}_{3}^{(+)} = \frac{1}{2} \left( \hat{E}_{1}^{(-)} - i\hat{E}_{2}^{(-)} \right) \left( \hat{E}_{1}^{(+)} + i\hat{E}_{2}^{(+)} \right)$$
$$= \frac{1}{2} \left( \hat{I}_{1} + \hat{I}_{2} + i \left( \hat{E}_{1}^{(-)}\hat{E}_{2}^{(+)} - \hat{E}_{1}^{(+)}\hat{E}_{2}^{(-)} \right) \right)$$
(4.41)

$$\hat{I}_4 = \frac{1}{2} \left( \hat{I}_1 + \hat{I}_2 - i \left( \hat{E}_1^{(-)} \hat{E}_2^{(+)} - \hat{E}_1^{(+)} \hat{E}_2^{(-)} \right) \right)$$
(4.42)

On a donc :

$$\hat{D} = i \left( \hat{E}_1^{(-)} \hat{E}_2^{(+)} - \hat{E}_1^{(+)} \hat{E}_2^{(-)} \right)$$
(4.43)

On suppose que l'état initial est tel que  $\langle \hat{I}_3 \rangle = \langle \hat{I}_4 \rangle$  et on a donc  $\langle \hat{D} \rangle = 0$ . Le bruit cherché est alors :

$$\Delta D^2 = \langle \hat{D}^2 \rangle = \| \left( \hat{E}_1^{(-)} \hat{E}_2^{(+)} - \hat{E}_1^{(+)} \hat{E}_2^{(-)} \right) |\Psi\rangle \|^2$$
(4.44)

Pour un état initial  $|\Psi\rangle = |\alpha\rangle \otimes |0\rangle$ , on trouve :

$$\Delta D^2 = \| \alpha \, \mathfrak{E}^2 \, |\alpha\rangle \otimes |1\rangle\|^2 = |\alpha|^2 \, \mathfrak{E}^4 \tag{4.45}$$

soit un écart-type :

$$\Delta D = |\alpha| \,\,\mathfrak{E}^2 = \sqrt{N} \,\,\mathfrak{E}^2 \tag{4.46}$$

$$\langle \hat{N}_3 - \hat{N}_4 \rangle = N\phi \qquad \Delta(\hat{N}_3 - \hat{N}_4) = \sqrt{N}$$
(4.47)

Ces fluctuations sont connues sous de nom de « bruit de grenaille », ou « shot-noise ». On en conclut immédiatement que si on détecte  $10^{20}$  photons, le bruit quantique crée des fluctuations dont l'écart type est de  $10^{10}$  photons. On sera alors capable de détecter un déphasage de  $10^{-10}$ , dans l'hypothèse optimiste où il n'y a pas de bruit technique supplémentaire (vibrations des miroirs, turbulence de l'air,...). Ces problèmes étant supposés résolus (ce qui est presque le cas dans les interféromètres géants actuellement en construction), on peut se demander si la limite obtenue ci-dessus est incontournable, ou au contraire s'il serait possible de faire mieux en remplaçant les états cohérents par d'autres états moins « bruyants ». Nous allons voir que la réponse à cette question est positive, mais que l'état que l'on doit modifier n'est en fait pas l'état cohérent lui-même, mais le « vide » électromagnétique qui est associé à la voie 2 de l'interféromètre.

#### 4.3.6 Le rôle de la voie habituellement vide

Supposons donc que l'on remplace le champ  $|\Psi\rangle = |\alpha\rangle \otimes |0\rangle$ , par :

$$|\Psi\rangle = |\alpha\rangle \otimes |\Phi\rangle , \qquad \alpha = |\alpha| e^{i\theta}$$

$$(4.48)$$

où l'état  $|\Phi\rangle$  est quelconque. On obtient :

$$\langle \hat{D} \rangle = |\alpha| \, \delta \, \langle \Phi| \, i \, (e^{-i\theta} \hat{E}_2^{(+)} - e^{i\theta} \hat{E}_2^{(-)}) |\Phi\rangle \tag{4.49}$$

En introduisant les opérateurs quadratures (voir § II.C.5) pour le mode de la deuxième voie d'entrée (ces opérateurs sont indépendants du temps en représentation de Heisenberg) :

$$\hat{E}_{P2} = i \, \& \left( e^{-i\theta} \hat{a}_2(0) - e^{i\theta} \hat{a}_2^{\dagger}(0) \right) \qquad \hat{E}_{Q2} = - \& \left( e^{-i\theta} \hat{a}_2(0) + e^{i\theta} \hat{a}_2^{\dagger}(0) \right). \tag{4.50}$$

on voit que l'observable  $\hat{D} = \hat{I}_3 - \hat{I}_4$  s'identifie à l'opérateur  $\hat{E}_{P2}$  du mode entrant par la voie « habituellement vide » de l'interféromètre. De manière générale le bruit sur l'observable  $\hat{D} = \hat{I}_3 - \hat{I}_4$  peut s'écrire :

$$\Delta D^2 = \langle \Phi | \hat{E}_{P2}^2 | \Phi \rangle \, \delta^2 \, |\alpha|^2 + \langle \Phi | \hat{n}_2 | \Phi \rangle \, \delta^4 \tag{4.51}$$

Si  $|\Phi\rangle$  correspond au vide, on a :

$$\langle \Phi | \hat{E}_{P2}^2 | \Phi \rangle = \delta^2 \qquad \langle \Phi | \hat{n}_2 | \Phi \rangle = 0$$

$$(4.52)$$

et on retrouve bien

$$\Delta D = |\alpha| \, \delta^2 \qquad \Delta(\hat{N}_3 - \hat{N}_4) = \sqrt{N} \tag{4.53}$$

Ce résultat permet de deviner intuitivement que l'on peut modifier le bruit dans l'interféromètre en « agissant sur le vide » qui rentre dans la voie 2.

#### 4.3.7 Les états comprimés

Considérons des états du champ tels que

$$\langle E_{P2} \rangle = 0 \qquad \langle E_{Q2} \rangle = 0 \tag{4.54}$$

avec des fluctuations données par :

$$\Delta E_{P2}^2 = \delta^2 \ e^{-\xi} \qquad \Delta E_{Q2}^2 = \delta^2 \ e^{\xi} \tag{4.55}$$

Le nombre moyen de photons pour ces états est donné par :

$$\langle N \rangle = e^{\xi}/4 \qquad \text{pour} \quad e^{\xi} \gg 1 \tag{4.56}$$

Il est possible de produire de tels états, qui sont appelés « états comprimés » (« squeezed states » en anglais). Ce nom résulte de la « compression » qui est effectuée sur les fluctuations d'une quadrature, aux dépends de celles de l'autre. Remarquons qu'un état comprimé est un état minimal, puisqu'il vérifie la relation  $\Delta E_{P2} \Delta E_{Q2} = \mathcal{E}^2$ .

#### 4.3.8 La réduction du bruit quantique : en théorie...

Calculons maintenant l'effet de l'état comprimé sur le bruit quantique. On a :  $\Delta D^2 = \mathcal{E}^4 \left( |\alpha|^2 e^{-\xi} + \frac{e^{\xi}}{4} \right)$  avec  $N = |\alpha|^2$  très grand (~ 10<sup>20</sup>). En faisant varier  $\xi$ , le minimum de cette quantité est obtenu pour  $e^{\xi} = 2|\alpha|$  ce qui conduit à :  $\Delta D_{sq}^2 = \mathcal{E}^4 |\alpha|$  soit :

$$\Delta D_{sq} = \delta^2 \sqrt{|\alpha|} \qquad \Delta (\hat{N}_3 - \hat{N}_4)_{sq} = N^{1/4}$$
(4.57)

Si on détecte  $10^{20}$  photons, on passe alors du bruit de grenaille de  $10^{10}$  à un bruit réduit de  $10^5$ , soit un gain en précision relative :

$$\phi_{\min} = \frac{\Delta(\hat{N}_3 - \hat{N}_4)}{N} = 10^{-10} \longrightarrow 10^{-15}$$
(4.58)

Il faut pour cela injecter  $e^{\xi}/4$  photons (soit  $5 \times 10^9$  photons) dans la voie 2. Ce gain potentiel est très spectaculaire, mais notre calcul a omis des effets importants qu'il faut prendre en compte pour évaluer le résultat effectif de l'expérience.

#### 4.3.9 Et en pratique...

Il est effectivement possible de produire des états comprimés en utilisant des processus d'optique non-linéaire (voir chapitre 6), et on améliore effectivement la sensibilité d'un interféromètre en y injectant ces états comprimés. Néanmoins, l'amélioration démontrée expérimentalement est d'un facteur 2 environ, comme on peut le constater dans les travaux suivants :

- Precision measurement beyond the shot noise limit, M. Xiao, L.A.Wu, H.J. Kimble, Phys. Rev. Lett. 59, 278 (1987).
- Squeezed light-enhanced polarization interferometer, P. Grangier, R.E. Slusher, B. Yurke, A. LaPorta, Phys. Rev. Lett. 59, 2153 (1987)

Quelle est donc la difficulté principale qui fait passer d'une amélioration théorique d'un facteur  $10^5$  à une amélioration observée d'un facteur 2?

En fait, l'état comprimé doit se propager à travers des éléments optiques que l'on peut représenter comme des lames séparatrices de transmission  $t \sim 1$ . On a donc :

$$\hat{E}_{\text{transmis}}^{(+)} = t \ \hat{E}_{\text{compr.}}^{(+)} + \sqrt{1 - t^2} \ \hat{E}_{\text{vide}}^{(+)}$$
(4.59)

et un calcul simple montre que :

$$\Delta E_{\text{Ptrans.}}^2 = t^2 \ \Delta E_{\text{Pcompr.}}^2 + (1 - t^2) \ \Delta E_{\text{Pvide}}^2$$

$$= (t^2 \ e^{-\xi} + 1 - t^2) \ \delta^2$$
(4.60)

Le bruit minimal est donc  $\Delta E_{\text{Ptrans.}}^2 = (1 - t^2) \, \&^2 \sim 0.1 \, \&^2$  environ pour une transmission typique  $t^2 \sim 0.9$ . Dans un système réel, les états « très comprimés » sont donc détruits par simple propagation à travers le système optique. Ceci peut se comprendre intuitivement en constatant que les photons qui constituent l'état comprimé sont très fortement corrélés entre eux. Le fait d'éliminer aléatoirement certains de ces photons détruit ces corrélations, et fait perdre ses propriétés quantiques à l'état comprimé. Ceci est un exemple du phénomène de « décohérence », sur lequel nous reviendrons dans la suite de ce cours.

En pratique, il est envisageable de réduire le bruit dans l'interféromètre d'un ordre de grandeur environ. Ceci serait utile, puisque le gain de sensibilité est équivalent à une augmentation de la puissance du laser de 100 W (ce qui est réalisable) à 1000 W (ce qui l'est beaucoup moins). Il est donc prévu que les prochaines générations d'interféromètres gravitationnels inclueront des techniques de réduction du bruit quantique.

## 4.4 Émission spontanée en point de vue de Heisenberg. Équations de Heisenberg-Langevin

#### 4.4.1 Introduction

Lors de l'étude de l'émission spontanée effectuée dans le Tome 1 de ce cours, on a calculé un taux d'émission en utilisant la Règle d'Or de Fermi, mais on n'a pas établi l'évolution complète du système au cours du temps. De plus, on n'a pas abordé le problème de la préparation de l'atome dans l'état initial excité, ni l'étude des phénomènes de fluorescence qui se produisent si l'atome est irradié en permanence, par exemple par un laser.

Nous allons dans ce qui suit utiliser l'approche des équations de Heisenberg pour étudier les processus d'absorption et d'émission spontanée. Nous obtiendrons ainsi les équations de Bloch optiques qui régissent le comportement d'un atome irradié par un laser au voisinage de ses fréquences de résonance.

#### 4.4.2 Opérateurs pour un système à deux niveaux

On considère seulement deux niveaux atomiques  $|e\rangle$  et  $|g\rangle$ , donc tous les opérateurs agissant sur l'atome sont des matrices  $2 \times 2$ :

$$\hat{A} = a_{ee}|e\rangle\langle e| + a_{gg}|g\rangle\langle g| + a_{eg}|e\rangle\langle g| + a_{ge}|g\rangle\langle e| = \begin{pmatrix} a_{ee} & a_{eg} \\ a_{ge} & a_{gg} \end{pmatrix}.$$
(4.61)

où  $a_{ee}$  et  $a_{gg}$  sont réels, et  $a_{eg} = a_{ge}^*$ . Par analogie avec un spin1/2, il est commode de poser :

$$\mathfrak{S}_{+} = |e\rangle\langle g| = \begin{pmatrix} 0 & 1\\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \qquad \mathfrak{S}_{-} = |g\rangle\langle e| = \begin{pmatrix} 0 & 0\\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \qquad (4.62)$$

$$\mathfrak{S}_z = \frac{1}{2} (|e\rangle \langle e| - |g\rangle \langle g|) = \begin{pmatrix} 1/2 & 0\\ 0 & -1/2 \end{pmatrix}.$$

$$(4.63)$$

L'opérateur dipole s'écrit alors :

$$\hat{\vec{D}} = \begin{pmatrix} 0 & \vec{d}_{eg} \\ \vec{d}_{eg}^* & 0 \end{pmatrix} = \vec{d}_{eg} \, \mathfrak{S}_+ + \vec{d}_{eg}^* \, \mathfrak{S}_- \tag{4.64}$$

# 4.4.3 Les trois composantes de l'hamiltonien pour un système à deux niveaux

Les trois termes de l'hamiltonien sont alors :

– Le Hamiltonien du rayonnement  $\hat{H}_R$  :

$$\hat{H}_R = \sum_{\ell} \hbar \omega_{\ell} \left( \hat{a}_{\ell}^{\dagger} \hat{a}_{\ell} + 1/2 \right)$$
(4.65)

– Le Hamiltonien des particules  $\hat{H}_P$  :

$$\hat{H}_P = \hbar\omega_0 |e\rangle\langle e| = \hbar\omega_0 (\mathfrak{S}_z + 1/2)$$
(4.66)

- Le Hamiltonien d'interaction dipolaire électrique :

$$\hat{H}_{I} = -\vec{D} \cdot \vec{E}_{\perp}(0,t) = -(\mathfrak{S}_{+} + \mathfrak{S}_{-}) \, d_{eg} E_{\perp z}(0,t) \tag{4.67}$$

où l'on suppose le dipôle atomique orienté suivant Oz, et l'on choisit l'élément de matrice  $d_{eg}$ réel.

#### 4.4.4 Évolution des opérateurs

En point de vue de Heisenberg les opérateurs évoluent au cours du temps :

$$\mathfrak{S}_{+} = \left(\mathfrak{S}_{+} \otimes \hat{1}_{\mathrm{champ}}\right) \to U(t)^{\dagger} \left(\mathfrak{S}_{+} \otimes \hat{1}_{\mathrm{champ}}\right) U(t) = \mathfrak{S}_{+}(t) \tag{4.68}$$

On constate immédiatement que l'évolution du système peut mélanger des opérateurs atomiques et des opérateurs champs. Néanmoins, l'algèbre des opérateurs (c'est-à-dire l'ensemble de leurs relations de commutation) est conservée au cours du temps. On a en effet à t = 0:

$$[\mathfrak{S}_{+}, \mathfrak{S}_{-}] = [|e\rangle\langle g|, |g\rangle\langle e|] = |e\rangle\langle g|g\rangle\langle e| - |g\rangle\langle e|e\rangle\langle g| = 2\mathfrak{S}_{z}$$
(4.69)

$$\left[ \mathfrak{S}_{+}, \mathfrak{S}_{z} \right] = \left[ |e\rangle\langle g|, \frac{1}{2} (|e\rangle\langle e| - |g\rangle\langle g|) \right] = -|e\rangle\langle g| = -\mathfrak{S}_{+}$$
(4.70)

et en utilisant  $(U(t)^{\dagger}AU(t))(U(t)^{\dagger}BU(t)) = U(t)^{\dagger}ABU(t))$  on vérifie aisément que pour t quelconque :

$$[ \mathfrak{S}_{+}(t), \mathfrak{S}_{-}(t) ] = 2 \mathfrak{S}_{z}(t) \qquad [ \mathfrak{S}_{+}(t), \mathfrak{S}_{z}(t) ] = -\mathfrak{S}_{+}(t)$$
(4.71)

#### 4.4.5 Équations de Heisenberg du système atome-champ

D'après l'équation de Heisenberg on a (les (t) sont sous-entendus) :

$$\frac{d}{dt}\mathfrak{S}_{+} = \frac{1}{i\hbar} \left[\mathfrak{S}_{+}, \ \hbar\omega_{0} \left(\mathfrak{S}_{z} + 1/2\right)\right] - \frac{1}{i\hbar} \left[\mathfrak{S}_{+}, \ \hbar\omega_{0} \left(\mathfrak{S}_{+} + \mathfrak{S}_{-}\right)\right] d_{eg} E_{\perp z}(0, t)$$
(4.72)

et en utilisant les relations  $[\delta_+, \delta_-] = 2\delta_z, [\delta_z, \delta_{\pm}] = \pm \delta_{\pm}$  on obtient :

$$\frac{d}{dt}\mathfrak{S}_{+} = +i\omega_0\,\mathfrak{S}_{+} + 2i\mathfrak{S}_z d_{eg}E_{\perp z}(0,t)/\hbar \tag{4.73}$$

$$\frac{d}{dt}\mathcal{S}_{-} = -i\omega_0 \,\mathcal{S}_{-} - 2i\mathcal{S}_z d_{eg} E_{\perp z}(0,t)/\hbar \tag{4.74}$$

$$\frac{d}{dt}\mathfrak{S}_{z} = i\left(\mathfrak{S}_{+} - \mathfrak{S}_{-}\right) d_{eg}E_{\perp z}(0, t)/\hbar \tag{4.75}$$

De même :

$$da_{\ell}/dt = \frac{1}{i\hbar} \left[ a_{\ell}, \ \hbar\omega_{\ell} \left( a_{\ell}^{\dagger}a_{\ell} + 1/2 \right) - \hat{\vec{D}} \cdot \hat{\vec{E}}_{\perp}(0, t) \right]$$

$$da_{\ell}/dt = -i\omega_{\ell} \ a_{\ell} + \mathcal{E}_{\ell} \ \vec{\epsilon} \ . \ \vec{D}(t)/\hbar$$

$$(4.76)$$

On effectue alors le changement de variable :  $\tilde{S}_{\pm}(t) = S_{\pm}(t) e^{\pm i\omega_0 t}$ ,  $a_{\ell}(t) = \tilde{a}_{\ell}(t) e^{-i\omega_{\ell} t}$ ,  $\tilde{S}_z(t) = S_z(t)$ . Ce changement de variable fait apparaître des termes en  $e^{i(\omega_{\ell}-\omega_0)t}$  qui oscillent lentement, et des termes en  $e^{i(\omega_{\ell}+\omega_0)t}$  qui oscillent très rapidement et sont négligés (« approximation du champ tournant »).

On remarque que la partie « le ntement variable » est soit  $E_{\perp z}^{(+)}(0,t)$  (qui contient les opérateurs  $a_{\ell}$  en  $e^{-i\omega_{\ell}t}$ ), soit  $E_{\perp z}^{(-)}(0,t)$  (qui contient les opérateurs  $a_{\ell}^{\dagger}$  en  $e^{+i\omega_{\ell}t}$ ), d'où :

$$\frac{d}{dt}S_{+} = +2iS_{z} \frac{d_{eg}}{\hbar} e^{-i\omega_{0}t} E_{\perp z}^{(-)}(0,t)$$
(4.77)

$$\frac{d}{dt}S_{-} = -2iS_{z} \frac{d_{eg}}{\hbar} e^{+i\omega_{0}t} E_{\perp z}^{(+)}(0,t)$$
(4.78)

$$\frac{d}{dt}S_z = i \frac{d_{eg}}{\hbar} \left(S_+ E_{\perp z}^{(+)}(0,t)e^{i\omega_0 t} - E_{\perp z}^{(-)}(0,t)S_- e^{-i\omega_0 t}\right)$$
(4.79)

$$\frac{d}{dt}\tilde{a}_{\ell} = \mathcal{E}_{\ell} \epsilon_z \frac{d_{eg}}{\hbar} S_- e^{i(\omega_{\ell} - \omega_0)t}$$
(4.80)

Ces équations décrivent le couplage quantique atome-champ de manière exacte, et on peut remarquer que toutes les dérivées s'annulent en l'absence du Hamiltonien d'interaction. Cependant, elles n'ont pas de solutions simples, et pour les résoudre nous allons effectuer une succession d'approximations.

#### 4.4.6 Intégration des équations d'évolution

Considérons tout d'abord l'équation pour  $a_{\ell}(t)$ , qui s'écrit :

$$d\tilde{a}_{\ell}/dt = \mathfrak{S}_{\ell} \ \epsilon_z \ (d_{eg}/\hbar) \ S_- \ e^{i(\omega_{\ell} - \omega_0)t}$$

$$\tag{4.81}$$

et s'intègre en :

$$\tilde{a}_{\ell}(t) = \tilde{a}_{\ell}(t_0) + \mathfrak{E}_{\ell} \,\epsilon_z \,\frac{d_{eg}}{\hbar} \,\int_{t_0}^t du \,S_-(u) \,e^{i(\omega_{\ell}-\omega_0)u}$$

$$= \tilde{a}_{\ell}(t_0) + \mathfrak{E}_{\ell} \,\epsilon_z \,\frac{d_{eg}}{\hbar} \,\int_0^{t-t_0} d\tau \,S_-(t-\tau) \,e^{i(\omega_{\ell}-\omega_0)(t-\tau)}$$

$$(4.82)$$

en posant  $\tau = t - u$ . En reportant dans l'expression de  $E_{\perp z}^{(+)}(0,t)$  on obtient :

$$E_{\perp z}^{(+)}(0,t) = E_{vz}^{(+)}(0,t) + E_{sz}^{(+)}(0,t)$$
(4.83)

avec :

$$E_{vz}^{(+)}(0,t) = \Sigma_{\ell} \ i\epsilon_z \mathcal{S}_{\ell} \ \tilde{a}_{\ell}(t_0) e^{-i\omega_{\ell}t}$$

$$(4.84)$$

$$E_{sz}^{(+)}(0,t) = \Sigma_{\ell} \ i\epsilon_z^2 \mathcal{S}_{\ell}^2 \ e^{-i\omega_0 t} \ \frac{d_{eg}}{\hbar} \ \int_0^{t-t_0} d\tau \ S_-(t-\tau) \ e^{-i(\omega_\ell - \omega_0)\tau}$$
(4.85)

où nous avons défini deux nouvelles quantités,  $E_{vz}^{(+)}(0,t)$  qui est appelé « champ du vide », et  $E_{sz}^{(+)}(0,t)$  qui est appelé « champ des sources ». En reportant l'expression de  $E_{\perp z}^{(+)}(0,t)$  dans  $S_{-}(t)$  on obtient :

7

$$\frac{d}{dt}S_{-} = -2i \frac{d_{eg}}{\hbar} S_{z} e^{+i\omega_{0}t} E_{vz}^{(+)}(0,t) 
+ 2 \frac{d_{eg}^{2}}{\hbar^{2}} \int_{0}^{t-t_{0}} d\tau S_{z}(t)S_{-}(t-\tau) \sum_{\ell} \epsilon_{z}^{2} \mathfrak{S}_{\ell}^{2} e^{i(\omega_{\ell}-\omega_{0})\tau}$$
(4.86)

et finalement en posant :

$$F_{-}(t) = -2i \,\frac{d_{eg}}{\hbar} \,S_z \,e^{+i\omega_0 t} \,E_{vz}^{(+)}(0,t)$$
(4.87)

 $\operatorname{et}$ 

$$f(\tau) = \sum_{\ell} \epsilon_z^2 \mathcal{E}_{\ell}^2 e^{i(\omega_\ell - \omega_0)\tau}$$
(4.88)

on obtient :

$$\frac{d}{dt}S_{-} = F_{-}(t) + 2 \frac{d_{eg}^{2}}{\hbar^{2}} \int_{0}^{t-t_{0}} d\tau \ S_{z}(t)S_{-}(t-\tau) \ f(\tau)$$
(4.89)

#### 4.4.7 Approximation de « mémoire courte »

On obtient donc une équation intégro-différentielle, dont la « mémoire » est donnée par la fonction  $f(\tau) = \sum_{\ell} \epsilon_z^2 \delta_{\ell}^2 e^{i(\omega_{\ell}-\omega_0)\tau}$ . Or on constate aisément que la structure de  $f(\tau)$  est proche de la tranformée de Fourier d'une constante, c'est-à-dire d'une fonction très « piquée » en  $\tau = 0$ . On peut donc écrire avec un très bon degré d'approximation que  $f(\tau) \sim \delta(\tau)$ .

C'est ce que l'on a appelle une « approximation de mémoire courte », qui est associée au fait que le vide de rayonnement est un « continuum spectral » très large, dont la transformée de Fourier est très étroite. On peut aussi dire que les modes vides du rayonnement constituent un « réservoir » dont les fluctuations sont extrêmement rapides. En utilisant cette approximation, l'intégrale de l'équation ci-dessus devient :

$$\begin{aligned}
\mathscr{G}_{f} &= 2 \, \frac{d_{eg}^{2}}{\hbar^{2}} \int_{0}^{t-t_{0}} d\tau \, S_{z}(t) S_{-}(t-\tau) \, f(\tau) \\
&\simeq 2 \, S_{z}(t) S_{-}(t) \, \frac{d_{eg}^{2}}{\hbar^{2}} \int_{0}^{t-t_{0}} d\tau \, f(\tau) \\
&\simeq 2 \, S_{z}(t) S_{-}(t) \left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta\right)
\end{aligned} \tag{4.90}$$

où la dernière ligne résulte de la définition de la fonction  $f(\tau)$ , et de celle de la durée radiative calculée à partir de la règle d'or de Fermi. La quantité  $\Delta$  est associée à la partie imaginaire de l'intégrale de  $f(\tau)$ ; nous y reviendrons dans le paragraphe suivant. Finalement, en utilisant  $2 S_z(t)S_-(t) = (|e\rangle\langle e| - |g\rangle\langle g|)|g\rangle\langle e| = -S_-(t)$  on obtient :

$$\frac{d}{dt}S_{-} = F_{-}(t) - \left(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta\right)S_{-}(t)$$
(4.91)

#### 4.4.8 Équations de Heisenberg-Langevin

En procédant pour  $S_+(t)$  et  $S_z(t)$  comme on l'a fait pour pour  $S_+(t)$ , on obtient finalement :

$$\frac{d}{dt}S_{-} = -(\frac{\Gamma}{2} + i\Delta) S_{-} + F_{-}(t)$$
(4.92)

$$\frac{d}{dt}S_{+} = -(\frac{\Gamma}{2} - i\Delta) S_{+} + F_{+}(t)$$
(4.93)

$$\frac{d}{dt}S_z = -\Gamma \left(S_z + \frac{1}{2}\right) + F_z(t)$$
(4.94)

On obtient donc une structure d'équations de Langevin, qui combinent des termes d'amortissement (ou de dissipation) et des termes de fluctuations. Les quantités  $F_{\pm}(t)$  et  $F_z(t)$  sont en effet des « forces de Langevin » fluctuantes, de valeur moyenne nulle dans le vide.

La quantité  $\Delta$  représente un déplacement de la fréquence de la transition atomique, qui est due au couplage de l'atome aux modes vides du rayonnement. Dans la suite on omettra ce terme, que l'on supposera inclus dans la « vraie » valeur de la fréquence de transition. En fait, ce terme, appelé « déplacement de Lamb », ne peut pas être calculé correctement si l'on utilise un modèle à deux niveaux : il faut faire intervenir tous les niveaux de l'atome. Pour le calcul complet du déplacement de Lamb on pourra consulter l'exercice 7 de CDG2.

#### 4.4.9 Évolution des valeurs moyennes

Nous allons maintenant utiliser ces équations pour établir le comportement des opérateurs atomiques. Les forces de Langevin étant nulles en valeur moyenne, on obtient aisément :

$$\frac{d}{dt}\langle S_{\pm}(t)\rangle = -\frac{\Gamma}{2} \langle S_{\pm}(t)\rangle \qquad \frac{d}{dt}\langle S_{z}(t)\rangle = -\Gamma \left(\langle S_{z}(t)\rangle + \frac{1}{2}\right)$$
(4.95)

d'où :

$$\langle S_{\pm}(t) \rangle = \langle S_{\pm}(0) \rangle \ e^{-\Gamma t/2} \tag{4.96}$$

$$\langle S_z(t) \rangle = (\langle S_z(0) \rangle + \frac{1}{2}) e^{-\Gamma t} - \frac{1}{2}$$
 (4.97)

Ces équations décrivent l'amortissement par émission spontanée, et montrent qu'il est effectivement décrit par un déclin exponentiel.

On peut remarquer que si l'atome est initialement dans l'état  $|e\rangle$ , on a  $\langle S_{\pm}\rangle(0) = 0$  et  $\langle S_z\rangle(0) = 1/2$ . Cet effet est « non-classique », car le dipôle moyen est toujours nul, mais pourtant l'atome émet un photon : on serait donc classiquement confronté au paradoxe d'un dipôle qui n'oscille pas, mais néanmoins émet de la lumière. En fait, on peut dire intuitivement que le photon émis que le photon émis est associé aux *fluctuations* du dipôle : en effet, le dipôle moyen est nul, mais pas sa variance. Nous reviendrons sur ce point ultérieurement.

Il faut aussi remarquer que pour deux opérateurs atomiques A et B,  $\langle A(t)B(t)\rangle \neq \langle A(t)\rangle\langle B(t)\rangle$  Si ce n'était pas le cas, on aurait  $\langle [A(t), B(t)]\rangle \rightarrow 0$ , ce qui est impossible : les valeurs moyennes s'amortissent, mais pas les relations de commutation. On verra plus loin comment calculer des valeurs moyennes à deux opérateurs, ce qui fera apparaître le rôle essentiel des forces de Langevin dans l'évolution du système.

#### 4.4.10 Retour sur l'état de l'atome

Pour terminer ce paragraphe, revenons brièvement à la description de l'état de l'atome au cours du processus d'amortissement radiatif. Supposons à nouveau qu'à l'instant t = 0, l'atome soit dans l'état excité :

$$|\psi_{\text{atome}}(0)\rangle = |e\rangle \tag{4.98}$$

le rayonnement étant dans le vide de photons :

$$|\psi_{\rm champ}(0)\rangle = |0\rangle \tag{4.99}$$

On pourrait essayer d'écrire l'état du système à l'instant t sous la forme :

$$|\Psi(t) = |\psi_{\text{atome}}(t)\rangle \otimes |\psi_{\text{champ}}(t)\rangle \tag{4.100}$$

et de trouver une équation portant sur  $|\psi_{atome}(t)\rangle$ , en généralisant l'équation de Schrödinger semi-classique. En fait, une telle démarche ne peut pas aboutir, car il n'existe pas de « vecteur d'état » de l'atome à l'instant t. Le seul vecteur d'état que l'on puisse écrire est un état « non factorisable », qui mélange de façon inextricable l'atome et le champ. Ces états non factorisables ou « intriqués » jouent un rôle très important en mécanique quantique, et nous y reviendrons par la suite.

Comment alors décrire l'évolution de l'atome seul? On peut bien sûr utiliser les équations de Heisenberg comme nous venons de le faire, ou faire appel à un nouvel outil théorique, la matrice densité, qui est précisément conçue pour décrire des systèmes qui n'ont pas un état quantique « pur » bien défini (voir chapitre suivant).

## 4.5 Équations de Heisenberg-Langevin en présence d'un champ laser

#### 4.5.1 Système étudié

Les équations que nous avons établies ci-dessus régissent l'évolution d'un atome à deux niveaux en présence du vide de rayonnement, à partir d'un état initial supposé connu. Ces équations ne comportant pas de mécanisme d'excitation de l'atome, celui-ci se retrouve en fait dans son état fondamental après un temps assez long.

Il est donc indispensable de prendre en compte les mécanismes d'excitation de l'atome, qui dans la plupart des expériences d'interaction matière-rayonnement sont créés par une irradiation laser. Nous allons donc maintenant établir les équations qui régissent l'évolution d'un atome à deux niveaux en présence du vide de rayonnement, **et** d'un champ laser excitateur.

On étudie donc à nouveau le couplage entre le champ quantifié et un atome à deux niveaux  $|e\rangle$  et  $|g\rangle$ , décrit par les opérateurs :

$$\mathfrak{S}_{+} = |e\rangle\langle g| = \begin{pmatrix} 0 & 1\\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \qquad \mathfrak{S}_{-} = |g\rangle\langle e| = \begin{pmatrix} 0 & 0\\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \qquad (4.101)$$

$$\mathfrak{S}_z = \frac{1}{2} (|e\rangle \langle e| - |g\rangle \langle g|) = \begin{pmatrix} 1/2 & 0\\ 0 & -1/2 \end{pmatrix} . \tag{4.102}$$

L'opérateur dipole s'écrit  $\hat{\vec{D}} = \vec{d}_{eg} (S_+ + S_-)$  où  $\vec{d}_{eg}$  est réel et orienté suivant Oz, et les trois termes de l'hamiltonien sont alors :

- Hamiltonien du rayonnement  $\hat{H}_R$ :  $\hat{H}_R = \sum_{\ell} \hbar \omega_{\ell} \left( \hat{a}_{\ell}^{\dagger} \hat{a}_{\ell} + 1/2 \right)$
- Hamiltonien des particules  $\hat{H}_P$ :  $\hat{H}_P = \hbar \omega_0 |e\rangle \langle e| = \hbar \omega_0 (\delta_z + 1/2)$
- Hamiltonien d'interaction dipolaire électrique :

$$\hat{H}_{I} = -\vec{\vec{D}} \cdot \vec{\vec{E}}_{\perp}(0,t) = -(\mathfrak{S}_{+} + \mathfrak{S}_{-}) \, d_{eg} E_{\perp z}(0,t) \tag{4.103}$$

On suppose que l'atome est irradié par un laser de vecteur d'onde  $k_L$  et de fréquence  $\omega_L$  bien déterminées, qui peut être décrit par un **état quasi-classique** d'amplitude  $\alpha \mathcal{E}_L$  dans le mode L. On peut montrer par une transformation unitaire (voir complément III.2) que la présence du laser est prise en compte en ajoutant au hamiltonien d'interaction le terme supplémentaire :

$$\hat{H}_L = -d_{eg}(\mathfrak{S}_+ + \mathfrak{S}_-)\alpha\mathfrak{S}_L\cos(\omega_L t) = \hbar\Omega_1\cos(\omega_L t)(\mathfrak{S}_+ + \mathfrak{S}_-)$$
(4.104)

où on a posé  $\hbar\Omega_1 = -d_{eg}\alpha \mathcal{E}_L$ . La quantité  $\Omega_1$  s'appelle fréquence de Rabi et caractérise quantitativement l'interaction atome-laser.

Les équations de Heisenberg pour tous les opérateurs deviennent alors :

$$\frac{d}{dt}\mathfrak{S}_{\pm} = \pm i\omega_0 \,\mathfrak{S}_{\pm} \pm 2i\mathfrak{S}_z \left(\frac{d_{eg}}{\hbar} \,E_{\perp z}(0,t) - \Omega_1 \cos(\omega_L t)\right) \tag{4.105}$$

$$\frac{d}{dt}\mathfrak{S}_{z} = i\left(\mathfrak{S}_{+} - \mathfrak{S}_{-}\right)\left(\frac{d_{eg}}{\hbar}E_{\perp z}(0,t) - \Omega_{1}\cos(\omega_{L}t)\right)$$
(4.106)

$$\frac{d}{dt}a_{\ell} = -i\omega_{\ell} a_{\ell} + \mathcal{E}_{\ell} \vec{\epsilon} \cdot \vec{D}(t)/\hbar$$
(4.107)

On effectue alors un changement de variable correspondant au mouvement forcé à la fréquence  $\omega_L$  (et non  $\omega_0$  comme précédemment) :

$$\mathfrak{S}_{\pm}(t) = S_{\pm} \ e^{\pm i\omega_L t}, \qquad a_{\ell}(t) = \tilde{a}_{\ell}(t) \ e^{-i\omega_{\ell} t} \tag{4.108}$$

puis l'approximation du champ tournant, qui permet d'effectuer une séparation en  $E_{\perp z}^{(+)}$  et  $E_{\perp z}^{(-)}$ , et enfin l'approximation de mémoire courte, qui fait apparaître les termes de relaxation.

On obtient finalement :

$$\frac{d}{dt}S_{-} = \left(-\frac{\Gamma}{2} + i\delta\right)S_{-} + i\Omega_{1}S_{z} + F_{-}(t)$$
(4.109)

$$\frac{d}{dt}S_{+} = \left(-\frac{\Gamma}{2} - i\delta\right)S_{+} - i\Omega_{1}S_{z} + F_{+}(t)$$
(4.110)

$$\frac{d}{dt}S_z = -\Gamma \left(S_z + \frac{1}{2}\right) + i\frac{\Omega_1}{2}\left(S_- - S_+\right) + F_z(t)$$
(4.111)

où on pose  $\delta = \omega_L - \omega_0$ , et :

$$F_{-}(t) = -2i \frac{d_{eg}}{\hbar} e^{+i\omega_{L}t} S_{z} E_{vz}^{(+)}, \qquad F_{+}(t) = 2i \frac{d_{eg}}{\hbar} e^{-i\omega_{L}t} S_{z} E_{vz}^{(-)}$$

$$F_{z}(t) = i \frac{d_{eg}}{\hbar} \left( e^{i\omega_{L}t} S_{+} E_{vz}^{(+)} - e^{-i\omega_{L}t} E_{vz}^{(-)} S_{-} \right)$$
(4.112)

On retrouve encore une structure d'équations de Langevin, faisant apparaître des termes d'amortissement, de fluctuations, et aussi des termes sources dûs à la présence du laser.

### 4.5.2 Évolution des valeurs moyennes : équations de Bloch optiques

Les forces de Langevin sont nulles en valeur moyenne, donc :

$$\frac{d}{dt}\langle S_{-}(t)\rangle = \left(-\frac{\Gamma}{2} + i\delta\right)\langle S_{-}(t)\rangle + i\Omega_{1}\langle S_{z}(t)\rangle$$
(4.113)

$$\frac{d}{dt}\langle S_{+}(t)\rangle = \left(-\frac{\Gamma}{2} - i\delta\right)\langle S_{+}(t)\rangle - i\Omega_{1}\langle S_{z}(t)\rangle$$
(4.114)

$$\frac{d}{dt}\langle S_z(t)\rangle = -\Gamma\left(\langle S_z(t)\rangle + \frac{1}{2}\right) + i\frac{\Omega_1}{2}\left(\langle S_-(t)\rangle - \langle S_+(t)\rangle\right)$$
(4.115)

Ces équations sont appelées « équations de Bloch optiques » (EBO), et décrivent l'évolution des valeurs moyennes des opérateurs atomiques en présence d'un champ laser, en prenant correctement en compte l'émission spontanée. En l'absence de laser ( $\Omega_1 = 0$ ) on retrouve bien sûr les équations déjà vues.

### 4.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons donc introduit le point de vue de Heisenberg en optique quantique, et montré qu'il est très utile à la fois pour analyser les effets liés aux fluctuations quantiques de la lumière, et pour établir rigoureusement les équations de Bloch optiques qui régissent le couplage atome-champ.

Dans le chapitre suivant nous verrons que les équations de Bloch optiques peuvent aussi s'interpréter de manière commode en utilisant le formalisme de la matrice densité, et nous montrerons que ce formalisme permet de comprendre plusieurs expériences qui démontrent et utilisent des propriétés spécifiquement quantiques de la lumière.

## Chapitre 5

## Matrice Densité et Équations de Bloch Optiques

### 5.1 L'opérateur densité en mécanique quantique

#### 5.1.1 Position du problème

Nous avons vu dans le chapitre précédent que l'étude de certains problèmes comme l'émission spontanée conduit à généraliser la notion de vecteur d'état, ce qui requiert l'introduction d'un nouvel outil fondamental en mécanique quantique, la *matrice (ou opérateur) densité*.

Afin de bien poser le problème, considérons une assemblée d'atomes d'argent (spins 1/2) sortant du four dans une expérience de Stern et Gerlach.

Ces atomes n'étant pas polarisés, une mesure d'une composante de spin  $\hat{\vec{S}} \cdot \vec{u}$  suivant une direction quelconque  $\vec{u}$  donnera les deux résultats possibles  $+\hbar/2$  et  $-\hbar/2$  avec la même probabilité 1/2. Comment décrire l'état d'un atome d'argent? On pourrait essayer d'utiliser l'état :

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left( |+\rangle + e^{i\phi} |-\rangle \right) \tag{5.1}$$

qui conduit effectivement à des prédictions correctes pour ses mesures selon l'axe z, mais qui correspond en fait à un spin polarisé selon la direction :

$$\vec{u}_0 = \cos\phi \, \vec{e}_x + \sin\phi \, \vec{e}_y \tag{5.2}$$

Une mesure suivant  $\vec{u}_0$  donnera donc uniquement le résultat  $+\hbar/2$ , ce qui n'est pas conforme à l'expérience. Il faut donc remplacer la notion de vecteur d'état par une notion plus générale, l'opérateur (ou matrice) densité.

# 5.1.2 Formulation de la mécanique quantique en termes de projecteurs

Nous allons tout d'abord présenter une modification simple de la formulation de la mécanique quantique. Nous généraliserons ensuite cette approche pour introduire la forme générale de la matrice densité.

On considère donc un système quantique décrit par un vecteur d'état  $|\psi(t)\rangle$  et on pose :

$$\hat{\rho}(t) = |\psi(t)\rangle\langle\psi(t)| \tag{5.3}$$

On peut alors reformuler la mécanique quantique en utilisant  $\hat{\rho}$ , qui est le projecteur sur l'état  $|\psi\rangle$ , plutôt que  $|\psi\rangle$  lui-même :

- L'opérateur  $\hat{\rho}$  est hermitien et de trace unité ( $\hat{\rho}$  étant un projecteur, toutes ses valeurs propres sont nulles sauf une qui vaut 1).
- Dans une mesure d'une quantité physique A décrite par l'observable  $\hat{A}$ , la probabilité  $\mathcal{P}(a_{\alpha})$  de trouver la valeur propre  $a_{\alpha}$  associée à l'état propre  $|\phi_{\alpha}\rangle$  est :

$$\mathscr{G}(a_{\alpha}) = |\langle \phi_{\alpha} | \psi \rangle|^{2} = \langle \phi_{\alpha} | \psi \rangle \langle \psi | \phi_{\alpha} \rangle = \Sigma_{\beta} \langle \phi_{\beta} | \hat{\rho} \hat{P}_{\alpha} | \phi_{\beta} \rangle = \operatorname{Tr}(\hat{\rho} \hat{P}_{\alpha})$$
(5.4)

où  $\hat{P}_{\alpha} = |\phi_{\alpha}\rangle\langle\phi_{\alpha}|$  (projecteur sur l'état  $|\phi_{\alpha}\rangle$ ). On a donc :

$$\mathscr{P}(a_{\alpha}) = \operatorname{Tr}(\hat{\rho}\hat{P}_{\alpha}). \tag{5.5}$$

– De même en utilisant  $\hat{A} = \sum_{\alpha} \hat{a}_{\alpha} \hat{P}_{\alpha}$  on obtient :

$$\langle A \rangle = \text{Tr}(\hat{\rho}\hat{A}).$$
 (5.6)

– Enfin, on montre facilement en utilisant l'équation de Schrödinger que l'évolution de  $\hat{\rho}$  est régie par :

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}(t)}{dt} = \left[\hat{H}(t), \hat{\rho}(t)\right].$$
(5.7)

#### 5.1.3 La matrice densité

Supposons maintenant que le système soit dans l'état  $|\psi_i\rangle$  avec une probabilité  $\Pi_i$ . Il s'agit ici d'une distribution statistique classique, et par analogie avec les probabilités classiques, on a envie d'écrire :

$$\langle A \rangle_{stat} = \sum_{i} \Pi_{i} \langle \psi_{i} | \hat{A} | \psi_{i} \rangle .$$
 (5.8)

Si on définit l'opérateur :

$$\hat{\rho} = \sum_{i} \Pi_{i} |\psi_{i}\rangle\langle\psi_{i}|$$
(5.9)

associé aux probabilités  $0 \leq \prod_i \leq 1$ , on remarque que :

$$\operatorname{Tr}(\hat{\rho} \ \hat{A}) = \sum_{i} \Pi_{i} \operatorname{Tr}(|\psi_{i}\rangle \ \langle\psi_{i}| \ \hat{A}) = \sum_{i} \Pi_{i} \ \langle\psi_{i}|\hat{A}|\psi_{i}\rangle \ .$$
(5.10)

ce qui bien est la formule souhaitée.

Afin de formaliser cette démarche, on postule que l'état de tout système quantique peut se décrire par un **opérateur densité**  $\hat{\rho}$  tel que :

- $-\hat{\rho}$  est hermitien et de trace 1 (mais  $\hat{\rho}$  n'est pas forcément un projecteur)
- Toutes ses valeurs propres sont positives ou nulles.
- L'évolution hamiltonienne et les probabilités de mesure restent les mêmes que dans le paragraphe précédent :

$$\mathscr{G}(a_{\alpha}) = \operatorname{Tr}(\hat{\rho}\hat{P}_{\alpha}) \qquad \langle A \rangle = \operatorname{Tr}(\hat{\rho}\hat{A}).$$
 (5.11)

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}}{dt} = \left[\hat{H}(t), \hat{\rho}(t)\right].$$
(5.12)

**Remarques :** L'opérateur  $\hat{\rho}$  étant hermitien, on peut toujours le diagonaliser et écrire :  $\hat{\rho} = \sum_{i} \prod_{i} |\psi_i\rangle \langle \psi_i |.$ 

Si un seul  $\Pi_i$  est non nul, on retrouve le cas d'un état  $|\psi\rangle$  unique traité dans le paragraphe précédent. L'opérateur  $\hat{\rho}$  est alors un projecteur ( $\hat{\rho}^2 = \hat{\rho}$  et  $\text{Tr}(\hat{\rho}^2) = 1$ ), et on dit que l'on a un « cas pur ».

Dans le cas général, on peut utiliser l'expression  $\langle A \rangle = \text{Tr}(\hat{\rho}\hat{A})$  de la valeur moyenne d'une grandeur physique A dans la base où l'opérateur  $\hat{\rho}$  est diagonal, et on obtient :

$$\langle A \rangle = \sum_{i} \prod_{i} \langle \psi_{i} | \hat{A} | \psi_{i} \rangle \tag{5.13}$$

c'est-à-dire que l'on retrouve bien une loi de probabilité classique.

Tout se passe donc comme si on disposait d'un état  $|\psi_j\rangle$  choisi avec une probabilité  $\Pi_j$  par un acteur extérieur, parmi l'ensemble des états possibles  $\{|\psi_i\rangle\}$ . La séquence complète des mesures faites pour un choix particulier doit être analysée comme si le système était initialement dans l'état  $|\psi_j\rangle$ . Ensuite, la même séquence expérimentale réalisée une deuxième fois (avec un autre système) correspondra à un autre état  $|\psi_k\rangle$ , également tiré au sort dans l'ensemble  $\{|\psi_i\rangle\}$  des états propres de  $\hat{\rho}$ . Finalement, Cette approche confirme bien que la matrice densité permet de « superposer » des probabilités classiques sur le formalisme quantique.

#### 5.1.4 Exemples

Considérons une particule de spin 1/2 dépolarisée :

$$\hat{\rho}_{\text{nonpol.}} = \frac{1}{2} |+\rangle \langle +| + \frac{1}{2} |-\rangle \langle -| = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \hat{1}.$$
(5.14)

Cette matrice doit être comparée à celle de l'état pur

$$(|+\rangle + |-\rangle)/\sqrt{2}$$
 qui est  $\hat{\rho}_{\text{pol.selon }x} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{pmatrix}$ . (5.15)

La différence entre un état pur, dont la matrice densité est un projecteur, et un « mélange statistique » dont la matrice densité n'est **pas** un projecteur est donc clairement apparente.

Pour un système à deux états  $\{|e\rangle, |g\rangle\}$  ou  $\{|+\rangle, |-\rangle\}$  on a :

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{ee} & \rho_{eg} \\ \rho_{ge} & \rho_{gg} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (1+n_z)/2 & (n_x - in_y)/2 \\ (n_x + in_y) & (1-n_z)/2 \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \left( \hat{1} + \vec{n}.\vec{\sigma} \right)$$
(5.16)

en posant  $\vec{n} = (n_x, n_y, n_z)$  avec  $n_i$  réels, et en utilisant les matrices de Pauli :

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$$
(5.17)

Les valeurs propres de  $\hat{\rho}$  sont alors  $(1 \pm |\vec{n}|)/2$  et on vérifie facilement que  $|\vec{n}| = 1$  pour un cas pur,  $|\vec{n}| < 1$  pour un mélange statistique, et  $|\vec{n}| = 0$  pour un système dépolarisé.

## 5.2 Description d'un sous-système. Intrication quantique

#### 5.2.1 Matrice densité d'un sous-système

Considérons un système S formé de deux sous-systèmes  $S_A$  et  $S_B$ , par exemple un atome en présence du champ électromagnétique quantifié, ou deux particules de spin 1/2. On mesure une grandeur physique A portant sur le système  $S_A$  uniquement :

$$\mathscr{G}(a_{\alpha}) = \operatorname{Tr}\left(\left(P_{\alpha} \otimes \widehat{1}_{B}\right) \hat{\rho}\right) = \operatorname{Tr}\left(P_{\alpha} \; \hat{\rho}_{A}\right) \tag{5.18}$$

où la **matrice densité réduite**  $\hat{\rho}_A$  est définie par :

$$\langle \psi_n | \hat{\rho}_A | \psi_{n'} \rangle = \sum_{m, \delta_B} \langle \psi_n; \phi_m | \hat{\rho} | \psi_{n'}; \phi_m \rangle$$
(5.19)

On peut définir de même :

$$\langle \phi_m | \hat{\rho}_B | \phi_{m'} \rangle = \sum_{n, \delta_A} \langle \psi_n; \phi_m | \hat{\rho} | \psi_n; \phi_{m'} \rangle .$$
(5.20)

Cette opération s'appelle une « trace partielle », et permet de définir des « opérateurs densités réduits » (ou « tracés »), qui décrivent un seul des deux sous-systèmes. Les valeurs moyennes de A (dans  $\delta_A$ ) et B (dans  $\delta_B$ ) s'écrivent en effet :

$$\langle A \rangle = \operatorname{Tr}(\hat{A}\,\hat{\rho}_A) \qquad \langle B \rangle = \operatorname{Tr}(\hat{B}\,\hat{\rho}_B)$$

$$(5.21)$$

En l'absence d'interactions entre  $S_A$  et  $S_B$ , le Hamiltonien du système s'écrit :

$$\hat{H} = \hat{H}_A + \hat{H}_B \tag{5.22}$$

et on vérifie facilement que :

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}_A}{dt} = [\hat{H}_A, \hat{\rho}_A] \qquad i\hbar \frac{d\hat{\rho}_B}{dt} = [\hat{H}_B, \hat{\rho}_B] \tag{5.23}$$

Ces équations restent valables même si l'état du système n'est pas factorisé. Toute l'information pour calculer les mesures portant sur  $\mathfrak{A}$  est disponible à partir de  $\rho_A$ , et il est inutile de connaître le vecteur d'état  $|\Psi\rangle$  ou l'opérateur densité  $\hat{\rho}$  de l'ensemble. Il y a néanmoins quelques subtilités importantes :

- En général l'opérateur densité ne factorise pas :  $\hat{\rho} \neq \hat{\rho}_A \otimes \hat{\rho}_B$ .
- La différence entre  $\hat{\rho}$  et  $\rho_A \otimes \hat{\rho}_B$  correspond aux corrélations contenues dans  $\hat{\rho}$ , qui ont été perdues lorsqu'on est passé à  $\hat{\rho}_A$  et  $\hat{\rho}_B$ . Il est donc nécessaire de connaître  $\hat{\rho}$  si on s'intéresse aux **corrélations** entre  $\tilde{S}_A$  et  $\tilde{S}_B$ .

Ce sont ces corrélations quantiques qui sont associées aux phénomènes liés à l'intrication.

#### 5.2.2 Exemple de systèmes intriqués

Considérons un « état singulet » pour 2 spins 1/2 :

$$|\psi_{ss}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+, -\rangle - |-, +\rangle) \qquad \hat{\rho}_{ss} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0\\ 0 & 1 & -1 & 0\\ 0 & -1 & 1 & 0\\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
(5.24)

en rangeant les vecteurs de base dans l'ordre : { $|+, +\rangle$ ,  $|+, -\rangle$ ,  $|-, +\rangle$ ,  $|-, -\rangle$ } Les opérateurs densité réduits sont alors :

$$\hat{\rho}_A = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \qquad \hat{\rho}_B = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \qquad \rho_A \otimes \hat{\rho}_B = \frac{1}{4} \hat{1}_4 \tag{5.25}$$

Si on mesure le spin de chaque particule suivant une direction quelconque  $(\theta, \phi)$ , un calcul simple montre que  $p_{A+} = p_{A-} = p_{B+} = p_{B-} = 1/2$  mais que  $p_{A+,B+} = p_{A-,B-} = 0$  et  $p_{A+,B-} = p_{A-,B+} = 1/2$ . Les résultats de mesure sur chaque particule sont donc totalement aléatoires, ce qui n'est pas surprenant puisque les deux sous-systèmes sont totalement dépolarisés. Par contre, l'ensemble est dans un état pur, ce qui va induire des corrélations très fortes entre les mesures effectués sur les deux particules : on constate aisément que si une mesure donne « + » pour l'une des particules, elle donne automatiquement « - » pour l'autre.

#### 5.2.3 Quelques considérations sur les systèmes intriqués

On considère un ensemble de deux systèmes  $\delta_A$  et  $\delta_B$  globalement dans un état pur  $\rho_{AB} = |\Psi_{AB}\rangle \langle \Psi_{AB}|^1$ . En général les opérateurs densité réduits  $\hat{\rho}_A$  et  $\hat{\rho}_B$  des sous-systèmes ne sont pas des projecteurs, et donc ne décrivent pas des états purs : on dit alors que  $\delta_A$  et  $\delta_B$  sont **intriqués** (dans ce cas on a aussi  $\hat{\rho}_{AB} \neq \hat{\rho}_A \otimes \hat{\rho}_B$ ).

C'est par exemple le cas pour 2 particules de spin 1/2 dans l'état singulet, pour les états de l'atome et du champ en présence d'émission spontanée. De plus, l'interaction de deux systèmes quantiques quelconques conduit très souvent à la formation d'un état intriqué. Il s'agit donc d'un effet très général en physique quantique, qui conduit à l'existence de fortes corrélations entre les mesures que l'on peut effectuer sur les deux systèmes pris séparément.

Lorsque les états considérés sont fortement intriqués (c'est par exemple le cas pour un état singulet), ces corrélations ne peuvent pas être décrites par un modèle « réaliste local » inspiré de la physique classique. En effet, en physique classique on décrit les corrélations entre des mesures effectuées sur des sous-systèmes séparés en attribuant à chaque sous-système des propriétés corrélées à celles de l'autre. Si on veut reproduire les corrélations quantiques par un tel modèle, **John Bell** a montré que ces propriétés devraient être non-locales (violer la causalité relativiste), ce qui est inacceptable.

Par contre, la mécanique quantique reste en parfait accord avec la causalité relativiste, mais ceci a un prix : il est impossible d'attribuer une « réalité physique locale » à l'état de chaque sous-système. À cette conclusion sont attachés les noms d'Einstein, Podolsky et Rosen (EPR), qui ont souligné dès 1935 les difficultés conceptuelles qui en résultent, et que l'on désigne souvent par le terme général de « non-séparabilité quantique ».

Les très importantes implications théoriques et expérimentales du raisonnement EPR et du théorème de Bell sont discutées de manière approfondie dans le Complément II.3 du Tome 1, et on s'y reportera utilement pour plus de détails. Dans le cadre de ce chapitre, on retiendra que la notion mathématiquement simple d'opérateur densité d'un sous-système cache quelques concepts physiques très subtils.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Un théorème utile et simple à démontrer établit que l'opérateur densité  $\hat{\rho}$  correspond à un « cas pur » si et seulement si c'est un projecteur, c'est-à-dire si  $\hat{\rho}^2 = \hat{\rho}$ 

### 5.3 Équations de Bloch optiques

#### 5.3.1 Formulation mathématique

Considérons à nouveau un atome à deux niveaux, notés e (niveau excité) et g (niveau fondamental). L'opérateur densité atomique est une matrice hermitienne  $2 \times 2$ :

$$\hat{\sigma}_A(t) = \begin{pmatrix} \sigma_{ee}(t) & \sigma_{eg}(t) \\ \sigma_{ge}(t) & \sigma_{gg}(t) \end{pmatrix}$$
(5.26)

qui a les propriétés suivantes :

- C'est un opérateur hermitien, donc  $\sigma_{ee}, \sigma_{gg}$  sont réels, et  $\sigma_{eg} = \sigma_{qe}^*$ .
- Ses valeurs propres sont positives, et de somme égale à 1.
- Les « populations »  $\Pi_e = \sigma_{ee}, \, \Pi_g = \sigma_{gg}$  vérifient :

$$\sigma_{ee} + \sigma_{gg} = 1$$
  $\sigma_{ee} , \sigma_{gg} \ge 0$   $\sigma_{ee}\sigma_{gg} \ge |\sigma_{eg}|^2$  (5.27)

On a alors pour tout opérateur atomique :

$$\langle A \rangle(t) = \operatorname{Tr}(\hat{\sigma}(t)\hat{A}_S) = \operatorname{Tr}(\hat{\sigma}(0)\hat{A}_H(t)).$$
 (5.28)

En représentation de Schrödinger les opérateurs atomiques s'écrivent :

$$\mathfrak{S}_{+} = |e\rangle\langle g| = \begin{pmatrix} 0 & 1\\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \qquad \mathfrak{S}_{-} = |g\rangle\langle e| = \begin{pmatrix} 0 & 0\\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \qquad (5.29)$$

$$\delta_z = \frac{1}{2} (|e\rangle \langle e| - |g\rangle \langle g|) = \begin{pmatrix} 1/2 & 0\\ 0 & -1/2 \end{pmatrix}.$$
(5.30)

et on a donc avec les notations du chapitre précédent :

$$\langle \mathfrak{S}_+ \rangle(t) = \sigma_{ge}(t), \quad \langle \mathfrak{S}_- \rangle(t) = \sigma_{eg}(t), \quad \langle \mathfrak{S}_z \rangle(t) = \frac{1}{2}(\sigma_{ee}(t) - \sigma_{gg}(t))$$
(5.31)

ou encore :

$$\langle S_+ \rangle(t) = e^{-i\omega_L t} \ \sigma_{ge}(t) = \tilde{\sigma}_{ge}(t), \tag{5.32}$$

$$\langle S_{-}\rangle(t) = e^{i\omega_{L}t} \ \sigma_{eg}(t) = \tilde{\sigma}_{eg}(t), \qquad (5.33)$$

$$\langle S_z \rangle(t) = (1/2)(\sigma_{ee}(t) - \sigma_{gg}(t)) = (\sigma_{ee}(t) - 1/2) .$$
(5.34)

Ces équations justifient les notations adoptées pour la matrice densité atomique, et montrent clairement que les termes diagonaux  $\sigma_{ee}$  et  $\sigma_{gg}$  sont associés aux « populations » des niveaux atomiques, tandis que les termes non-diagonaux  $\sigma_{eg}$  et  $\sigma_{ge}$ , qui sont souvent appelés « cohérences », apparaissent dans la valeur moyenne de l'opérateur dipôle.

En utilisant ces notations dans l'expression des équations de Bloch optiques (EBO) établies dans le chapitre précédent, on obtient deux formulations équivalentes des EBO, qui correspondent respectivement aux points de vue de Heisenberg et de Schrödinger :

$$\frac{d}{dt}\langle S_{-}(t)\rangle = \left(-\frac{\Gamma}{2} + i\delta\right) \left\langle S_{-}(t)\right\rangle + i\Omega_{1} \left\langle S_{z}(t)\right\rangle$$
(5.35)

$$\frac{d}{dt}\langle S_{+}(t)\rangle = \left(-\frac{\Gamma}{2} - i\delta\right)\langle S_{+}(t)\rangle - i\Omega_{1}\langle S_{z}(t)\rangle$$
(5.36)

$$\frac{d}{dt}\langle S_z(t)\rangle = -\Gamma \langle S_z(t) + \frac{1}{2}\rangle + i\frac{\Omega_1}{2} \left(\langle S_-(t)\rangle - \langle S_+(t)\rangle\right)$$
(5.37)

ou

$$\frac{d}{dt}\tilde{\sigma}_{eg}(t) = \left(-\frac{\Gamma}{2} + i\delta\right)\tilde{\sigma}_{eg}(t) + i\Omega_1\left(\sigma_{ee}(t) - 1/2\right)$$
(5.38)

$$\frac{d}{dt}\tilde{\sigma}_{ge}(t) = \left(-\frac{\Gamma}{2} - i\delta\right)\tilde{\sigma}_{ge}(t) - i\Omega_1\left(\sigma_{ee}(t) - 1/2\right)$$
(5.39)

$$\frac{d}{dt}\sigma_{ee}(t) = -\Gamma \sigma_{ee}(t) + i\frac{\Omega_1}{2} \left(\tilde{\sigma}_{eg}(t) - \tilde{\sigma}_{ge}(t)\right)$$
(5.40)

On a démontré explicitement la première formulation à partir des équations de Heisenberg-Langevin. On peut aussi démontrer directement la seconde à partir de l'équation d'évolution de  $\hat{\sigma}(t)$  (« équation pilote »), en représentation de Schrödinger. Nous ne présenterons pas ces calculs ici (voir CDG2), mais on peut remarquer qu'ils reposent sur des approximations très similaires à celles que nous avons effectuées dans l'obtention des équations de Heisenberg-Langevin. Les deux formulations sont bien sûr totalement équivalentes.

#### 5.3.2 Discussion

Pour bien comprendre la structure des EBO, omettons les termes d'émission spontanée. On obtient alors :

$$\frac{d}{dt}\tilde{\sigma}_{eg}(t) = i\delta \;\tilde{\sigma}_{eg}(t) + i\Omega_1 \; (\sigma_{ee}(t) - 1/2) \tag{5.41}$$

$$\frac{d}{dt}\tilde{\sigma}_{ge}(t) = -i\delta \ \tilde{\sigma}_{ge}(t) - i\Omega_1 \ (\sigma_{ee}(t) - 1/2)$$
(5.42)

$$\frac{d}{dt}\sigma_{ee}(t) = i\frac{\Omega_1}{2} \left(\tilde{\sigma}_{eg}(t) - \tilde{\sigma}_{ge}(t)\right)$$
(5.43)

On voit clairement que le laser introduit des termes de couplage entre les populations et les cohérences. Si l'atome est initialement dans un état pur, c'est-à-dire si  $\hat{\sigma}(0) = |\psi(0)\rangle\langle\psi(0)|$ , il reste dans un état pur. Par exemple si  $|\psi(0)\rangle = |g\rangle$  on obtient :

$$\sigma_{ee}(t) = \frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \delta^2} \sin^2(\sqrt{\Omega_1^2 + \delta^2} \, \frac{t}{2}) \tag{5.44}$$
On retouve ainsi la formule de Rabi, qui peut aussi être obtenue par un calcul bien connu à partir de l'équation de Schrödinger. La matrice densité est en fait inutile dans ce cas, puisque le système évolue de manière purement « cohérente » et reste dans un état pur.

Considérons maintenant les EBO sans excitation laser. L'évolution des populations est alors donnée par :

$$\frac{d\sigma_{gg}}{dt} = \Gamma \ \sigma_{ee}(t) \qquad \qquad \frac{d\sigma_{ee}}{dt} = -\Gamma \ \sigma_{ee}(t) \tag{5.45}$$

On retrouve bien sûr l'émission spontanée dans le point de vue de l'opérateur densité, qui se traduit par un transfert de population de e vers g.



FIG. 5.1 : Schéma décrivant l'émission spontanée d'un atome de e vers g.

Pour les cohérences, on trouve :

$$\frac{d\tilde{\sigma}_{eg}}{dt} = -\frac{\Gamma}{2} \,\tilde{\sigma}_{eg}(t) \qquad \frac{d\tilde{\sigma}_{ge}}{dt} = -\frac{\Gamma}{2} \,\tilde{\sigma}_{ge}(t) \tag{5.46}$$

On remarque que le taux d'amortissement des cohérences est la moitié de celui des populations. Cette relation entre le taux de relaxation des populations ( $\Gamma = 1/T_1$ ) et le taux de relaxation des cohérences ( $\Gamma/2 = 1/T_2$ ) peut être modifiée pour des systèmes plus compliqués. Par exemple, si l'atome est fortement perturbé par des atomes voisins (via des mécanismes de collisions...) on a  $T_2 \ll T_1$ : les cohérences s'amortissent beaucoup plus vite que les populations. Dans ce cas, on peut négliger les cohérences, et ne considérer que les équations des populations : c'est le régime des « équations de taux », souvent utiles en physique des lasers.

Pour terminer ce paragraphe, rappelons les critères de validité des calculs qui permettent d'obtenir les EBO :

- Approximation de mémoire courte : il faut supposer que le continuum des niveaux finals est « large devant » Γ. C'est aussi la condition de validité de la règle d'or de Fermi, et elle assure que l'émission spontanée est un phénomène irréversible.
- Dans les calculs effectués, on a additionné deux termes d'évolution : d'une part l'évolution cohérente due au champ classique, et d'autre part l'évolution irréversible due au vide quantique. Cette approximation est valable si l'on suppose que  $\Gamma$ ,  $\Omega_1$ ,  $\delta = \omega \omega_0 \ll \omega_0$  c'est-à-dire si les fréquences qui caractérisent le couplage atome-champ sont négligeables devant la fréquence optique. Cette approximation est en général très bien vérifiée dans le domaine optique, mais peut se trouver mise en défaut dans d'autres domaines de longueurs d'onde, ou si on utilise des champs lasers impulsionnels extrêmement intenses.

# 5.4 Absorption et diffusion de lumière laser par un atome

### 5.4.1 Solution typique des EBO en régime transitoire

On considère un atome initialement dans l'état fondamental

$$\sigma_{qq}(0) = 1$$
  $\sigma_{ee}(0) = 0$  (5.47)

et on « branche » le laser à l'instant t = 0. On peut alors calculer l'évolution de la population  $\sigma_{ee}(t)$ , et la comparer à la prédiction connue donnée par la formule de Rabi. On constate alors (voir figure) que le comportement oscillatoire de la formule de Rabi est remplacé par un régime transitoire, dont la constante de temps typique est  $1/\Gamma$ . Ce régime est caractéristique d'un système quantique en présence de dissipation.



FIG. 5.2 : Évolution de  $\sigma_{ee}(t)$  pour  $\Omega_1 = 4 \Gamma$  et  $\delta = 0$ .

### 5.4.2 État stationnaire des EBO : populations

Après ce régime transitoire, l'atome atteint un régime stationnaire en présence du laser, très similaire à un régime d'oscillations forcées.

Nous allons maintenant étudier ce régime plus en détail. On pose

$$\frac{d\sigma_{ee}}{dt} = 0 \qquad \qquad \frac{d}{dt}\left(\tilde{\sigma}_{eg}\right) = 0 \tag{5.48}$$

et on trouve pour les populations :

$$\sigma_{gg}^{\rm st} = \frac{2+s}{2(1+s)} \qquad \qquad \sigma_{ee}^{\rm st} = \frac{s}{2(1+s)} \tag{5.49}$$

où on a définit le paramètre de saturation s par :

$$s = \frac{\Omega_1^2 / 2}{\delta^2 + \Gamma^2 / 4} \tag{5.50}$$

### **Remarques** :

- On a toujours  $\sigma_{ee}^{\rm st} < \sigma_{gg}^{\rm st}$ .
- À basse intensité ( $s \ll 1$ ), on a  $\sigma_{gg}^{\rm st} \simeq 1$   $\sigma_{ee}^{\rm st} \simeq s/2 \ll 1$
- À haute intensité, on trouve :  $\sigma_{gg}^{\rm st} \simeq 1/2$   $\sigma_{ee}^{\rm st} \simeq 1/2$

### 5.4.3 État stationnaire des EBO : cohérences

Il est utile de définir les partie réelles et imaginaires de  $\langle S_{\pm}(t) \rangle$ :

$$u = Re(\langle S_+(t) \rangle) = \frac{1}{2}(\langle S_+(t) \rangle + \langle S_-(t) \rangle) = \frac{1}{2}(\tilde{\sigma}_{ge}(t) + \tilde{\sigma}_{eg}(t))$$
(5.51)

$$v = Im(\langle S_{+}(t) \rangle) = \frac{1}{2i}(\langle S_{+}(t) \rangle - \langle S_{-}(t) \rangle) = \frac{1}{2i}(\hat{\sigma}_{ge}(t) - \hat{\sigma}_{eg}(t))$$
(5.52)

On a alors :

$$\langle \hat{D}(t) \rangle = d_{eg} \langle \mathfrak{S}_{+}(t) + \mathfrak{S}_{-}(t) \rangle$$

$$= d_{eg} \langle S_{+}(t) e^{i\omega_{L}t} + S_{-}(t) e^{-i\omega_{L}t} \rangle$$

$$= 2d_{eg} (u \cos(\omega_{L}t) - v \sin(\omega_{L}t))$$

$$(5.53)$$

Les grandeurs u et v correspondent respectivement aux réponses du dipôle « en phase » et « en quadrature » avec le champ excitateur.

En régime d'oscillations forcées la partie u (en phase) est dite « réactive » et la partie v (en quadrature) est dite « dissipative ».

On trouve alors en régime stationnaire forcé :

$$u_{st} = \frac{\Omega_1}{2} \frac{\delta}{\delta^2 + \Gamma^2/4 + \Omega_1^2/2} \qquad v_{st} = \frac{\Omega_1}{2} \frac{\Gamma/2}{\delta^2 + \Gamma^2/4 + \Omega_1^2/2} \qquad (5.54)$$

### 5.4.4 Nombre de photons diffusés par l'atome

Entre t et t + dt le travail effectué par le champ sur le dipole est

$$dW = E_L(t) \ d\langle D(t) \rangle \tag{5.55}$$



FIG. 5.3 : Composante « réactive » (dispersion).



FIG. 5.4 : Composante « active » (absorption).

et la puissance moyenne absorbée par l'atome vaut donc :

$$\langle \frac{dW}{dt} \rangle = \alpha \mathfrak{S}_L \cos(\omega_L t) \; \frac{d\langle D(t) \rangle}{dt} \tag{5.56}$$

On a vu que

$$\langle \hat{D}(t) \rangle = 2d_{eg} \left( u_{st} \cos(\omega_L t) - v_{st} \sin(\omega_L t) \right)$$
 (5.57)

$$d\langle \hat{D}(t) \rangle / dt = -2d_{eg}\omega_L \left( u_{st} \sin(\omega_L t) + v_{st} \cos(\omega_L t) \right)$$
(5.58)

d'où en moyennant sur le temps :

$$P_{abs} = -2d_{eg}\omega_L \ \alpha \mathcal{E}_L \ v_{st}/2 = \hbar \omega_L \ \Omega_1 \ v_{st}.$$
(5.59)

En divisant par  $\hbar\omega_L$  le nombre de photons diffusés par unité de temps est :

$$N_{abs} = \Omega_1 v = \frac{\Gamma}{2} \frac{s}{1+s} = \Gamma \sigma_{ee}^{\text{st}}$$

$$(5.60)$$

Puisque  $\sigma_{ee}^{\text{st}}$  vaut 1/2 à forte intensité le nombre maximum de photons diffusés par unité de temps est égal à  $\Gamma/2$  (saturation de la transition).

## 5.5 Spectre de fluorescence d'un atome irradié par une onde laser quasi-résonnante

### 5.5.1 Spectre de fluorescence

On éclaire l'atome dont la fréquence de transition est  $\omega_0$  avec un laser de fréquence  $\omega_L$ , et on souhaite connaître la fréquence des photons émis par l'atome. Ce problème est non trivial car le système est susceptible d'osciller à plusieurs fréquences, en particulier la fréquence atomique  $\omega_0$ , la fréquence laser  $\omega_L$ , et peut-être d'autres fréquences.

Il existe aussi une réponse « classique » à ce problème, fournie par le modèle de l'électron élastiquement lié (cf. complément du cours) : un dipôle excité par un rayonnement de fréquence  $\omega_L$  rayonne à la fréquence  $\omega_L$  en régime stationnaire. Nous allons voir que la « réponse quantique » peut être très différente.

### 5.5.2 Expression du spectre de fluorescence

Le spectre d'une source lumineuse représente l'énergie émise à la fréquence  $\omega$  (à  $d\omega$  près). Il se mesure avec un spectromètre, par exemple un réseau de diffraction (faible résolution) ou un interféromètre de Fabry-Perot (haute résolution).

Classiquement le spectre est la transformée de Fourier de la fonction de corrélation de l'amplitude complexe  $\mathcal{E}(t)$  du champ électrique :

$$\mathscr{G}(\omega) \sim \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau \ e^{i(\omega_L - \omega)\tau} \ \langle \mathfrak{S}^*(t + \tau)\mathfrak{S}(t) \rangle \tag{5.61}$$

Par analogie nous admettrons que le spectre de la lumière émise par un dipôle est proportionnel à la tranformée de Fourier suivante :

$$\mathfrak{N}(\omega) = \frac{\Gamma}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau \ e^{i(\omega_L - \omega)\tau} \ \langle S_+(t+\tau)S_-(t)\rangle$$
(5.62)

La fonction  $\langle S_+(t+\tau)S_-(t)\rangle$  représente la fonction de corrélation du dipôle entre les instants t et  $t + \tau$ , et est indépendante de t en régime stationnaire.

Afin de calculer cette quantité, on peut séparer la valeur moyenne et les fluctuations du dipole en posant :

$$S_{\pm}(t) = \langle S_{\pm} \rangle_{st} \,\hat{1} + \delta S_{\pm}(t) \tag{5.63}$$

On a alors :

$$\mathfrak{N}(\omega) = \frac{\Gamma}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau e^{i(\omega_L - \omega)\tau} \left( |\langle S_+ \rangle|^2 + \langle \delta S_+(t + \tau) \delta S_-(t) \rangle \right)$$
  
$$= \Gamma |\langle S_+ \rangle|^2 \,\delta(\omega - \omega_L) + \frac{\Gamma}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau e^{i(\omega_L - \omega)\tau} \,\langle \delta S_+(t + \tau) \delta S_-(t) \rangle$$
(5.64)  
$$= N_{coh}(\omega) \,\delta(\omega - \omega_L) + \mathfrak{N}_{incoh}(\omega)$$

Le spectre comprend donc une partie « cohérente »  $N_{coh} = \Gamma |\langle S_+ \rangle|^2$  de fréquence  $\omega_L$ , et une partie « incohérente » :

$$\mathfrak{N}_{incoh}(\omega) = \frac{\Gamma}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau e^{i(\omega_L - \omega)\tau} \left\langle \delta S_+(t+\tau) \delta S_-(t) \right\rangle$$
(5.65)

On a vu que :

$$N_{abs} = \Gamma \sigma_{ee}^{st} = \Gamma \langle S_+ S_-(t) \rangle = \frac{\Gamma}{2} \frac{s}{1+s}$$
(5.66)

La fraction « cohérente »  $N_{coh}$  de la lumière diffusée, qui est ré-émise exactement à la fréquence  $\omega_L$  du laser, est donc donnée par :

$$N_{coh} = \Gamma |\langle S_+ \rangle_{st}|^2 = \Gamma (u_{st}^2 + v_{st}^2) = \frac{\Gamma}{2} \frac{s}{(1+s)^2}$$
(5.67)

La fraction « incohérente » (émise à une autre fréquence) est alors donnée par :

$$N_{incoh} = N_{abs} - N_{coh} = \frac{\Gamma}{2} \frac{s^2}{(1+s)^2}$$
 (5.68)

On peut représenter graphiquement  $N_{abs}$  (nombre total de photons diffusés),  $N_{coh}$  (nombre de photons diffusés à la fréquence du laser  $\omega_L$ ), et  $N_{incoh}$  (nombre de photons diffusés à d'autres fréquences)



FIG. 5.5: Valeurs du nombre total de photons diffusés  $(N_{abs})$ , du nombre de photons diffusés à la fréquence du laser  $\omega_L$   $(N_{coh})$ , et du nombre de photons diffusés à d'autres fréquences  $(N_{incoh})$  en fonction du paramètre de saturation s.

La fluorescence est surtout « cohérente » lorsque le paramètre de saturation  $s = \frac{\Omega_1^2/2}{\delta^2 + \Gamma^2/4}$  est petit (faible intensité), et devient « incohérente » pour s grand (forte intensité).

### 5.5.3 Spectre de fluorescence inélastique

Quelle est alors la fréquence de la partie incohérente  $(N_{incoh})$  du spectre du fluorescence? Il faut calculer

$$\mathfrak{N}_{incoh}(\omega) = \frac{\Gamma}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau e^{i(\omega_L - \omega)\tau} \left\langle \delta S_+(t+\tau) \delta S_-(t) \right\rangle$$
(5.69)

Ce calcul fait intervenir des **fonctions de corrélations** du dipôle, qui sont des valeurs moyennes de produits d'opérateurs. Il est donc indispensable de revenir aux équations de Langevin, car les EBO fournissent seulement les valeurs moyennes des opérateurs, et non de leurs produits<sup>2</sup>. Le calcul est effectué dans CDG2, ici nous admettrons simplement les résultats.

Le spectre de fluorescence  $\mathfrak{N}_{incoh}(\omega)$  a en fait une structure en trois pics, appelée « Triplet de Mollow », dont la raie centrale a pour fréquence  $\omega_L$ , et les « bandes latérales » ont pour fréquences

$$\omega_L \pm \sqrt{\delta^2 + \Omega_1^2}.\tag{5.70}$$

À faible intensité, les bandes latérales ont donc pour fréquences :

$$\omega_L \pm \delta = \omega_L \pm (\omega_L - \omega_0), \tag{5.71}$$

c'est-à-dire  $\omega_0$  et  $2\omega_L - \omega_0$ . On voit donc qu'en plus de la composante à  $\omega_L$  (qui est la seule prédite classiquement) apparaissent non seulement une raie au voisinage de la fréquence atomique  $\omega_0$ , mais aussi une autre raie qui en est le symétrique par rapport à  $\omega_L$ . Cette structure est non-intuitive, mais elle peut se comprendre physiquement en utilisant la notion d'atome « habillé » par les photons du laser (voir PC et CDG2).

La figure ci-dessous montre les résultats de calculs et d'observations du triplet de Mollow, effectués dans la référence : R.E. Grove, R.Y. Wu, S. Ezekiel, Phys. Rev. A 15, 227 (1977).

## 5.6 Conclusion

Dans ce cours on a vu comment :

- 1. introduire une description complète de l'interaction atome-laser à l'aide des équations de Bloch optiques (EBO),
- 2. interpréter les EBO en point de vue de Heisenberg (équations de Langevin) ou en point de vue de Schrödinger (matrice densité),
- 3. utiliser les EBO pour calculer les propriétés de la lumière diffusée par un atome.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Remarquons néanmoins qu'il existe une méthode, appelée « théorème de régression quantique », qui permet d'évaluer les fonctions de corrélations à partir des EBO; l'exposé de ce théorème sort du cadre de ce cours.



FIG. 5.6: Prédictions théoriques et mesures expérimentales du spectre de fluorescence de résonance (triplet de Mollow). L'expérience est réalisée avec des atomes de sodium, avec les paramètres suivants :  $\Gamma/(2\pi) = 10$  MHz,  $\Omega_1/(2\pi) = 78$  MHz, et trois valeurs différentes du désaccord atome-laser : (a) :  $\delta/(2\pi) = -50$  MHz, (b) :  $\delta/(2\pi) = 0$ , (c) :  $\delta/(2\pi) = +50$  MHz.

Les équations de Bloch optiques constituent un outil fondamental pour décrire théoriquement l'interaction atome-rayonnement. Dans le cadre de l'approximation résonnante qui correspond à un grand nombre de situations expérimentales importantes, ce sont des équations exactes, qui décrivent quantiquement l'évolution atomique, tout en permettant de prendre en compte les phénomènes de relaxation, dus à l'émission spontanée, mais aussi à d'autres effets comme les collisions (cf. Complément 2 de ce chapitre).

Par rapport à des traitements approchés plus simples, elles ont l'avantage de décrire correctement deux types de phénomènes essentiels dans l'interaction atome-laser. Il s'agit d'une part des effets d'ordre supérieur apparaissant à forte intensité, comme la saturation, ou plus généralement les effets non-linéaires. D'autre part, elles permettent de traiter correctement les cohérences entre niveaux atomiques, qui sont responsables de très nombreux effets. Ce sont notamment ces cohérences qui déterminent la fréquence et la phase du dipôle électrique atomique induit par le rayonnement incident sur l'atome. On peut ainsi prévoir les caractéristiques les plus fines du rayonnement diffusé par un atome soumis à un champ incident quelconque<sup>3</sup>. Par exemple, nous avons décrit le spectre de fluorescence de résonance, et l'effet spécifiquement quantique de « dégroupement de photons » est étudié dans le Complément 1 de ce chapitre.

Les équations de Bloch optiques se généralisent naturellement aux systèmes comportant plus de deux niveaux. Mais elles conduisent souvent à des systèmes d'équations inextricables, dès que l'on doit considérer plus de trois niveaux atomiques, et il faut alors

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>CDG 2, Chapitre V.

revenir à des méthodes approchées plus simples. À faible intensité, la méthode des perturbations donne la réponse linéaire des atomes (cf. Complément 3 de ce chapitre); à forte intensité, on peut avoir recours à des équations de pompage (voir Cours Lasers), qui décrivent correctement les phénomènes non-linéaires tels que la saturation, mais qui prennent très mal en compte les phénomènes liés aux cohérences. En fait, l'emploi de telle ou telle approximation se fait souvent de façon heuristique, en s'appuyant sur l'expérience acquise en appliquant les équations de Bloch optiques aux systèmes à deux et trois niveaux.

# Complément 5A Le dégroupement de photons

## 5A.1 Système étudié

On considère un atome **unique** à deux niveaux  $|e\rangle$  et  $|g\rangle$  irradié par un laser, et on s'intéresse à la distribution temporelle des photons émis par l'atome.

L'outil théorique permettant d'étudier ce problème est la « fonction de corrélation d'intensité », qui donne la probabilité de détecter deux photons aux instants t et  $t + \tau$ . Plus précisément, on définit :

$$g^{(2)}(t, t+\tau) = \frac{P(t, t+\tau)}{P(t)P(t+\tau)}$$
(5A.1)

Pour une source « stationnaire », décrivant par exemple un atome irradié en continu par un laser,  $P(t, t + \tau)$  ne dépend pas de t, et on a  $P(t + \tau) = P(t)$ . D'après la théorie de la photodétection, on peut donc écrire :

$$g^{(2)}(\tau, \vec{r}) = \frac{\langle \hat{E}^{(-)}(t, \vec{r}) \hat{E}^{(-)}(t+\tau, \vec{r}) \hat{E}^{(+)}(t+\tau, \vec{r}) \hat{E}^{(+)}(t, \vec{r}) \rangle}{\langle \hat{E}^{(-)}(t, \vec{r}) \hat{E}^{(+)}(t, \vec{r}) \rangle^2}$$
(5A.2)

Pour un champ classique, on définit :

$$\mathscr{G}(t) = \langle \mathscr{E}^*(t) \mathscr{E}(t) \rangle \tag{5A.3}$$

et on a :

$$g_{\text{class}}^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \mathfrak{S}^*(t)\mathfrak{S}^*(t+\tau)\mathfrak{S}(t+\tau)\mathfrak{S}(t)\rangle}{\langle \mathfrak{S}^*(t)\mathfrak{S}(t)\rangle^2} = \frac{\langle \mathfrak{I}(t+\tau)\mathfrak{I}(t)\rangle}{\langle \mathfrak{I}(t)\rangle^2}$$
(5A.4)

En utilisant les inégalités  $\langle \mathscr{G}^2(t) \rangle \geq \langle \mathscr{G}(t) \rangle^2$  et  $\langle \mathscr{G}^2(t) \rangle \geq \langle \mathscr{G}(t+\tau) \mathscr{G}(t) \rangle$  (inégalités de Cauchy-Schwartz), on voit que :

$$g_{\text{class}}^{(2)}(0) \ge 1$$
  $g_{\text{class}}^{(2)}(0) \ge g_{\text{class}}^{(2)}(\tau)$  (5A.5)

On va voir que pour un champ quantique on peut avoir :  $g_{\text{quant}}^{(2)}(0) = 0$ . Ceci entre en contradiction flagrante avec les inégalités classiques, et constitue pour cette raison un effet « spécifiquement quantique », dont l'observation peut être considérée comme une preuve expérimentale de la nécessité d'une description quantique de la lumière.

## 5A.2 Lien entre le champ rayonné et le dipôle émetteur

On suppose que l'atome émetteur est placé en  $\vec{r} = \vec{0}$ , et que le photodétecteur est en  $\vec{r} = \vec{r}_D$ . Classiquement, en omettant le caractère vectoriel du champ, on a :

$$\mathcal{E}(r_D, t) = \eta \ d(t - r_D/c) \tag{5A.6}$$

où  $\eta$  est un coefficient de proportionnalité prenant en compte les effets de propagation (le champ rayonné est en fait proportionnel à la dérivée seconde de d(t), mais  $d''(t) = -\omega_L^2 d(t)$ ).

Dans une approche quantique cette équation devient (CDG2, ch. V.D) :

$$\hat{E}^{(\pm)}(r_D, t) = \eta e^{\mp i\omega_L(t - r_D/c)} S_{\mp}(t - r_D/c).$$
(5A.7)

En définissant le « temps retardé »  $t_r = t - r_D/c$ , on obtient :

$$\langle \hat{E}^{(-)}(t)\hat{E}^{(+)}(t)\rangle = \eta^2 \langle S_+(t_r)S_-(t_r)\rangle = \eta^2 \langle \Pi_e(t_r)\rangle$$
 (5A.8)

où on a noté :  $S_+S_- = |e\rangle\langle g|g\rangle\langle e| = |e\rangle\langle e| = \Pi_e$ . On obtient ainsi :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{S}_{+}(t_r)\hat{S}_{+}(t_r+\tau)\hat{S}_{-}(t_r+\tau)\hat{S}_{-}(t_r)\rangle}{\langle \Pi_e(t_r)\rangle^2}$$
(5A.9)

qui devient pour  $\tau = 0$  :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle \hat{S}_{+}(t_r)\hat{S}_{+}(t_r)\hat{S}_{-}(t_r)\hat{S}_{-}(t_r)\rangle}{\langle \Pi_e(t_r)\rangle^2}$$
(5A.10)

Or  $\hat{S}_{-}\hat{S}_{-} = |g\rangle\langle e|g\rangle\langle e|$ , qui est un opérateur identiquement nul : on a donc dans tous les cas  $g^{(2)}(0) = 0!$ 

L'interprétation physique de ce résultat est que lorsqu'on détecte un photon, on « prépare » l'atome dans l'état  $|g\rangle$ . Il est donc impossible de détecter **immédiatement** un second photon, car l'atome ne peut émettre que s'il est dans l'état  $|e\rangle$ . Ce phénomène ne peut pas être décrit par un champ classique, car le fait qu'un atome émet de la lumière « photon par photon » joue un rôle crucial.

## 5A.3 Corrélation d'intensité en fonction du dipôle émetteur

Dans le cas général, on définit :  $\hat{S}_+\hat{S}_- = |e\rangle\langle e| = \hat{\Pi}_e$  et on a donc :

$$g^{(2)}(\tau) = \langle \hat{S}_{+}(t_{r})\hat{\Pi}_{e}(t_{r}+\tau)\hat{S}_{-}(t_{r})\rangle / \langle \Pi_{e}(t_{r})\rangle^{2}$$
(5A.11)

Il faut donc calculer des valeurs moyennes de produit d'opérateurs, ce qui impose un retour aux équations de Heisenberg-Langevin. En utilisant la relation  $S_z = \Pi_e - 1/2$ , on a :

$$\frac{d}{dt}S_{-} = \left(-\frac{\Gamma}{2} + i\delta\right)S_{-} + i\Omega_{1}\left(\Pi_{e} - 1/2\right) + F_{-}(t)$$
(5A.12)

$$\frac{d}{dt}S_{+} = \left(-\frac{\Gamma}{2} - i\delta\right)S_{+} - i\Omega_{1}\left(\Pi_{e} - 1/2\right) + F_{+}(t)$$
(5A.13)

$$\frac{d}{dt}\Pi_{e} = -\Gamma \Pi_{e} + i\frac{\Omega_{1}}{2} \left(S_{-} - S_{+}\right) + F_{z}(t)$$
(5A.14)

où  $\delta = \omega_L - \omega_0$ , et où  $F_-(t)$ ,  $F_+(t)$  et  $F_z(t)$  sont les forces de Langevin de valeur moyenne nulle dans le vide.

Pour calculer la fonction de corrélation désirée, on écrit les équations de Heisenberg-Langevin à l'instant  $(t_r + \tau)$ , et on place tous les opérateurs en « sandwich » entre  $S_+(t_r)$  et  $S_-(t_r)$ . On obtient alors les trois quantités :

$$s_{\pm}(\tau) = \langle \hat{S}_{+}(t_r) \hat{S}_{\pm}(t_r + \tau) \hat{S}_{-}(t_r) \rangle, \qquad (5A.15)$$

$$\pi_e(\tau) = \langle \hat{S}_+(t_r)\hat{\Pi}_e(t_r+\tau)\hat{S}_-(t_r)\rangle$$
(5A.16)

qui obéissent aux équations ( en omettant les arguments  $\tau$ ) :

$$\frac{d}{d\tau}s_{-} = \left(-\frac{\Gamma}{2} + i\delta\right)s_{-} + i\Omega_{1}\left(\pi_{e} - \Pi_{e}^{st}/2\right)$$
(5A.17)

$$\frac{d}{d\tau}s_{+} = \left(-\frac{\Gamma}{2} - i\delta\right)s_{+} - i\Omega_{1}\left(\pi_{e} - \Pi_{e}^{st}/2\right)$$
(5A.18)

$$\frac{d}{d\tau}\pi_{e} = -\Gamma \pi_{e} + i\frac{\Omega_{1}}{2} (s_{-} - s_{+})$$
(5A.19)

où  $\Pi_e^{st} = \langle \hat{S}_+(t_r) \hat{1} \hat{S}_-(t_r) \rangle = \langle \Pi_e(t_r) \rangle$  est la valeur stationnaire de la population de l'état excité.

### Remarques :

\* tous les produits de la forme;  $\langle \hat{S}_+(t_r)\hat{F}_i(t_r+\tau)\hat{S}_-(t_r)\rangle$  entre les opérateurs atomiques à l'instant  $t_r$  et les forces de Langevin à l'instant  $(t_r + \tau)$  sont nuls car  $(t_r + \tau) > t_r$ (théorème de régression quantique).

\* les conditions initiales à utiliser sont :

$$\langle \hat{S}_{+}(t_{r})\hat{\Pi}_{e}(t_{r})\hat{S}_{-}(t_{r})\rangle = \langle \hat{S}_{+}(t_{r})\hat{S}_{+}(t_{r})\hat{S}_{-}(t_{r})\rangle = \langle \hat{S}_{+}(t_{r})\hat{S}_{-}(t_{r})\hat{S}_{-}(t_{r})\rangle = 0$$
(5A.20)

En effet la probabilité de détecter le deuxième photon est celle de trouver l'atome dans l'état excité, sachant qu'il est dans l'état fondamental à  $\tau = 0$ .

\* le comportement pour  $\tau \to \infty$  de ces équations est obtenu en annulant les dérivées (régime stationnaire). On obtient alors facilement :  $\pi_e(\infty) = (\Pi_e^{st})^2$  et par conséquent :  $g^{(2)}(\infty) = \pi_e(\infty)/(\Pi_e^{st})^2 = 1$ , ce qui est satisfaisant physiquement.

## 5A.4 Dégroupement de photons

La solution générale de ces équations est assez lourde, mais se simplifie un peu lorsque le laser est à résonance ( $\delta = 0$ ). Dans ce cas on a :

$$\frac{d}{d\tau}s_{-} = -\frac{\Gamma}{2}s_{-} + i\Omega_1 \left(\pi_e - \Pi_e^{st}/2\right)$$
(5A.21)

$$\frac{d}{d\tau}s_{+} = -\frac{\Gamma}{2}s_{+} - i\Omega_{1}\left(\pi_{e} - \Pi_{e}^{st}/2\right)$$
(5A.22)

$$\frac{d}{d\tau}\pi_e = -\Gamma \pi_e + i\frac{\Omega_1}{2} \left(s_- - s_+\right)$$
(5A.23)

qui permet d'obtenir en posant  $\kappa = \sqrt{(\frac{\Gamma}{4})^2 - \Omega_1^2}$ :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\pi_e(\tau)}{(\Pi_e^{st})^2} = 1 - e^{-3\Gamma\tau/4} \left(\cosh(\kappa\tau) + \frac{3\Gamma}{4\kappa}\sinh(\kappa\tau)\right) .$$
(5A.24)

On sait déjà que  $g^{(2)}(0) = 0$  et  $g^{(2)}(\infty) = 1$ , entre les deux le comportement est purement amorti à faible intensité  $(\Omega_1 < \Gamma/4)$ , et est oscillatoire amorti à forte intensité  $(\Omega_1 > \Gamma/4)$ : on retrouve donc des oscillations de Rabi, qui caractérisent la réponse transitoire du système atomique.

La première observation expérimentale de cet effet a été réalisée par H.J. Kimble, M. Dagenais et L. Mandel à l'Université de Rochester (USA) en 1976. Ces auteurs ont utilisé un jet atomique de sodium de très faible intensité, si bien qu'un seul atome à la fois était présent dans la zone d'observation. Néanmoins les observations étaient compliquées par le faible « temps de transit » de l'atome dans la zone d'observation.

Une amélioration importante a été obtenue par H. Walther et ses collaborateurs à l'Université de Munich (Allemagne) en 1987. Leur expérience utilise en effet un ion unique dans un piège électromagnétique : la durée d'observation est alors infinie à l'échelle de temps de l'expérience, et un très bon accord avec la théorie a été obtenu (voir figure).



FIG. 5A.1: Dégroupement de photons émis par un ion unique piégé. Ces figures sont extraites de « Non-classical radiation from a single stored ion », F. Diedrich et H. Walther, Phys. Rev. Lett. 58, 203 (1987).

## Complément 5B Traitement de la relaxation dans le formalisme de la matrice densité

## 5B.1 Position du problème

Supposons qu'un système atomique A dont l'état est décrit par une matrice densité  $\hat{\sigma}$  subisse de surcroît, à des instants aléatoires mais fréquents, de nombreuses collisions brèves et peu intenses<sup>1</sup> avec des systèmes  $B, C \dots X \dots$  L'effet moyen des collisions peut être décrit au moyen d'un opérateur de relaxation que l'on rajoutera à l'équation d'évolution de la matrice densité. Les termes de relaxation relatifs aux populations  $\sigma_{ii}$  s'écrivent :

$$\left\{\frac{d}{dt}\sigma_{ii}\right\}_{\text{relax}} = -\left(\sum_{j\neq i}\Gamma_{i\rightarrow j}\right)\sigma_{ii} + \sum_{j\neq i}\Gamma_{j\rightarrow i}\sigma_{jj}$$
(5B.1a)

Cette équation exprime que la population  $\sigma_{ii}$  de l'état *i* diminue par suite des transferts vers les autres états *j*, et croît par suite des transitions effectuées des autres états *j* vers l'état *i*. On notera que cette équation assure la conservation de la population totale  $\sum_i \sigma_{ii}$ .

Pour les éléments non-diagonaux  $\sigma_{ij} = \langle i | \hat{\sigma} | j \rangle$  (que l'on appelle *cohérences* car ils prennent en compte la phase relative des composantes relatives aux deux états  $|i\rangle$  et  $|j\rangle$ ), on écrit les termes de relaxation suivants :

$$\left\{\frac{d}{dt}\sigma_{ij}\right\}_{\text{relax}} = -\gamma_{ij}\sigma_{ij} \tag{5B.1b}$$

Notons que si les coefficients  $\Gamma_{i\to j}$  sont réels (et positifs), rien n'empêche les coefficients  $\gamma_{ij}$ d'être complexes (ils vérifient néanmoins la relation  $\gamma_{ij} = \gamma_{ji}^*$ ). Ces coefficients  $\Gamma_{i\to j}$  et  $\gamma_{ij}$ peuvent être calculés lorsque l'hamiltonien d'interaction entre le système A et son environnement est connu. Ici nous les considérerons comme des coefficients phénoménologiques qu'il est possible de déterminer expérimentalement.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Pour approfondir la théorie de la relaxation, voir par exemple CDG 2, Chapitre IV. Des équations de la forme (5B.1) peuvent, en particulier, être obtenues si le système évolue peu pendant la durée d'une collision.

Remarque : L'équation de relaxation des cohérences (5B.1.b) suppose implicitement que toutes les fréquences de Bohr du système sont différentes. Dans le cas où deux ou plusieurs fréquences de Bohr coïncideraient, il peut être nécessaire de rajouter à (5B.1.b) des termes couplant les cohérences associées à ces fréquences. Ces termes de transfert de cohérence sont importants chaque fois qu'une symétrie de l'hamiltonien entraîne l'égalité exacte de plusieurs fréquences de Bohr. Un exemple frappant est celui de l'oscillateur harmonique où les transferts de cohérence sous l'effet de la relaxation jouent un rôle essentiel dans la dynamique<sup>2</sup>.

## 5B.2 Systèmes à deux niveaux

Beaucoup de situations physiques peuvent être modélisées par un système quantique à deux niveaux<sup>3</sup>. Il est donc essentiel de savoir écrire l'effet de la relaxation dans un tel système. Nous décrirons successivement le cas d'un *système fermé* qui correspond à une situation où le niveau d'énergie le plus bas est le niveau fondamental stable, et le cas d'un *système ouvert* qui correspond à une situation où les deux niveaux sont des niveaux excités instables.

### a. Système fermé

Considérons un atome à deux niveaux, le niveau fondamental étant appelé a et le niveau excité b. Le cas où la seule cause de relaxation est l'émission spontanée a déjà été traité, et les équations de relaxation s'écrivent

$$\left\{\frac{d}{dt}\sigma_{bb}\right\}_{\rm relax} = -\Gamma_{\rm sp}\sigma_{bb} \tag{5B.2a}$$

$$\left\{\frac{d}{dt}\sigma_{aa}\right\}_{\rm relax} = +\Gamma_{\rm sp}\sigma_{bb} \tag{5B.2b}$$

où  $\Gamma_{\rm sp}^{-1}$  est la durée de vie radiative du niveau excité. L'équation (5B.2.a) décrit bien la décroissance exponentielle de la population du niveau excité avec une durée de vie  $\Gamma_{\rm sp}^{-1}$ . L'équation (5B.2.b) montre que tout atome quittant le niveau *b* aboutit nécessairement dans le niveau *a*. La somme des populations est donc constante : vis-à-vis de la relaxation, ce système à deux niveaux est fermé.

En ce qui concerne la cohérence  $\sigma_{ba}$  la relaxation s'écrit

$$\left\{\frac{d\sigma_{ba}}{dt}\right\}_{\rm relax} = -\gamma\sigma_{ba} \tag{5B.2c}$$

avec  $\gamma = \Gamma_{\rm sp}/2$  lorsque la relaxation est due exclusivement à l'émission spontanée.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Voir CDG 2, Complément B IV,§ 3.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>R.P. Feynmann, R. Sands, and R. Leighton, « Lectures on Physics », Vol. III, Chap. 11. Voir aussi CDL 1, Chapitre IV.



FIG. 5B.1: Système à deux niveaux fermé. La relaxation du niveau b aboutit nécessairement au niveau inférieur a. La somme des populations des deux niveaux est constante.

Remarque : Il arrive souvent que l'émission spontanée ne soit pas la cause unique de relaxation. Nous avons déjà cité un autre phénomène rencontré dans les vapeurs atomiques, la relaxation collisionnelle. Considérons des atomes à deux niveaux interagissant avec des atomes perturbateurs. Il peut arriver que les collisions induisent des transferts de population b vers a (« quenching ») ou de a vers b (excitation collisionnelle) mais ces processus sont fréquemment négligeables devant l'émission spontanée de sorte que la relaxation des populations reste correctement décrite par les équations (5B.2.a) et (5B.2.b). En revanche, l'évolution des cohérences peut être fortement perturbée parce que durant chaque collision la fréquence de Bohr  $\omega_{ba}$  change, par suite de l'effet du potentiel d'interaction entre l'atome et le perturbateur. Ces collisions appelées collisions déphasantes conduisent à un terme supplémentaire dans le taux de relaxation de la cohérence, qui s'écrit :

$$\gamma = \frac{\Gamma_{\rm sp}}{2} + \gamma_{\rm coll} \tag{5B.3a}$$

Le premier terme  $\Gamma_{\rm sp}/2$  est relatif à l'émission spontanée, tandis que  $\gamma_{\rm coll}$  est associé aux collisions. Ce dernier terme est proportionnel au nombre d'atomes perturbateur par unité de volume  $\frac{N}{V}$ , et à leur vitesse v

$$\gamma_{\rm coll} = \frac{N}{V} \sigma_{\rm coll} \, v \tag{5B.3b}$$

Pour un potentiel d'interaction donné, la section efficace de collisions déphasantes  $\sigma_{\rm coll}$  (ne pas faire de confusion avec un élément de la matrice densité!) ne dépend que de la température, et le taux de relaxation collisionnelle varie donc proportionnellement à la pression, à température fixée.

### b. Système ouvert

Supposons à présent que les deux niveaux b et a sont deux niveaux excités, le niveau a ayant une énergie inférieure au niveau b. La relaxation des populations de ces niveaux s'écrit :

$$\left\{\frac{d}{dt}\sigma_{bb}\right\} = -\Gamma_b\sigma_{bb} \tag{5B.4a}$$

$$\left\{\frac{d}{dt}\sigma_{aa}\right\}_{\text{relax}} = -\Gamma_a\sigma_{aa} + \Gamma_{b\to a}\sigma_{bb}$$
(5B.4b)

Dans ces équations,  $\Gamma_a^{-1}$  et  $\Gamma_b^{-1}$  sont les durées de vie des niveaux a et b, et  $\Gamma_{b\to a}$  décrit la retombée du niveau b au niveau a (que nous supposerons due à l'émission spontanée). L'évolution de la cohérence  $\sigma_{ba}$  s'écrit

$$\left\{\frac{d}{dt}\sigma_{ba}\right\}_{\text{relax}} = -\gamma\sigma_{ba} \tag{5B.5a}$$

avec, dans le cas d'une relaxation due exclusivement à l'émission spontanée

$$\gamma = \gamma_{\rm sp} = \left(\frac{\Gamma_b^{\rm sp}}{2} + \frac{\Gamma_a^{\rm sp}}{2}\right) \tag{5B.5b}$$

Contrairement aux équations (5B.2) qui conservent la population globale (et qui sont donc compatibles avec la condition  $Tr\hat{\sigma} = 1$ ), les équations (5B.4.a) conduisent à une variation de la population totale des niveaux a et b avec le temps. Un tel système physique apparaît donc comme un sous-système d'un ensemble plus vaste (d'où le nom de système ouvert). On doit donc considéré que les niveaux excités a et b peuvent se vider vers un niveau fondamental f, à partir duquel ils pouvaient aussi être alimentés par un mécanisme de pompage. Nous supposerons que ce pompage, qui peut être produit par un bombardement électronique, par une source lumineuse annexe, est décrit par les équations d'alimentation suivantes :

$$\left\{\frac{d}{dt}\sigma_{bb}\right\}_{\text{alim}} = \tilde{\Lambda}_b \sigma_{ff} \tag{5B.6a}$$

$$\left\{\frac{d}{dt}\sigma_{aa}\right\}_{\text{alim}} = \tilde{\Lambda}_a \sigma_{ff} \tag{5B.6b}$$

Dans la pratique, les taux d'alimentation<sup>4</sup>  $\Lambda_a$  et  $\Lambda_b$  sont généralement petits devant  $\Gamma_a$  et  $\Gamma_b$  de sorte que les populations dans les niveaux excités restent très petites devant la population du niveau fondamental. On a donc  $\sigma_{ff} \approx 1$ , ce qui permet de remplacer les équations (5B.6.a) par les expressions approchées

$$\left\{\frac{d}{dt}\sigma_{bb}\right\}_{\text{alim}} \approx \tilde{\Lambda}_b \tag{5B.7a}$$

$$\left\{\frac{d}{dt}\sigma_{aa}\right\}_{\rm alim} \approx \tilde{\Lambda}_a \tag{5B.7b}$$

En revanche, le pompage ne crée généralement pas de cohérence entre deux niveaux électroniques différents, de sorte qu'il n'y a pas pour  $\sigma_{ba}$  de terme source dû au pompage.

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>Les taux d'alimentation  $\tilde{\Lambda}_a$  et  $\tilde{\Lambda}_b$  introduits ici sont relatifs à un seul atome. Ils sont reliés aux taux d'alimentation  $\Lambda_i$  relatifs à une assemblée de N atomes par  $\Lambda_i = N\tilde{\Lambda}_i$ .



FIG. 5B.2: Système à deux niveaux ouvert. Les deux niveaux a et b peuvent se désexciter vers un ou plusieurs niveaux d'énergie inférieure. Ils peuvent également être alimentés à partir de l'extérieur. La somme des populations des deux niveaux a et b n'est pas constante.

## Complément 5C Traitement perturbatif de la matrice densité

# 5C.1 Résolution par itération de l'équation d'évolution de la matrice densité

### a. Présentation du problème

Le but de cette partie est de généraliser au cas de la matrice densité la méthode des perturbations dépendant du temps, connue pour l'évolution des vecteurs d'état. Nous supposerons donc que l'hamiltonien se décompose en un terme principal  $\hat{H}_0$  et un hamiltonien de perturbation  $\hat{H}_1(t)$ .

L'hamiltonien  $\hat{H}_0$  indépendant du temps a pour états propres les états  $|n\rangle$  d'énergie  $E_n$ . Pour faire ressortir les différents ordres du développement en série de perturbations, le terme de perturbation  $\hat{H}_1(t)$  sera écrit sous la forme  $\lambda \hat{H}'_1(t)$ , le paramètre réel  $\lambda$  étant supposé très petit alors que  $\hat{H}'_1(t)$  est de l'ordre de  $\hat{H}_0$ .

L'équation d'évolution de la matrice densité est de la forme :

$$\frac{d\hat{\sigma}}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}_0 + \hat{H}_1(t), \hat{\sigma}] + \left\{ \frac{d\hat{\sigma}}{dt} \right\}$$
(5C.1)

Le premier terme est le commutateur traduisant l'évolution hamiltonienne. Le terme  $\{\frac{d\hat{\sigma}}{dt}\}$  est la somme des termes de relaxation et de pompage relatifs aux populations et aux cohérences. Utilisons la notation  $\hat{H}_1(t) = \lambda \hat{H}'_1(t)$  dans l'équation (5C.1)

$$\frac{d\hat{\sigma}}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}_0, \hat{\sigma}] + \left\{ \frac{d\hat{\sigma}}{dt} \right\} + \frac{\lambda}{i\hbar} [\hat{H}'_1(t), \hat{\sigma}]$$
(5C.2)

et introduisons le développement suivant de  $\hat{\sigma}$  :

$$\hat{\sigma} = \hat{\sigma}^{(0)} + \lambda \hat{\sigma}^{(1)} + \lambda^2 \hat{\sigma}^{(2)} + \dots$$
 (5C.3)

En reportant (5C.3) dans (5C.2) et en identifiant les termes de même ordre en  $\lambda$ , nous trouvons

– à l'ordre 0

$$\frac{d\hat{\sigma}^{(0)}}{dt} - \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}_0, \hat{\sigma}^{(0)}] - \left\{ \frac{d\hat{\sigma}^{(0)}}{dt} \right\} = 0$$
(5C.4a)

– à l'ordre 1

$$\frac{d\hat{\sigma}^{(1)}}{dt} - \frac{1}{i\hbar}[\hat{H}_0, \hat{\sigma}^{(1)}] - \left\{\frac{d\hat{\sigma}^{(1)}}{dt}\right\} = \frac{1}{i\hbar}[\hat{H}'_1(t), \hat{\sigma}^{(0)}]$$
(5C.4b)

– à l'ordre r

$$\frac{d\hat{\sigma}^{(r)}}{dt} - \frac{1}{i\hbar}[\hat{H}_0, \hat{\sigma}^{(r)}] - \left\{\frac{d\hat{\sigma}^{(r)}}{dt}\right\} = \frac{1}{i\hbar}[\hat{H}_1'(t), \hat{\sigma}^{(r-1)}]$$
(5C.4c)

### b. Solution à l'ordre 0

À l'ordre 0, et dans la base des états propres de  $\hat{H}_0$ , les équations (5C.4.a) pour les populations  $\sigma_{jj}^{(0)}$  se ramènent aux équations de relaxation (5B.1.a). Les solutions stationnaires de ces équations donnent les populations des divers états en l'absence de perturbation. (En particulier, pour un système à l'équilibre thermodynamique, les coefficients  $\Gamma_{i\to j}$  sont tels que les populations  $\sigma_{jj}^{(0)}$  correspondent à une distribution de Boltzmann.)

Quant à la cohérence  $\sigma_{ik}^{(0)}$ , elle est, d'après (5C.4.a) et (5B.1.b), solution de l'équation

$$\frac{d}{dt}\sigma_{jk}^{(0)} + i\omega_{jk}\sigma_{jk}^{(0)} + \gamma_{jk}\sigma_{jk}^{(0)} = 0$$
(5C.5)

où on a introduit la fréquence de Bohr pour la transition  $j \to k$ :

$$\omega_{jk} = (E_j - E_k)/\hbar$$

Si toutes les cohérences  $\sigma_{jk}^{(0)}(t)$  sont nulles à l'instant initial, elles le restent au cours du temps. Si ce n'est pas le cas, elles présentent des oscillations amorties avec des constantes de temps égales à  $(Re\{\gamma_{jk}\})^{(-1)}$  (où  $Re\{\}$  signifie « partie réelle de »).

Nous supposerons dans la suite que  $\hat{\sigma}^{(0)}$  a atteint le régime stationnaire avant l'application de  $\hat{H}_1(t)$  de sorte que les seuls termes non-nuls de  $\hat{\sigma}^{(0)}$  sont les populations  $\sigma_{jj}^{(0)}$ . L'état initial du système est déterminé par la donnée de ces populations que nous supposerons connues.

### c. Solution à l'ordre 1

Appliquons d'abord l'équation (5C.4.b) au cas des populations. Il vient

$$\frac{d}{dt}\sigma_{jj}^{(1)} - \left\{\frac{d\sigma_{jj}^{(1)}}{dt}\right\} = \frac{1}{i\hbar}\sum_{\ell} [\langle j|\hat{H}_{1}'(t)|\ell\rangle\sigma_{\ell j}^{(0)} - \sigma_{j\ell}^{(0)}\langle\ell|\hat{H}_{1}'(t)|j\rangle]$$
(5C.6)

Le terme relatif à  $\ell = j$  dans le second membre de (5C.6) est nul, les deux termes se compensant. Les autres termes sont également nuls puisque toutes les cohérences d'ordre 0  $\sigma_{\ell j}^{(0)}$  sont nulles. Le second membre de l'équation (5C.6) est donc nul. Il s'ensuit qu'en régime permanent, la solution de l'équation (5C.6) est simplement

$$\sigma_{jj}^{(1)}(t) = 0 \tag{5C.7}$$

À l'ordre 1, les populations n'évoluent pas.

Considérons maintenant les cohérences. En utilisant les équations (5C.4.b) et (5B.1.b), et compte-tenu de la nullité des cohérences à l'ordre 0, nous trouvons :

$$\frac{d}{dt}\sigma_{jk}^{(1)} + i\omega_{jk}\sigma_{jk}^{(1)} + \gamma_{jk}\sigma_{j}^{(1)}k = \frac{1}{i\hbar}\langle j|\hat{H}_{1}'(t)|k\rangle(\sigma_{kk}^{(0)} - \sigma_{jj}^{(0)})$$
(5C.8)

La solution de cette équation vérifiant la condition initiale  $\sigma_{jk}^{(1)}(t_0) = 0$  est

$$\sigma_{jk}^{(1)}(t) = \frac{\sigma_{kk}^{(0)} - \sigma_{jj}^{(0)}}{i\hbar} \int_{t_0}^t e^{-(i\omega_{jk} + \gamma_{jk})(t - t')} \langle j|\hat{H}_1'(t')|k\rangle dt'$$
(5C.9)

Rappelons que le terme d'ordre 1 de la série de perturbations (5C.3) est  $\lambda \hat{\sigma}^{(1)}$ . Les corrections au premier ordre à la matrice densité  $\hat{\sigma}^{(0)}$  sont donc

$$\lambda \sigma_{jj}^{(1)}(t) = 0 \tag{5C.10a}$$

$$\lambda \sigma_{jk}^{(1)}(t) = \frac{\sigma_{kk}^{(0)} - \sigma_{jj}^{(0)}}{i\hbar} \int_{t_0}^t e^{-(i\omega_{jk} + \gamma_{jk})(t - t')} \langle j | \hat{H}_1(t') | k \rangle dt'$$
(5C.10b)

### d. Perturbation aux ordres supérieurs

Pour obtenir les termes suivants du développement (5C.3), il suffit de résoudre successivement les équations (5C.4.c) pour des r croissants. Ainsi partant des valeurs au premier ordre (5C.7) pour les populations et (5C.9) pour les cohérences, nous obtenons les populations et les cohérences au second ordre. Partant de ces valeurs à l'ordre 2, il est possible de trouver les termes d'ordre 3 etc...

*Remarque :* Aux ordres supérieurs à 1, les termes relatifs aux populations et aux cohérences sont en général simultanément non-nuls.

## 5C.2 Atome interagissant avec un champ oscillant : réponse linéaire

#### a. Perturbation sinusoïdale

Nous reprenons dans cette partie l'étude d'un atome décrit par un hamiltonien  $\hat{H}_0$ (indépendant du temps) et interagissant avec le champ électrique oscillant d'une onde électromagnétique. L'hamiltonien d'interaction  $\hat{H}_1(t)$  est de la forme  $\hat{W} \cos \omega t$  avec  $\hat{W} = -\hat{\mathbf{D}}.\mathbf{E}$ . En portant cette expression dans la formule (5C.10.b), nous trouvons en régime permanent (c'est-à-dire pour  $t - t_0 \gg 1/\gamma_{jk}$ ) :

$$\lambda \sigma_{jk}^{(1)}(t) = \frac{\sigma_{kk}^{(0)} - \sigma_{jj}^{(0)}}{2i\hbar} W_{jk} \left[ \frac{e^{-i\omega t}}{i(\omega_{jk} - \omega) + \gamma_{jk}} + \frac{e^{i\omega t}}{i(\omega_{jk} + \omega) + \gamma_{jk}} \right]$$
(5C.11)

Dans le cas d'une excitation quasi-résonnante (voir Chapitre I, §B.4.d), un des dénominateurs d'énergie est beaucoup plus petit que l'autre. Plaçons nous par exemple dans le cas où  $\omega_{jk}$  est positif (niveau j au dessus de k), et supposons que

$$|\omega_{jk} - \omega|, |\gamma_{jk}| \ll |\omega_{jk} + \omega| \tag{5C.12a}$$

Il est alors possible de négliger le terme anti-résonnant de la formule (5C.11) qui prend la forme simplifiée

$$\lambda \sigma_{jk}^{(1)}(t) \approx \frac{\sigma_{kk}^{(1)} - \sigma_{jj}^{(0)}}{2i\hbar} W_{jk} \frac{e^{-i\omega t}}{\gamma_{jk} + i(\omega_{jk} - \omega)}$$
(5C.12b)

Les résultats (5C.11) et (5C.12.a), à l'ordre 1 en  $W_{jk}$  (qui est proportionnel au champ électrique), donnent la réponse linéaire de l'atome.

### b. Valeur moyenne du dipôle électrique. Susceptibilité linéaire

La connaissance de la matrice densité permet de calculer la valeur moyenne du dipôle électrique

$$\langle \hat{\mathbf{D}} \rangle = Tr(\hat{\sigma}\hat{\mathbf{D}})$$
 (5C.13)

Pour un atome isolé, les éléments de matrice diagonaux  $\mathbf{D}_{ii}$  sont nuls à cause de l'invariance de l'hamiltonien  $\hat{H}_0$  par réflexion d'espace, de sorte que seules les cohérences  $\sigma_{jk}$ apparaissent dans le développement (5C.13) :

$$\langle \hat{\mathbf{D}} \rangle = \sum_{j,k} \sigma_{jk} \mathbf{D}_{\mathbf{kj}}$$
 (5C.14)

Comme le premier terme non-nul de la série de perturbations pour les cohérences est d'ordre 1, nous en déduisons que le dipôle électrique à l'ordre le plus bas est  $\langle \hat{\mathbf{D}}^{(1)} \rangle$ , et qu'il est linéaire en champ **E**. Il est égal à

$$\langle \hat{\mathbf{D}}^{(1)} \rangle = \sum_{j,k} \sigma_{jk}^{(1)} \mathbf{D}_{\mathbf{kj}}$$
(5C.15)

Nous supposons à présent pour simplifier que le champ  $\mathbf{E}$  est parallèle à Oz, et que l'état initial – et donc  $\sigma^{(0)}$  – est invariant par rotation. Pour des raisons de symétrie le dipôle atomique induit est parallèle à Oz. Nous omettrons désormais la notation vectorielle sachant que les résultats sont relatifs à la composante de  $\mathbf{D}$  le long de l'axe Oz. En regroupant les termes relatifs à  $\sigma_{jk}^{(1)}$ , nous trouvons, à partir de (5C.11) et (5C.15) (et en supposant pour simplifier les taux de relaxation  $\gamma_{jk}$  réels) :

$$\langle \hat{D}^{(1)} \rangle = \sum_{j>k} \frac{\sigma_{kk}^{(0)} - \sigma_{jj}^{(0)}}{\hbar} (-D_{jk}E) D_{kj} \left\{ \left( \frac{\omega - \omega_{jk}}{(\omega - \omega_{jk})^2 + \gamma_{jk}^2} - \frac{\omega + \omega_{jk}}{(\omega + \omega_{jk})^2 + \gamma_{jk}^2} \right) \cos \omega t + \left( \frac{\gamma_{jk}}{(\omega + \omega_{jk})^2 + \gamma_{jk}^2} - \frac{\gamma_{jk}}{(\omega - \omega_{jk})^2 + \gamma_{jk}^2} \right) \sin \omega t \right\}$$

$$(5C.16)$$

Remarques :

(i) Nous avons supposé que  $\gamma_{jk}$  est réel pour écrire la formule (5C.16). Si  $\gamma_{jk}$  a une composante réelle  $\gamma'_{jk}$  et une composante imaginaire  $i\gamma''_{jk}$ , il faut dans la formule (5C.16) remplacer  $\gamma_{jk}$  par  $\gamma'_{jk}$  et  $\omega_{jk}$  par  $\omega_{jk} + \gamma''_{jk}$ . Le centre de la résonance est dans ce cas déplacé par les interactions provoquant la relaxation.

(ii) L'écriture de la formule (5C.16) suppose implicitement que la relaxation peut être décrite par les mêmes coefficients  $\gamma_{jk}$  quel que soit l'écart à résonance. Ceci implique que les courbes relatives à la composante en quadrature du dipôle électrique (terme en sin  $\omega t$  dans (5C.16)), sont des lorentziennes pour toute valeur de  $|\omega_{jk} - \omega|$  ce qui n'est pas vrai en toute généralité. La forme lorentzienne est exacte dans un certain domaine au voisinage de la résonance, généralement très grand comparé à  $\gamma_{jk}$ , mais néanmoins limité à un intervalle plus ou moins vaste selon le mécanisme de relaxation<sup>1</sup>. En utilisant la définition (D.17.a, D.17.b, D.17.c) du chapitre II, il est possible d'exprimer le résultat de la formule (5C.16) en faisant apparaître les parties réelle  $\chi'$  et imaginaire  $\chi''$  de la susceptibilité. Nous noterons N/V le nombre total d'atomes par unité de volume et  $N_k^{(0)} = N\sigma_{kk}^{(0)}$  le nombre d'atomes par unité de volume dans l'état  $|k\rangle$  en absence de champ électromagnétique. Dans le cas d'une excitation quasi-résonnante ( $\omega$  voisin de  $\omega_{jk}$ , cf. Éq. (5C.12.a)), on trouve

$$\chi' = \frac{N_k^{(0)} - N_j^{(0)}}{V} \frac{|D_{jk}|^2}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{(\omega_{jk} - \omega)}{(\omega_{jk} - \omega)^2 + \gamma_{jk}^2}$$
(5C.17)

$$\chi'' = \frac{N_k^{(0)} - N_j^{(0)}}{V} \frac{|D_{jk}|^2}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{\gamma_{jk}}{(\omega_{jk} - \omega)^2 + \gamma_{jk}^2}$$
(5C.18)

Le formalisme développé ici permet par exemple d'expliquer l'obtention d'une *inversion de population* dans de nombreux milieux amplificateurs. Cette inversion repose souvent sur une *différence entre taux de relaxation*, dont le traitement théorique relève du formalisme présenté ici.

### c. Lien avec la théorie classique

Les résultats ci-dessus ont un équivalent en physique classique : autour d'une résonance  $\omega_{jk}$ , les formules (5C.17) et (5C.18) sont l'analogue des formules relatives à un électron élastiquement lié (cf. §5 du complément I.1) de fréquence de résonance égale à  $\omega_{jk}$ .

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Pour plus de détails, voir CDG 2, Complément B.VI.

Loin de résonance, il faut revenir au résultat (5C.16) mettant en jeu toutes les transitions atomiques. Mais il est alors possible de négliger  $\gamma_{jk}$  devant  $|\omega - \omega_{jk}|$  et  $|\omega + \omega_{jk}|$ de sorte que la partie imaginaire de la susceptibilité  $\chi''$  est négligeable, et que sa partie réelle  $\chi'$  vaut

$$\chi' = \sum_{j>k} \frac{N_k^{(0)} - N_j^{(0)}}{V} \frac{|D_{jk}|^2}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{2\omega_{jk}}{(\omega_{jk}^2 - \omega^2)}$$
(5C.19)

Ce résultat peut être réexprimé à l'aide des forces d'oscillateur  $f_{kj}$  (qui sont des quantités sans dimension)

$$f_{kj} = \frac{2m\omega_{jk}}{\hbar q^2} |D_{jk}|^2 \tag{5C.20}$$

(m et q étant la masse et la charge de l'électron). Nous obtenons ainsi :

$$\chi' = \sum_{j>k} \frac{N_k^{(0)} - N_J^{(0)}}{V} \frac{q^2}{m\varepsilon_0} \frac{f_{kj}}{(\omega_{jk}^2 - \omega^2)}$$
(5C.21)

En particulier dans la situation habituelle où le seul niveau peuplé est le niveau fondamental, que nous appelons ici a, nous pouvons remplacer tous les  $N_j^{(0)}$  par 0, sauf  $N_a^{(0)}$  qui est égal à N. La susceptibilité est alors égale à :

$$\chi' = \sum_{j} \frac{N}{V} \frac{q^2}{m\varepsilon_0} \frac{f_{aj}}{(\omega_{ja}^2 - \omega^2)}$$
(5C.22)

La formule (5C.22) apparaît comme l'équivalent quantique du résultat obtenu classiquement en utilisant le modèle de l'électron élastiquement lié :

$$\chi_{\rm cl}' = \frac{N}{V} \frac{q^2}{m\varepsilon_0} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2)}$$
(5C.23)

Dans cette expression,  $\omega_0$  est la pulsation de l'oscillation libre de l'électron.

L'analogie entre les formules (5C.22) et (5C.23) est d'autant plus frappante que les forces d'oscillateur vérifient la relation suivante (appelée relation de Reiche-Thomas-Kuhn) :

$$\sum_{j} f_{aj} = 1 \tag{5C.24}$$

Le résultat (5C.22) correspond, en quelque sorte, à une situation où l'oscillateur classique aurait plusieurs fréquences de résonance, chacune ayant un poids  $f_{aj}$ . En fait, les formules (5C.22) et (5C.24) ont été introduites empiriquement, à partir des résultats expérimentaux, avant l'avènement de la mécanique quantique. Ce fut d'ailleurs un des premiers succès de cette théorie d'expliquer rigoureusement l'origine de ces formules<sup>2</sup>.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>A. Sommerfeld, Optics, Academic Press, New-York (1954).

## Chapitre 6

## Optique non-linéaire

## 6.1 Introduction

En 1961, quelques mois après l'invention du laser à Rubis par Maiman, Franken focalise les impulsions émises par son laser à rubis, de longueur d'onde 694 nm, sur une lame de quartz, et il examine à l'aide d'un simple prisme le spectre de la lumière transmise (fig. 6.1). Il découvre alors qu'est apparue de la lumière ultra-violette, de longueur d'onde 347 nm. Manifestement, en se propageant à l'intérieur du quartz, la lumière de fréquence  $\omega$  a provoqué l'apparition du second harmonique, de fréquence  $2\omega$ .



FIG. 6.1: Expérience de Franken. L'impulsion laser focalisée dans le quartz donne lieu à l'apparition de lumière à fréquence double.

Il est donc clair qu'en optique comme dans le reste de la physique, un système soumis à une excitation sinusoïdale suffisamment intense sort du régime de la réponse linéaire : les non-linéarités entraînent l'apparition des harmoniques de la fréquence d'excitation.

Quelle intensité faut-il atteindre pour voir apparaître des effets non-linéaires? On pourrait penser qu'une échelle naturelle est le champ électrique du noyau à l'emplacement d'un électron atomique : dans le cas de l'atome d'hydrogène dans son état fondamental, ce champ vaut environ  $e/4\pi\varepsilon_0 a_0^2$ , soit  $3 \times 10^{11}$  V/m (e est la charge de l'électron, et  $a_0$  le rayon de Bohr, de l'ordre de  $5 \times 10^{-11}$  m). En fait, l'expérience montre que dans la zone de transparence d'un matériau électrique tel que le quartz, il suffit d'un champ de  $10^7$  V/m (correspondant à une intensité lumineuse de 2,5 kW/cm<sup>2</sup>) pour voir les effets non-linéaires se manifester de façon perturbative. Si on s'approche des résonances électroniques, des intensités encore plus faibles, de l'ordre du mW/cm<sup>2</sup>, font entrer dans le régime de saturation qui est un régime non-linéaire (cf. Optique Quantique I, chapitre II et § 6A.1.1 du complément VI.1 de ce chapitre).

Comment traiter la réponse non-linéaire de la matière? En principe, il faudrait utiliser le traitement quantique mis en place au chapitre II. En pratique, une approche semiclassique, dans laquelle le rayonnement est traité classiquement, permet de rendre compte de nombreux phénomènes importants de l'optique non-linéaire. C'est cette approche que nous suivrons dans les parties 6.2 et 6.3, où nous verrons comment un terme non-linéaire d'ordre 2 permet de coupler trois ondes de fréquences  $\omega_1, \omega_2$  et  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ . Il existe cependant des phénomènes très importants, par exemple la fluorescence paramétrique, qu'on ne peut décrire correctement par le formalisme semi-classique. Dans la partie 6.4, nous aurons donc recours au formalisme de l'optique quantique, pour décrire l'un des phénomènes fascinants de l'optique quantique : la création de paires de photons corrélés intriqués.

## 6.2 Champ électromagnétique dans un milieu nonlinéaire : traitement semi-classique

### 6.2.1 Susceptibilité linéaire

On sait (voir par exemple Optique Quantique I, chapitre 2) que la propagation d'une onde électromagnétique dans la matière est affectée par la polarisation diélectrique induite par le champ électrique de l'onde. La polarisation diélectrique  $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$  au voisinage du point  $\mathbf{r}$  (dipôle induit par unité de volume) est évidemment reliée au champ électrique au point  $\mathbf{r}$ , et c'est la susceptibilité diélectrique qui caractérise cette relation. Pour la calculer, il faut déterminer le mouvement des charges de la matière sous l'effet du champ classique monochromatique

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \vec{\boldsymbol{\varepsilon}} \mathcal{E}(\mathbf{r},\omega) e^{-i\omega t} + \text{c.c.}$$
(6.1)

Ce calcul utilise une description quantique de la matière. Si on considère un objet polarisable (atome dans une vapeur, ion, atome ou molécule dans un solide) caractérisé par un opérateur dipôle électrique  $\hat{\mathbf{D}}$ , il atteint sous l'effet du champ  $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$  un régime forcé caractérisé par une matrice densité  $\hat{\sigma}_{\rm st}(\mathbf{r},t)$ , et son dipôle prend la valeur moyenne

$$\langle \hat{\mathbf{D}} \rangle(\mathbf{r}, t) = \text{Tr} \left( \sigma_{\text{st}}(\mathbf{r}, t) \hat{\mathbf{D}} \right).$$
 (6.2)

Pour une densité N/V (nombre d'atomes par unité de volume), au point **r**, la polarisation diélectrique vaut

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \frac{N}{V} \langle \mathbf{D} \rangle(\mathbf{r},t) .$$
(6.3)

Sous l'effet d'une excitation sinusoïdale de fréquence  $\omega$ , le régime forcé est périodique, de période  $2\pi/T$ . Si le champ électrique est suffisamment faible, on est en régime de réponse linéaire,  $\mathbf{P}(\mathbf{r},t)$  est sinusoïdale, et on peut l'écrire sous une forme analogue à (6.1). On définit ainsi la susceptibilité linéaire complexe  $\chi^{(1)}(\omega)$  telle que

$$\mathcal{P}(\mathbf{r},\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \mathcal{E}(\mathbf{r},\omega) . \qquad (6.4)$$

Pour un milieu transparent,  $\chi^{(1)}(\omega)$  est réel, et on peut, en première approximation, négliger la dépendance en fréquence (dispersion de l'indice de réfraction). On a alors une relation de proportionnalité

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}(\mathbf{r},t) .$$
(6.5)

Si le milieu n'est pas isotrope, la polarisation diélectrique n'est a priori pas parallèle au champ électrique. La susceptibilité est dans ce cas un tenseur de rang 2, qui s'exprime sous forme d'une matrice  $3 \times 3$ , et la relation (6.5) est remplacée par

$$P_i(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j(\mathbf{r}, t)$$
(6.6)

où  $P_i$  et  $E_j$  sont les composantes cartésiennes des vecteurs **P** et **E**, et les indices i et j prennent les valeurs (x, y, z).

### 6.2.2 Susceptibilité non-linéaire

Lorsque le champ électrique devient de plus en plus fort, on entre dans le régime nonlinéaire, que l'on peut décrire en généralisant les relations du paragraphe 6.2.1. Ainsi, pour un matériau transparent, et en négligeant la dispersion, (6.6) se généralise en

$$P_i = \varepsilon_0 \sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j + \varepsilon_0 \sum_j \sum_k \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \varepsilon_0 \sum_j \sum_k \sum_\ell \chi_{ijk\ell}^{(3)} E_j E_k E_\ell + \dots$$
(6.7)

où  $[\chi_{ijk}^{(2)}]$  est un tenseur réel de rang 3 (matrice à 3 indices, et 27 composantes) qui caractérise la susceptibilité non-linéaire du deuxième ordre; de même  $\chi_{ijk\ell}^{(3)}$ , susceptibilité non-linéaire du 3<sup>ème</sup> ordre, est un tenseur de rang 4, etc... Pour les intensités accessibles avec les lasers usuels, (6.7) se présente le plus souvent comme un développement dont les termes successifs sont de plus en plus petits, et on se limite au terme du second ordre sauf lorsque  $\chi^{(2)}$  est nul (voir ci-dessous) : dans ce cas, on prend en compte le terme du troisième ordre, en  $\chi^{(3)}$ .

L'aspect tensoriel de la polarisation non-linéaire, illustré par l'équation (6.7), peut donner lieu à une grande richesse de phénomènes. Toutefois, on s'intéressera dans ce cours le plus souvent à une seule composante cartésienne de la polarisation non-linéaire, elle-même induite par un champ polarisé linéairement. Cette simplification peut résulter de la symétrie du problème ou bien de la condition d'accord de phase (voir plus bas). On omettra donc les indices cartésiens des composantes du champ électrique ou de la polarisation induite, ainsi que les indices tensoriels de l'unique composante pertinente de la susceptibilité non-linéaire.

Considérons maintenant le cas où le matériau est soumis à la superposition de deux champs monochromatiques de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$ . Le champ total s'écrit alors  $E(t) = E_1(t) + E_2(t)$  où

$$E_1(t) = \mathcal{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \text{c.c.}$$
(6.8a)

$$E_2(t) = \mathcal{E}_2 e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.}$$
 (6.8b)

La polarisation non-linéaire du second ordre s'écrit alors

$$P^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E(t)^2 = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \Big( \mathcal{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \text{c.c.} + \mathcal{E}_2 e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.} \Big)^2$$
(6.9)

soit

$$P^{(2)}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \Big( \mathcal{E}_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + \text{c.c.} + \mathcal{E}_2^2 e^{-2i\omega_2 t} + \text{c.c.} + 2|\mathcal{E}_1|^2 + 2|\mathcal{E}_2|^2 + 2\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + \text{c.c.} + 2\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} + \text{c.c.} \Big)$$
(6.10)

L'équation ci-dessus montre de nombreux processus non-linéaires comme par exemple la génération de second harmonique (termes oscillant à deux fois la fréquence des champs appliqués) ou encore l'addition de fréquences où l'onde de fréquence  $\omega_1$  se mélange à celle de fréquence  $\omega_2$  pour produire une polarisation à la fréquence  $\omega_1 + \omega_2$ . Lorsqu'on se rapproche des résonances du système, on ne peut plus ignorer la dépendance en fréquence de la susceptibilité ni le déphasage entre la polarisation non-linéaire et le champ électrique, ce que l'on traduit par une susceptibilité complexe dépendant de la fréquence. Ainsi, pour le terme d'addition entre les fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$ , on remplacera  $\chi^{(2)}$  par la notation  $\chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2)$ . Par convention, le premier des trois arguments est toujours égal à l'opposé de la somme des deux autres et correspond donc, au signe près, à la fréquence produite dans la polarisation non-linéaire. Les différents termes contribuant à la polarisation non-linéaire sont reproduits dans le tableau 6.1.

On peut remarquer que certains termes, comme l'addition de fréquences, font apparaître un facteur 2. Celui-ci résulte tout simplement du double produit apparaissant dans le développement du carré du champ électrique total. Ce facteur 2 est une source de confusion dans la littérature car de nombreux auteurs incorporent le facteur 2 dans la définition du  $\chi^{(2)}$ . Cette définition, que nous n'utiliserons pas ici, présente l'inconvénient de faire apparaître une singularité dans la susceptibilité lorsque deux fréquences sont égales, singularité purement mathématique sans contre-partie physique<sup>1</sup>.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Cette question est discutée clairement dans l'ouvrage de R. Shen (paragraphe 9 du chapitre 2) : Y.R. Shen, *Principles of nonlinear optics*, Wiley-Interscience (1984). On pourra également consulter l'ouvrage de P.N. Butcher et D. Cotter (paragraphe 2.3.3) : *The elements of nonlinear optics*, Cambridge studies in modern physics (1990).

$\chi^{(2)}(-2\omega_1;\omega_1,\omega_1)$	$\left(\mathcal{E}_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + \text{c.c.}\right)$	doublage de fréquence
$\chi^{(2)}(-2\omega_2;\omega_2,\omega_2)$	$\left(\mathcal{E}_2^2 e^{-2i\omega_2 t} + \text{c.c.}\right)$	doublage de fréquence
$2\chi^{(2)}(0;\omega_1,-\omega_1)$	$ \mathcal{E}_1 ^2$	redressement optique
$2\chi^{(2)}(0;\omega_2,-\omega_2)$	$ \mathcal{E}_2 ^2$	redressement optique
$2\chi^{(2)}(-\omega_1-\omega_2;\omega_1,\omega_2)$	$\left(\mathcal{E}_1\mathcal{E}_2 e^{-i(\omega_1+\omega_2)t} + \text{c.c.}\right)$	addition de fréquences
$2\chi^{(2)}(-\omega_1+\omega_2;\omega_1,-\omega_2)$	$\left(\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} + \text{c.c.}\right)$	différence de fréquences

TAB. 6.1: Les divers termes pouvant apparaître lorsque deux faisceaux de fréquences respectives  $\omega_1$  et  $\omega_2$  se propagent dans un milieu non-linéaire du second ordre.

Les milieux non-linéaires sont souvent des cristaux, et les symétries jouent un rôle fondamental car elles permettent de savoir a priori que de nombreuses composantes des tenseurs de susceptibilité non-linéaire sont nulles. Sans entrer dans les détails de cette question essentielle en pratique, donnons un exemple important, celui des milieux centro-symétriques. De tels milieux sont invariants par symétrie par rapport à l'origine  $(\mathbf{r} \to -\mathbf{r})$ . Il est alors clair que les termes du deuxième ordre comme (6.9) sont nécessairement nuls. En effet, la transformation  $\mathbf{r} \to -\mathbf{r}$ change le signe des composantes  $E_1$  et  $E_2$ , mais aussi de  $P^{(2)}$ . On en conclut que dans un milieu centro-symétrique, seuls les termes impairs sont différents de 0, et le premier terme non-linéaire est d'ordre 3. On voit aussi que pour avoir des non-linéarités d'ordre 2, a priori beaucoup plus grandes, il faut soit utiliser un cristal non centro-symétrique, soit appliquer une contrainte extérieure qui brise la symétrie : contrainte mécanique, champ électrique statique, interface entre deux milieux différents. Ces considérations sont essentielles lorsqu'on s'intéresse aux applications de l'optique non-linéaire.

#### Remarque

Si au lieu d'adopter la convention de (6.8a) et (6.8b) pour la représentation complexe, on introduit un facteur  $\frac{1}{2}$  (on écrit  $E = \mathcal{R}\{\mathcal{E}\exp(-i\omega t)\}$ ), on voit que cela fait apparaître un facteur  $1/2^n$  dans l'expression de la polarisation non-linéaire d'ordre n. Ceci ajoute à la confusion mentionnée ci-dessus et il faudra donc être très prudent lors d'une comparaison quantitative entre les valeurs de la susceptibilité publiées par différents auteurs.

### 6.2.3 Propagation dans un milieu non-linéaire

On sait que la propagation d'ondes planes monochromatiques dans un milieu diélectrique peut se traiter simplement en partant de l'équation de propagation, conséquence directe des équations de Maxwell :

$$\Delta \mathbf{E} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left( \mathbf{E} + \frac{\mathbf{P}}{\varepsilon_0} \right) = 0 .$$
 (6.11)

Dans un diélectrique linéaire, on écrit

$$\mathbf{P}_{\mathrm{L}} = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} \tag{6.12}$$

et l'équation de propagation devient

$$\Delta \mathbf{E} = \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0 \tag{6.13}$$

où n est d'indice de réfraction

$$n^2 = 1 + \chi^{(1)} = \varepsilon_r . (6.14)$$

Lorsqu'il y a dispersion ( $\chi^{(1)}$  dépend de la fréquence  $\omega$ ) il suffit d'écrire les équations ci-dessus en notation complexe pour conclure que dans le cas général **E** se développe sous forme d'une série d'ondes planes monochromatiques

$$\mathbf{E} = \sum_{\ell} \vec{\boldsymbol{\varepsilon}}_{\ell} \mathcal{E}_{\ell} \exp\{i(\mathbf{k}_{\ell} \cdot \mathbf{r} - \omega_{\ell} t)\} + \text{c.c.}$$
(6.15)

avec

$$k_{\ell} = n \frac{\omega_{\ell}}{c} \tag{6.16}$$

 $\operatorname{et}$ 

$$\vec{\boldsymbol{\varepsilon}}_{\ell} \cdot \mathbf{k}_{\ell} = 0 \;. \tag{6.17}$$

L'indice de réfraction n dépend alors de la fréquence  $\omega_{\ell}$  (cf. équation 6.14).

Si le milieu est absorbant ou amplificateur (cf Optique Quantique I),  $\chi^{(1)}$  (et donc  $k_{\ell}$ ) comporte une partie imaginaire, ce qui correspond à des ondes atténuées ou amplifiées.

Dans un milieu non-linéaire, l'équation (6.11) reste vraie, mais il est intéressant de faire apparaître explicitement la polarisation non-linéaire :

$$\Delta \mathbf{E} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \left( \mathbf{E} + \frac{\mathbf{P}_{\mathrm{L}} + \mathbf{P}_{\mathrm{NL}}}{\varepsilon_0} \right) = 0 .$$
 (6.18)

Faisons l'approximation de l'enveloppe le ntement variable, en considérant des ondes dont l'amplitude varie le ntement à l'échelle de la longueur d'onde  $\lambda_\ell = 2\pi/k_\ell$ :

$$\mathbf{E}_{\ell} = \sum_{\ell} \vec{\boldsymbol{\varepsilon}}_{\ell} \mathcal{E}_{\ell}(z) \exp\{i(k_{\ell} z - \omega_{\ell} t)\}$$
(6.19)

avec

$$\left|\frac{d\mathcal{E}_{\ell}(z)}{dz}\right| \ll k_{\ell} \left|\mathcal{E}_{\ell}(z)\right|.$$
(6.20)

Pour simplifier, nous nous limitons au cas où toutes les ondes se propagent suivant la même direction Oz. Utilisons alors la condition (6.20) pour négliger les termes en  $d^2 \mathcal{E}/dz^2$  dans le laplacien de (6.18)

$$\Delta \mathcal{E}_{\ell} = \sum_{\ell} \left[ -k_{\ell}^2 \mathcal{E}_{\ell}(z) + i2k_{\ell} \frac{d\mathcal{E}_{\ell}(z)}{dz} + \frac{d^2 \mathcal{E}_{\ell}(z)}{dz^2} \right] \vec{\varepsilon}_{\ell} \exp\{i(k_{\ell}z - \omega_{\ell}t)\} .$$
(6.21)

L'équation de propagation s'écrit, en tenant compte de (6.14) et (6.16)

$$\sum_{\ell} i2k_{\ell} \frac{d\mathcal{E}_{\ell}(z)}{dz} \vec{\varepsilon}_{\ell} \exp\{i(k_{\ell} \cdot z - \omega_{\ell} t)\} = -\frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_{\mathrm{NL}} .$$
(6.22)

On peut décomposer  $\mathbf{P}_{NL}(z,t)$  en composantes monochromatiques

$$\mathbf{P}_{\mathrm{NL}}(z,t) = \sum_{\ell} \vec{\boldsymbol{\varepsilon}}_{\ell} \mathcal{P}_{\mathrm{NL}}^{\omega_{\ell}}(z) \exp\{-i\omega_{\ell}t\}$$
(6.23)

et on obtient un ensemble d'équations reliant les amplitudes  $\mathcal{E}_{\ell}$  aux composantes  $\mathcal{P}_{NL}^{\omega_{\ell}}$ :

$$\frac{d\mathcal{E}_{\ell}}{dz}\exp\{ik_{\ell}z\} = i\frac{\omega_{\ell}}{2\varepsilon_{0}n_{\ell}c}\mathcal{P}_{\mathrm{NL}}^{\omega_{\ell}}(z).$$
(6.24)

Il suffit alors d'exprimer les  $\mathcal{P}_{\mathrm{NL}}^{\omega_{\ell}}(z)$  en fonction des amplitudes  $\mathcal{E}_{m}(z)$  au point z, à l'aide des susceptibilités non-linéaires, pour obtenir un système d'équations différentielles du 1<sup>er</sup> ordre couplées, dont la solution donne les  $\mathcal{E}_{\ell}(z)$ .

Plutôt que de tenter de développer ce formalisme de façon générale, ce qui est assez lourd, nous allons dans le reste de ce chapitre nous limiter au cas le plus simple, celui où une non-linéarité d'ordre 2 couple entre elles trois ondes. Le cas du mélange à 4 ondes, induit par des non-linéarités d'ordre 3, est présenté dans les compléments.

### 6.3 Mélange à 3 ondes : traitement semi-classique

### 6.3.1 Addition de fréquences

On considère 2 ondes intenses (appelées ondes « pompes ») se propageant suivant Oz dans un milieu non-linéaire du second ordre. Comme nous l'avons vu plus haut, il apparaît alors de nombreux termes associés aux processus physique de doublage, addition ou différence de fréquences. Intéressons-nous à l'addition de fréquence, associée à la polarisation oscillant à la fréquence  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ . L'amplitude complexe correspondante, qui apparaît en (6.10), vaut

$$P_{\rm NL}^{\omega_3}(z) = 2\varepsilon_0 \,\chi^{(2)} \mathcal{E}_1(z) \mathcal{E}_2(z) \exp\{i(k_1 + k_2)z\}$$
(6.25)

où  $\chi^{(2)}$  représente en fait  $\chi^{(2)}(-\omega_3; \omega_1, \omega_2)$ . Cette polarisation non-linéaire provoque l'apparition d'un champ  $\mathcal{E}_3(z)$  à la fréquence  $\omega_3$  qui évolue suivant l'équation (6.24) qui s'écrit

ici

$$\frac{d\mathcal{E}_3}{dz}\exp\{ik_3z\} = i\frac{\omega_3}{2\varepsilon_0 n_3 c}\mathcal{P}_{NL}^{\omega_3}(z)$$
(6.26)

En substituant (6.25) dans (6.26), on obtient

$$\frac{d\mathcal{E}_3}{dz} = i \frac{\chi^{(2)} \omega_3}{n_3 c} \mathcal{E}_1(z) \mathcal{E}_2(z) \exp\{i\Delta k \cdot z\}$$
(6.27)

avec

$$\Delta k = k_1 + k_2 - k_3 . \tag{6.28}$$

Écrivons qu'en z = 0 (face d'entrée du barreau de matériau non-linéaire, voir la figure 6.2) l'amplitude de l'onde à  $\omega_3$  est nulle

$$\mathcal{E}_3(0) = 0 . (6.29)$$

En première approximation, l'intensité des pompes ne varie pas, et on peut prendre  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$  constantes. Tant que z reste petit devant  $\Delta k^{-1}$ , l'équation (6.27) peut être simplifiée en

$$\frac{d\mathcal{E}_3}{dz} \simeq i \frac{\chi^{(2)} \omega_3}{n_3 c} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \tag{6.30}$$

et on constate que l'amplitude de l'onde créée à  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  croît linéairement avec z. Si l'épaisseur de la lame non-linéaire L est plus petite que  $\Delta k$ , on a donc une intensité en sortie (vecteur de Poynting  $\Pi_3$ )

$$\Pi_3 = C \, L^2 \, \Pi_1 \Pi_2 \tag{6.31}$$

avec

$$C = \frac{(\chi^{(2)}\omega_3)^2}{4\varepsilon_0 c^3 n_1 n_2 n_3} \,. \tag{6.32}$$

Il est intéressant d'introduire les puissances  $\phi_1, \phi_2, \phi_3$  qui, dans le modèle simplifié où l'intensité est constante sur le profil du faisceau de surface S, s'écrivent

$$\phi_i = S \,\Pi_i \,. \tag{6.33}$$

On a alors la puissance de sortie

$$\phi_3 = C \, L^2 \, \frac{\phi_1 \phi_2}{S} \tag{6.34}$$

qui est d'autant plus grande que la section S est plus petite. Les processus d'optique non-linéaire sont d'autant plus efficaces que les faisceaux sont plus fortement concentrés.
### Remarques

(i) L'approximation des pompes constantes ( $\phi_1$  et  $\phi_2$  constants) implique que  $\phi_3$  reste petit devant  $\phi_1$  et  $\phi_2$ .

(ii) Dans le cas plus réaliste de faisceaux laser de profil gaussien, on peut remplacer dans 6.34 la surface S par le carré  $w_0^2$  du rayon  $w_0$  au col, à condition de modifier la constante C par un facteur pas très différent de 1, pour tenir compte de la variation transverse d'intensité.

Ceci n'est vrai que si l'interaction non-linéaire se produit au voisinage du col, sur une longueur L plus petite que la longueur de Rayleigh  $z_R = \pi w_0^2/\lambda$  sur laquelle le faisceau gaussien est sensiblement cylindrique (voir le complément VI.5). Si la longueur L du matériau nonlinéaire est plus grande que  $z_R$ , la section S intervenant dans l'expression (6.34) n'est pas constante, et le processus de mélange à 3 ondes n'est efficace que sur une longueur effective  $L_{\text{eff}}$  de l'ordre de  $z_R$ , pour laquelle la section S garde sa valeur minimale de l'ordre de  $w_0^2$ . La puissance  $\phi_3$ , qui varie comme  $L_{\text{eff}}^2/S$ , est alors proportionnelle à  $w_0^2$  et non à  $w_0^{-2}$ . Il ne faut donc pas focaliser les faisceaux au-delà de la valeur qui rend  $z_R$  égal à la longueur Ldu matériau (ou à la longueur d'accord de phase  $L_{\text{opt}} = \pi/\Delta k$ , voir le paragraphe 6.3.2).

Donnons un ordre de grandeur de l'effet dans le cas d'un matériau non-linéaire courant, le KTP, pour lequel  $\chi^{(2)}$  vaut  $5 \times 10^{-2}$  m V<sup>-1</sup>. Pour un cristal de longueur L = 1 cm, éclairé par deux ondes ( $\lambda \simeq 1 \,\mu$ m de même intensité, focalisées sur une tache optimale ( $S \simeq \lambda L = (0, 1 \text{ mm})^2$ ), on trouve que l'onde à fréquence somme a une puissance de 0,2 mW pour des puissances d'entrée  $\phi_1 = \phi_2 = 1$  W. Il s'agit d'une puissance faible mais tout à fait suffisante pour de nombreuses applications où on a besoin d'un faisceau cohérent et monochromatique à la fréquence  $\omega_1 + \omega_2$ .

Notons que si on utilise des lasers en impulsion, dont les puissances crête dépassent aisément le kW, le processus non-linéaire devient remarquablement efficaces. Mais il faut faire attention à ne pas dépasser le seuil de dommage du matériau ( $10^{13}$  Wm<sup>-2</sup> pour le KTP).

(iii) Notons que le raisonnement de la remarque (ii) n'est vrai qu'en propagation libre. Dans un guide d'onde (guide planaire, ou fibre optique), le confinement transverse est maintenu sur de très grandes distances. On peut alors avoir des conversions très efficaces, à condition de satisfaire la condition d'accord de phase.

(iv) Les considérations ci-dessus s'appliquent au cas où il n'y a qu'un seul champ incident de fréquence  $\omega_1$ , et où on a génération du second harmonique  $\omega_3 = 2\omega_1$ . Les formules ci-dessus s'utilisent en remplaçant  $\mathbf{k}_2$  par  $\mathbf{k}_1$ ,  $\omega_2$  par  $\omega_1$ , et en divisant par 2 le coefficient  $\chi_2$  (voir le paragraphe 6.2.2).



FIG. 6.2: Addition de fréquence dans un barreau d'épaisseur L, présentant une non-linéarité du second ordre ( $\chi^{(2)} \neq 0$ ). Les deux pompes intenses à  $\omega_1$  et  $\omega_2$  se combinent pour donner naissance à une onde de fréquence  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  (on a dessiné les faisceaux séparés pour la clarté du schéma, mais en réalité ils sont superposés).

### 6.3.2 Accord de phase

Si l'épaisseur L du barreau non-linéaire n'est pas petite devant  $\Delta k^{-1}$ , on doit revenir à l'équation (6.27), avec la condition initiale (6.29). Dans l'approximation « des pompes constantes » ( $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$  constantes), l'intégration donne

$$\mathcal{E}_3(z) = \frac{\omega_3 \chi^{(2)}}{n_3 c} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \frac{\exp\{i\Delta k \cdot z\} - 1}{\Delta k} .$$
(6.35)

L'intensité de l'onde  $\omega_3$  en sortie de la lame non-linéaire est donc proportionnelle à

$$|\mathcal{E}_3(z)|^2 = \left(2\frac{\omega_3\chi^{(2)}}{\varepsilon_0 n_3 c}\right)^2 |\mathcal{E}_1|^2 |\mathcal{E}_2|^2 \left(\frac{\sin\Delta k \cdot L/2}{\Delta k}\right)^2 . \tag{6.36}$$

Cette équation montre que pour un désaccord  $\Delta k$  donné, l'addition de fréquence aura une efficacité maximale pour un barreau d'épaisseur

$$L_{\rm opt} = \frac{\pi}{|\Delta k|} \tag{6.37}$$

et l'intensité de l'onde  $\omega_3$  à la sortie du barreau optimal sera alors proportionnelle à

$$|\mathcal{E}_{3}(L_{\text{opt}})|^{2} = \left(2\frac{\omega_{3}\chi^{(2)}}{\varepsilon_{0}n_{3}c}\right)^{2} |\mathcal{E}_{1}|^{2} |\mathcal{E}_{2}|^{2} \frac{1}{\Delta k^{2}}.$$
(6.38)

Il est clair que l'on a intérêt à rendre  $|\Delta k|$  aussi petit que possible, de façon à pouvoir prendre un barreau non-linéaire optimal le plus long possible.

La condition d'accord de phase parfait

$$\Delta k = 0 \tag{6.39a}$$

ou encore

$$k_3 = k_1 + k_2 \tag{6.39b}$$

avec

 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ 

semble a priori impossible à réaliser dans un matériau dispersif où l'on a

$$k_i = n(\omega_i) \frac{\omega_i}{c} \tag{6.40}$$

et où l'indice de réfraction  $n(\omega)$  est une fonction monotone (croissante) de  $\omega$ . On peut contourner cette difficulté en utilisant un matériau biréfringent, où l'indice de réfraction dépend de la polarisation.

Considérons par exemple le cas d'un cristal non-linéaire de type I, dans lequel les deux ondes à  $\omega_1$  et  $\omega_2$ , polarisées suivant Ox, donnent naissance à une onde à  $\omega_3$ , polarisée suivant Oy



FIG. 6.3: Addition de fréquences dans un cristal non-linéaire biréfringent de type I. Les ondes pompes à  $\omega_1$  et  $\omega_2$ , polarisées suivant Ox, se propagent avec l'indice de réfraction ordinaire  $n_o$  tandis que l'onde somme à  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  polarisée suivant Oy, se propage avec un indice extraordinaire  $n_e$ . Si on a  $n_e(\omega) < n_o(\omega)$ , il est possible de réaliser un accord de phase (cf. Fig. 6.4).

(les ondes se propagent suivant Oz, voir la figure 6.3). À cause de la biréfringence, l'indice de réfraction est différent pour les ondes polarisées suivant Ox (indice ordinaire  $n_0$ ) et pour l'onde polarisée suivant Oy (indice extraordinaire  $n_e$ ). Dans le cas où  $n_e(\omega) < n_o(\omega)$ , il est possible de réaliser l'accord de phase exact, comme le montre la figure (6.4) (tracée pour simplifier dans le cas particulier où  $\omega_1 = \omega_2 = \omega_3/2$ ).

L'accord exact pour chaque jeu de fréquences  $(\omega_1, \omega_2, \omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$  peut être obtenu en choisissant judicieusement la direction de propagation dans le cristal (qui n'est pas isotrope). Pour modifier les fréquences où l'accord de phase est réalisé, on doit tourner le cristal. Il est également possible de changer la température du cristal, ce qui déplace les courbes de dispersion de la figure (6.4).



FIG. 6.4: Situation d'accord de phase parfait pour le doublement de fréquence dans un cristal de type I. L'indice extraordinaire à  $\omega_3 = 2\omega_1$  est égal à l'indice ordinaire à  $\omega_1$ . Cette situation s'obtient en choisissant judicieusement l'orientation du cristal ainsi que sa température.

Il est facile de généraliser le raisonnement au cas d'ondes non-colinéaires (figure 6.5). Ainsi, deux ondes se propageant suivant des directions différentes (vecteurs d'onde  $\mathbf{k}_1$  et  $\mathbf{k}_2$ ) seront en accord de phase avec une onde à fréquence  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ , se propageant avec le vecteur d'onde



FIG. 6.5: Interaction non-linéaire entre ondes non copropageantes, et condition vectorielle d'accord de phase :  $\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2$ .

Ce type de situation présente l'inconvénient d'un mauvais recouvrement des faisceaux, ce qui limite la longueur L d'interaction (figure 6.5). Mais les directions transverses offrent des degrés de liberté supplémentaires, très intéressants dans un certain nombre de schémas.

### Remarques

(i) En propagation guidée, on peut avoir de très grandes longueurs d'interaction, pour lesquelles il est impossible d'obtenir un accord de phase suffisamment bon pour profiter de toute la longueur d'interaction. Une solution élégante à ce problème est la technique du « quasi accord de phase », dans laquelle on met bout à bout des tronçons de milieu nonlinéaire de longueur de l'ordre de  $\pi/|\Delta k|$ , mais avec des signes du coefficient  $\chi^{(2)}$  (et donc de  $\Delta k$ ) alternés dans les tronçons successifs. Il est alors facile de se convaincre, par exemple en utilisant la formule (6.35), qu'il y a compensation des désaccords de phase dans les sections adjacentes de matériau non-linéaire. Un matériau se prêtant bien à cette méthode est le niobate de lithium, et la technique est alors connue sous l'acronyme PPLN (periodically poled lithium niobate).

# 6.3.3 Mélange à 3 ondes : évolutions couplées

Au sein du matériau non-linéaire, on a 3 ondes couplées colinéaires telles que

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 \tag{6.42a}$$

$$k_1 + k_2 = k_3 \tag{6.42b}$$

et nous nous proposons d'aller au-delà de l'approximation des pompes constantes, c'està-dire que nous cherchons les équations d'évolution des trois amplitudes  $\mathcal{E}_1(z), \mathcal{E}_2(z)$  et  $\mathcal{E}_3(z)$ .

On peut se demander pourquoi se limiter au processus (6.42), schématisé sur la figure 6.6a. On pourrait par exemple envisager le processus de la figure 6.6b, qui donne naissance à une nouvelle onde à

$$\omega_4 = \omega_1 + \omega_3 . \tag{6.43}$$

$ \xrightarrow{\begin{array}{c} \omega_1 \\ \hline \\ \hline \\ \omega_2 \end{array}} \xrightarrow{\begin{array}{c} \omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \\ \chi^{(2)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \end{array}} $	$ \begin{array}{c} \xrightarrow{\omega_1} \\ \xrightarrow{\omega_1} \\ \xrightarrow{\omega_3} \end{array} \xrightarrow{\omega_4 = \omega_1 + \omega_3} \\ \chi^{(2)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_3 \end{array} $
(a)	(b)
$\xrightarrow{\omega_1} \omega_2 = \omega_3 - \omega_1$	$\xrightarrow{\omega_2} \omega_1 = \omega_3 - \omega_2$
$\qquad \qquad $	$\qquad \qquad $
	5

FIG. 6.6: Quelques processus non-linéaires à 3 ondes. Les processus (a), (c) et (d) sont favorisés par la même condition d'accord de phase  $k_3 = k_1 + k_2$ , alors que le processus (b) est dans ce cas très peu efficace. Il a y essentiellement interaction entre  $\omega_1, \omega_2$  et  $\omega_3$ .

Il est en fait facile de se convaincre que si la condition d'accord de phase est réalisée pour le processus (6.42), elle ne l'est pas pour (6.43), que l'on peut donc négliger. En revanche, le processus de la figure 6.6c, dans lequel les ondes  $\omega_1$  et  $\omega_3$  se combinent pour donner

$$\omega_2 = \omega_3 - \omega_1 \tag{6.44a}$$

est favorisé par la condition d'accord de phase

$$k_2 = k_3 - k_1 \tag{6.44b}$$

qui est la même que (6.42b). Ce processus de différence de fréquences apparaît en écrivant une équation analogue à (6.25):

$$P_{NL}(z,t) = 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} [\mathcal{E}_3(z) \exp\{i(k_3 z - \omega_3 t)\} + \text{c.c.}] [\mathcal{E}_1(z) \exp\{i(k_1 \cdot z - \omega_1 t)\} + \text{c.c.}] .$$
(6.45)

En raisonnant comme au paragraphe 6.3.1, on obtient l'équation

$$\frac{d\mathcal{E}_2}{dz} = i \frac{\chi^{(2)} \omega_2}{n_2 c} \mathcal{E}_3(z) \mathcal{E}_1^*(z)$$
(6.46)

où nous avons gardé seulement le terme favorisé par la relation d'accord de phase (6.44b) (le terme en  $\mathcal{E}_3\mathcal{E}_1$  comporte un facteur  $\exp\{i(k_3 + k_1 - k_2)z\}$  qui oscille au cours de la propagation).

Une analyse analogue montre que le processus de la figure (6.6d) est lui aussi favorisé par la condition d'accord de phase (6.42b).

En définitive, si on réalise la condition d'accord de phase (6.42b) pour les 3 ondes à  $\omega_1, \omega_2$ , et  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ , on a trois processus efficaces, et on peut écrire les équations différentielles couplées correspondantes :

$$\frac{d\mathcal{E}_3}{dz} = i\frac{\omega_3}{n_3c}\chi^{(2)}\mathcal{E}_1(z)\mathcal{E}_2(z)$$
(6.47a)

$$\frac{d\mathcal{E}_1}{dz} = i \frac{\omega_1}{n_1 c} \chi^{(2)} \mathcal{E}_3(z) \mathcal{E}_2^*(z)$$
(6.47b)

$$\frac{d\mathcal{E}_2}{dz} = i\frac{\omega_2}{n_2c}\chi^{(2)}\mathcal{E}_3(z)\mathcal{E}_1^*(z)$$
(6.47c)

Ce système différentiel fermé non-linéaire permet non seulement de traiter le cas de l'addition des fréquences au-delà de l'approximation des pompes constantes, mais il s'applique également au phénomène d'amplification paramétrique que nous verrons plus loin.

Il existe une solution générale aux équations (6.47a-6.47c), en termes de fonctions elliptiques<sup>2</sup>. Elle est périodique en z si  $\Delta k \neq 0$ . Elle est malheureusement trop complexe pour se prêter à des discussions physiques. Il est par contre instructif de déterminer les invariants de ce système d'équations, c'est-à-dire les fonctions des trois champs en interaction qui sont constants dans la propagation.

Le système d'équations couplées (6.47) a été établi pour un milieu non-linéaire transparent, loin des zones d'absorption ( $\chi^{(2)}$  est réel). On s'attend alors à avoir conservation de l'énergie. Pour le vérifier, il suffit de s'intéresser aux vecteurs de Poynting moyens. À l'intérieur d'un diélectrique d'indice n, le vecteur de Poynting s'écrit

$$\vec{\Pi} = \frac{\overline{\mathbf{E} \times \mathbf{B}}}{\mu_0} = \frac{\overline{E^2}}{\mu_0 \omega} \mathbf{k} = n\varepsilon_0 c \,\overline{E^2} \mathbf{e}_z = \Pi \mathbf{e}_z$$
$$= 2n\varepsilon_0 c \,\mathcal{E}^* \mathcal{E} \mathbf{e}_z \tag{6.48}$$

expression où la barre supérieure désigne une moyenne temporelle sur un temps long devant la période optique. On a alors pour chaque onde

$$\frac{d\Pi}{dz} = 2n\varepsilon_0 c \left(\frac{d\mathcal{E}}{dz}\mathcal{E}^* + \mathcal{E}\frac{d\mathcal{E}^*}{dz}\right)$$
(6.49)

et les équations (6.47) conduisent à

$$\frac{d\Pi_1}{dz} = i\omega_1 \, 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} (\mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2^* \mathcal{E}_3 - \text{c.c.})$$
(6.50a)

$$\frac{d\Pi_2}{dz} = i\omega_2 \, 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} (\mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2^* \mathcal{E}_3 - \text{c.c.})$$
(6.50b)

$$\frac{d\Pi_3}{dz} = -i\omega_3 \, 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} (\mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2^* \mathcal{E}_3 - \text{c.c.}) \tag{6.50c}$$

On a bien

$$\frac{d}{dz}(\Pi_1 + \Pi_2 + \Pi_3) = i(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3) \, 2\varepsilon_0(\mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2^* \mathcal{E}_3 - \text{c.c.}) = 0 \tag{6.51}$$

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P.S. Pershan, Phys. Rev, **127**, 1918 (1962).

ce qui exprime la conservation de l'énergie. Il n'y a donc aucun transfert d'énergie vers le milieu non-linéaire qui ne sert qu'à « assister » le couplage. C'est une situation très différente de la propagation d'une onde à travers un ensemble d'atomes quasi-résonnants, où le milieu est capable d'enlever ou de donner de l'énergie aux ondes qui le traversent (chapitre II du cours Optique Quantique 1).

Le deuxième invariant s'obtient également à partir des équations (6.50a-6.50c). Il s'écrit

$$\frac{1}{\omega_1}\frac{d\Pi_1}{dz} = \frac{1}{\omega_2}\frac{d\Pi_2}{dz} = -\frac{1}{\omega_3}\frac{d\Pi_3}{dz} \,. \tag{6.52}$$

C'est la « relation de Manley-Rowe », qui s'interprète simplement dans le cas d'une description quantique, en terme de photons, comme nous le verrons plus loin.

#### Remarque

Comme le montre l'équation (6.51), l'intensité  $\Pi_3$  de l'onde produite par addition de fréquence ne peut croître qu'aux dépens des ondes pompe  $\Pi_1$  et  $\Pi_2$ . C'est le phénomène de déplétion des pompes, qui vient limiter la croissance de  $\Pi_3$ . La forme précise de la dépendance de  $\Pi_1, \Pi_2$  et  $\Pi_3$  en fonction de z s'obtient en intégrant le système d'équations différentielles couplées (6.47a-6.47c).

# 6.3.4 Amplification paramétrique

Envoyons maintenant sur le cristal non-linéaire une onde intense (pompe) à  $\omega_3$ , et une onde faible (signal) à  $\omega_1$  (figure 6.7). On suppose que la condition d'accord de phase (6.42b) est vérifiée pour  $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ .



FIG. 6.7: Amplification paramétrique. En combinant la pompe intense  $\omega_3$  à l'onde faible  $\omega_1$ , on peut amplifier l'onde (signal) à  $\omega_1$ . On voit alors apparaître l'onde « réplique » (idler) à  $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$  (les faisceaux sont représentés séparés pour la clarté du schéma, mais en réalité ils sont superposés).

Si on fait l'approximation de la pompe constante ( $\mathcal{E}_3$  constant) les équations (6.47b) et (6.47c) conduisent à

$$\frac{d^2 \mathcal{E}_2}{dz^2} = \left(\frac{\chi^{(2)}|\mathcal{E}_3|}{c}\right)^2 \frac{\omega_1 \omega_2}{n_1 n_2} \mathcal{E}_2 = \gamma^2 \mathcal{E}_2 .$$
(6.53)

Pour les conditions initiales,

$$\mathcal{E}_2(z=0) = 0 \tag{6.54a}$$

$$\mathcal{E}_1(z=0) = \mathcal{E}_1(0)$$
, (6.54b)

la solution est

$$\mathcal{E}_2(z) = i \left(\frac{\omega_2}{\omega_1}\right)^{1/2} \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^{1/2} \frac{\mathcal{E}_3}{|\mathcal{E}_3|} \mathcal{E}_1^*(0) \sinh(\gamma z)$$
(6.55a)

$$\mathcal{E}_1(z) = \mathcal{E}_1(0)\cosh(\gamma z) \tag{6.55b}$$

avec

$$\gamma = \frac{\chi^{(2)} |\mathcal{E}_3|}{c} \left(\frac{\omega_1 \omega_2}{n_1 n_2}\right)^{1/2} . \tag{6.55c}$$

On constate que l'onde  $\mathcal{E}_1$  (le signal) est amplifiée, tandis qu'apparaît une onde appelée « réplique » (idler en anglais). Ce processus d'amplification des ondes lumineuses, appelé *amplification paramétrique*, a l'intérêt d'être accordable dans une gamme de fréquences assez large, en ajustant la condition d'accord de phase par les méthodes vues au paragraphe 6.3.2 (accord en angle, ou en température). Placé à l'intérieur d'une cavité laser, un amplificateur paramétrique optique (APO) donne une source laser accordable appelée OPO (Oscillateur Paramétrique Optique), utile pour de nombreuses applications.

### 6.3.5 Fluorescence paramétrique

Que se passe-t-il si l'on considère un amplificateur paramétrique avec sa pompe intense à  $\omega_3$ , mais sans aucun signal d'entrée, que ce soit à  $\omega_1$  ou  $\omega_2$ ? (Les fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$ sont celles qui donnent lieu à l'accord de phase  $\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2$ ). On peut présumer qu'il y aura des processus spontanés donnant des photons à  $\omega_1$  ou  $\omega_2$ , et qu'à partir de cette fluorescence initiale vont se développer des ondes à  $\omega_1$  et  $\omega_2$ , ayant non seulement des intensités mais aussi des phases couplées. C'est effectivement ce qu'on observe, et ce processus de *fluorescence paramétrique* est particulièrement riche comme nous le verrons plus loin.

Notons d'abord qu'on n'est pas obligé de se limiter à des ondes copropageantes, et que la possibilité de réaliser la condition d'accord de phase vectorielle

$$\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 \tag{6.56}$$

autorise, pour une orientation particulière du cristal non-linéaire relativement à la pompe, l'apparition de nombreux couples  $(\omega_1, \omega_2; \mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2)$  qui forment des cônes conjugués dont la projection sur un écran fournit des anneaux colorés. Devant une telle figure (figure 6.8) on se souviendra qu'en fait les ondes sont conjuguées 2 à 2, un couple d'ondes conjuguées étant caractérisé par les relations  $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$  et  $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_3$ .



FIG. 6.8: Fluorescence paramétrique. L'ensemble des couples d'ondes conjuguées  $(\omega_i, \mathbf{k}_i; \omega_j, \mathbf{k}_j)$  telles que  $\omega_i + \omega_j = \omega_3$  et  $\mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j = \mathbf{k}_3$  engendrent un double cône, dont la coupe forme des anneaux colorés.

# 6.4 Traitement quantique de la fluorescence paramétrique

# 6.4.1 Nécessité et intérêt d'un traitement quantique

Si les processus d'addition de fréquence ou d'amplification paramétrique vus ci-dessus sont très bien décrits, qualitativement et quantitativement, par la théorie semi-classique de l'interaction matière rayonnement, il n'en va pas de même de la fluorescence paramétrique où nous avons été obligés d'invoquer des « processus spontanés » faisant apparaître des photons aux fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  et suivant les directions  $\mathbf{k}_1$  et  $\mathbf{k}_2$  privilégiées par la condition d'accord de phase. Comme nous l'avons déjà vu à propos de l'émission spontanée, de tels processus ne peuvent se comprendre – et s'étudier quantitativement – qu'en utilisant une description quantique du rayonnement.

La relation  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  suggère de décrire le processus comme une « réaction » dans laquelle un photon  $\hbar\omega_3$  disparaît pour donner naissance à deux photons  $\hbar\omega_1$  et  $\hbar\omega_2$ , en conservant l'énergie (milieu transparent)

$$\hbar\omega_3 \longrightarrow \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 . \tag{6.57}$$

Cette image est en accord avec les relations de Manley-Rowe, qui découlent directement des équations classiques (6.50), et qui s'écrivent

$$\frac{1}{\hbar\omega_1}\frac{d\Pi_1}{dz} = \frac{1}{\hbar\omega_2}\frac{d\Pi_2}{dz} = -\frac{1}{\hbar\omega_3}\frac{d\Pi_3}{dz} \,. \tag{6.58}$$

En interprétant  $\Pi/\hbar\omega$  comme un courant de photons, on voit qu'il apparaît un photon  $\hbar\omega_1$  et un photon  $\hbar\omega_2$  pour chaque photon  $\hbar\omega_3$  détruit. Il est clair que l'on peut également interpréter la condition d'accord de phase (6.41) comme une conservation de quantité de mouvement dans le processus élémentaire (6.57), puisqu'on peut la récrire

$$\hbar \mathbf{k}_3 = \hbar \mathbf{k}_1 + \hbar \mathbf{k}_2 \ . \tag{6.59}$$

L'image associée au processus (6.57) suggère que les photons  $\hbar\omega_1$  et  $\hbar\omega_2$  sont émis par paires. Ces *paires de photons jumeaux* donnent lieu à des phénomènes typiquement quantiques, inconcevables dans un monde classique, dont nous donnerons quelques exemples. Ainsi, l'intérêt de la description quantique va bien au-delà de la possibilité de calculer quantitativement le taux de fluorescence paramétrique. Elle est indispensable pour prédire et décrire les propriétés des paires de photons produits dans ce processus.

### Remarque

Rappelons qu'en fait la condition (6.59) n'est pas stricte : d'une part, pour un cristal d'épaisseur finie L, elle s'écrit en fait  $\Delta k \leq \pi/L$  avec  $\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_3 - \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ , et d'autre part le processus de mélange a une amplitude non nulle même si la condition n'est pas vérifiée. Elle a donc un statut différent de la relation  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$  qui ne souffre aucun écart lorsqu'on a affaire à des faisceaux continus (il en va autrement avec des impulsions ultra brèves dont la dispersion en fréquence est grande).

# 6.4.2 Traitement quantique du mélange à 3 ondes

Considérons les modes 1, 2 et 3 tels que

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \tag{6.60a}$$

$$\mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 \tag{6.60b}$$

Pour un milieu non-linéaire transparent, il n'y a pas d'échange d'énergie avec la matière, et nous admettons que le processus non-linéaire peut se décrire à l'aide d'un *hamiltonien effectif* responsable de la disparition ou de l'apparition de photons dans les ondes 1, 2 et 3. Nous écrirons donc que le rayonnement est décrit par un hamiltonien comportant un terme d'évolution libre, et un terme de couplage

$$\hat{H} = \sum_{i=1}^{3} \hbar \omega_i \left( \hat{a}_i^+ \hat{a}_i + \frac{1}{2} \right) + \hbar g (\hat{a}_1^+ \hat{a}_2^+ \hat{a}_3 + \hat{a}_1 \hat{a}_2 \hat{a}_3^+)$$
  
=  $\hat{H}_0 + \hat{H}_I$  (6.61)

Le premier terme de couplage  $(\hat{a}_1^+ \hat{a}_2^+ \hat{a}_3)$  correspond au processus (6.57) : un photon  $\hbar\omega_3$ disparaît, et une paire  $\hbar\omega_1$ ,  $\hbar\omega_2$  apparaît. Le terme hermitien conjugué correspond au processus inverse : une paire  $(\hbar\omega_1, \hbar\omega_2)$  disparaît, et un photon  $\hbar\omega_3$  est créé. Nous pouvons vérifier quelques lois de conservation relatives au nombre de photons dans ces processus. Pour cela, calculons les commutateurs des nombres de photons  $\hat{N}_i = \hat{a}_i^+ \hat{a}_i$  avec l'hamiltonien. On a

$$[\hat{N}_{1}, \hat{H}] = \hbar g[\hat{a}_{1}^{+} \hat{a}_{1}, \hat{a}_{1}^{+} \hat{a}_{2}^{+} \hat{a}_{3} + \hat{a}_{1} \hat{a}_{2} \hat{a}_{3}^{+}]$$
  
=  $\hbar g[\hat{a}_{1}^{+} \hat{a}_{2}^{+} \hat{a}_{3} - \hat{a}_{1} \hat{a}_{2} \hat{a}_{3}^{+}] = \hat{F}$  (6.62a)

$$[\hat{N}_2, \hat{H}] = \hat{F} \tag{6.62b}$$

$$[\hat{N}_3, \hat{H}] = -\hat{F}$$
 (6.62c)

On constate que  $\hat{N}_1 - \hat{N}_2$ ,  $\hat{N}_1 + \hat{N}_3$ ,  $\hat{N}_2 + \hat{N}_3$ ,  $\hat{N}_1 + \hat{N}_2 - 2\hat{N}_3$ , commutent avec l'hamiltonien total. On dit que ce sont de « bons nombres quantiques », c'est-à-dire que ce sont des observables conservées lors de l'évolution. Par exemple, un état initial  $|\psi_i\rangle = |N_1, N_2, N_3\rangle$  conduira à un état final  $|N_1 + 1, N_2 + 1, N_3 - 1\rangle$ .

# 6.4.3 Traitement perturbatif de la fluorescence paramétrique

Soit un état initial dans lequel il n'y a des photons que dans la pompe

$$|\psi_i\rangle = |0, 0, N_3\rangle$$
 . (6.63)

Sous l'effet de l'hamiltonien d'interaction  $\hat{H}_{\rm I}$  de (6.61), et dans le cadre d'un traitement perturbatif<sup>3</sup>,  $|\psi_i\rangle$  évolue vers

$$|0,0,N_3\rangle + C|1,1,N_3-1\rangle$$

où C est petit devant 1. En fait, il y a un très grand nombre de couples de modes (i, j) qui satisfont exactement à la condition (6.60a), et approximativement à la condition (6.60b). L'état final (après le cristal) pourra donc s'écrire, au premier ordre de la théorie des perturbations

$$|\psi_f\rangle = |0,0,N_3\rangle + \left(\sum_{i,j} C_{ij}|1_i,1_j\rangle\right) \otimes |N_3-1\rangle$$
(6.64)

où les coefficients  $C_{ij}$  ont un module d'autant plus grand que la condition d'accord de phase est mieux satisfaite.

Le vecteur d'état

$$|\psi'\rangle = \sum_{ij} C_{ij}|1_i, 1_j\rangle \tag{6.65}$$

correspond à des paires de photons jumeaux. Pour un rayonnement de ce type (obtenu par exemple en mettant un filtre qui élimine les photons  $\hbar\omega_3$ ), on a en effet

$$\hat{N}|\psi'\rangle = \left(\sum_{\ell} \hat{a}_{\ell}^{\dagger} \hat{a}_{\ell}\right) |\psi'\rangle$$

$$= \sum_{ij} C_{ij} \left(\sum_{\ell} \hat{a}_{\ell}^{\dagger} \hat{a}_{\ell} |1_{i}, 1_{j}\rangle\right) = \sum_{ij} C_{ij} \left(\hat{a}_{i}^{\dagger} \hat{a}_{i} + \hat{a}_{j}^{\dagger} \hat{a}_{j}\right) |1_{i}, 1_{j}\rangle$$

$$= 2|\psi'\rangle . \qquad (6.66)$$

Le nombre total de photons dans cet état vaut 2 avec certitude.

Pour mettre en évidence les corrélations entre les deux photons d'une même paire, il faut procéder à un filtrage entre directions conjuguées, comme nous le montrons maintenant.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Voir par exemple le chapitre I du cours d'Optique Quantique I.

### 6.4.4 Paires de photons jumeaux

Plaçons après le cristal non-linéaire, deux trous de filtrage qui définissent deux directions  $\mathbf{u}_1$  et  $\mathbf{u}_2$  telles que la condition d'accord de phase soit strictement vérifiée pour un couple particulier de fréquences  $\omega_1^{(0)}$  et  $\omega_2^{(0)}$  (figure 6.9). Il existe en fait de nombreux couples de modes conjugués ( $\omega_1, \omega_2$ ), se propageant suivant  $\mathbf{u}_1$  et  $\mathbf{u}_2$ , satisfaisant approximativement à la condition d'accord de phase. À cause de (6.60a), leurs fréquences valent respectivement

$$\omega_1 = \omega_1^{(0)} + \delta \tag{6.67a}$$

 $\operatorname{et}$ 

$$\omega_2 = \omega_2^{(0)} - \delta , \qquad (6.67b)$$

le désaccord  $\delta$  restant petit devant  $\omega_3/2$ .

L'état du rayonnement après les deux trous de filtrage s'écrit donc

$$\begin{aligned} |\psi''\rangle &= \sum_{\delta} C(\delta) |1_{\mathbf{u}_{1},\omega_{1}^{(0)}+\delta}, 1_{\mathbf{u}_{2},\omega_{1}^{(0)}-\delta}\rangle \\ &\sum_{\delta} C(\delta) |1_{\mathbf{u}_{1},\delta}, 1_{\mathbf{u}_{2},-\delta}\rangle . \end{aligned}$$
(6.68)

La seconde écriture, moins lourde, est non ambiguë dans la mesure où on se souvient que les fréquences des deux photons sont respectivement données par (6.67a) et (6.67b). Dans la mesure où  $\delta$  caractérise l'écart à la condition d'accord de phase parfait, le coefficient  $|C(\delta)|$  passe par un maximum pour  $\delta = 0$ , et il est décrit par une courbe en cloche de largeur typique  $10^{-3}\omega_3$  à  $10^{-1}\omega_3$ .

On place derrière chacun des trous un photodétecteur  $(D_1 \text{ et } D_2)$ . Calculons d'abord le taux de photodétection simple en  $D_1$ 

$$w^{(1)}(\mathbf{r}_1, t) = s \|\hat{E}_1^{(+)}(\mathbf{r}_1, t)|\psi''\rangle\|^2$$
(6.69)

avec

$$\hat{E}_{1}^{(+)}(\mathbf{r}_{1},t) = \sum_{\ell_{1}} \mathcal{E}_{\ell_{1}} \exp\{i\omega_{\ell_{1}}(\tau_{1}-t)\}\hat{a}_{\ell_{1}} .$$
(6.70)

On a introduit le retard

$$\tau_1 = \frac{\mathbf{u}_1 \cdot \mathbf{r}_1}{c} \tag{6.71}$$

où  $\mathbf{r}_1$  est la position du détecteur  $D_1$  comptée à partir de la sortie du cristal. L'indice 1 apparaissant dans l'expression du champ électrique  $\hat{\mathbf{E}}_1$  et dans la dénomination  $\ell_1$  des modes, rappelle qu'on ne considère que des modes se propageant suivant  $\mathbf{u}_1$ . On trouve alors

$$\hat{E}_{1}^{(+)}|\psi''\rangle = \sum_{\delta} C(\delta) \,\mathcal{E}_{\omega_{1}} e^{i\omega_{1}(\tau_{1}-t)} |0_{\mathbf{u}_{1},\delta}, 1_{\mathbf{u}_{2},-\delta}\rangle \,.$$
(6.72)



FIG. 6.9: Photons jumeaux produits par fluorescence paramétrique. Les diaphragmes  $T_1$  et  $T_2$  sélectionnent des directions conjuguées ( $\mathbf{u}_1$  et  $\mathbf{u}_2$ ) telles que la condition d'accord de phase est strictement vérifiée pour les fréquences  $\omega_1^{(0)}$  et  $\omega_2^{(0)}$ . Les détecteurs  $D_1$  et  $D_2$  permettent de mesurer les signaux de photodétection simples ou en coïncidence. On vérifie ainsi que les photons sont produits par paires.

Dans l'expression ci-dessus, il est entendu que  $\omega_1$  dépend de  $\delta$ , suivant l'équation (6.67a). Dans la mesure où cette expression est un développement sur une suite de kets orthogonaux, le taux de détection simple (6.69), qui n'est autre que le module carré de (6.72), s'exprime simplement comme

$$w^{(1)}(\mathbf{r}_1, t) = s \sum_{\delta} |C(\delta)|^2 \mathcal{E}^2_{\omega_1} .$$
 (6.73)

Cette quantité est indépendante du temps. La probabilité de photodétection simple est constante en  $D_1$ . On trouverait évidemment un résultat analogue en  $D_2$ .

### Remarque

Il faut bien comprendre le statut de chaque étape du calcul ci-dessus. Le raisonnement conduisant à l'expression (6.68) de l'état du rayonnement se fait dans le cadre de la théorie des perturbations dépendant du temps, et le vecteur d'état (6.68) devrait a priori être compris dans le point de vue de Schrödinger. Mais il s'agit en fait d'un état stationnaire d'énergie parfaitement déterminée ( $E = \hbar \omega_1 + \hbar \omega_2 = \hbar \omega_3$ ) et son évolution temporelle se traduit par un simple terme de phase global en  $\exp\{-i\omega_3 t\}$  que l'on a omis dans (6.68). Tel qu'il est écrit en (6.68),  $|\psi''\rangle$  est indépendant du temps, ce qui nous permet d'adopter le point de vue de Heisenberg pour calculer les probabilités de photodétection, comme on le fait en (6.69), ainsi que ci-dessous.

Calculons maintenant le taux de détections conjointes en  $D_1$  et  $D_2$ 

$$w^{(2)}(\mathbf{r}_1, t; \mathbf{r}_2, t') = s^2 \|\hat{E}_1^{(+)}(\mathbf{r}_1, t)\hat{E}_2^{(+)}(\mathbf{r}_2, t')|\psi''\rangle\|^2 .$$
(6.74)

En procédant comme ci-dessus, on trouve

$$\hat{E}_{1}^{(+)}(\mathbf{r}_{1},t)\hat{E}_{2}^{(+)}(\mathbf{r}_{2},t')|\psi''\rangle = \sum_{\delta} C(\delta)\mathcal{E}_{\omega_{1}}\mathcal{E}_{\omega_{2}} e^{i\omega_{1}(\tau_{1}-t)} e^{i\omega_{2}(\tau_{2}-t')}|0,0\rangle$$
(6.75)

les quantités  $\omega_1$  et  $\omega_2$  dépendant de  $\delta$  suivant les expressions (6.67a) et (6.67b) et  $\tau_2$  étant le temps de propagation de la lumière depuis le cristal jusqu'au détecteur D<sub>2</sub>

$$\tau_2 = \frac{\mathbf{u}_2 \cdot \mathbf{r}_2}{c} \ . \tag{6.76}$$

L'expression (6.75) est radicalement différente de (6.72), en ce sens que le vecteur  $|0,0\rangle$  (le vide) est en facteur de la somme d'amplitudes complexes, que l'on doit donc sommer avant de prendre le carré du module. En remplaçant  $\omega_1$  et  $\omega_2$  par leur expression en fonction de  $\delta$ , on obtient

$$w^{(2)}(\mathbf{r}_{1}, t; \mathbf{r}_{2}, t') = s^{2} \left| \sum_{\delta} C(\delta) \mathcal{E}_{\omega_{1}} \mathcal{E}_{\omega_{2}} \exp\{i\delta(\tau_{1} - \tau_{2} - t + t')\} \right|^{2} .$$
(6.77)

Pour calculer l'expression ci-dessus, on remplace la somme discrète par une intégrale, en introduisant la densité d'états (voir par exemple (C.14) du chapitre III). Cette densité d'états varie lentement avec  $\delta$ . Il en est de même de  $\mathcal{E}_{\omega_1}$  et  $\mathcal{E}_{\omega_2}$ , et on peut sortir ces trois fonctions de l'intégrale, qui est donc simplement proportionnelle à la transformée de Fourier  $\tilde{C}(\tau)$  de  $C(\delta)$ , prise en  $\tau = \tau_1 - \tau_2 - t + t'$ . Comme  $C(\delta)$  est une fonction en cloche de largeur typique  $10^{13}$  s<sup>-1</sup>,  $\tilde{C}(\tau)$  est une fonction en cloche très étroite, de largeur typique  $10^{-13}$  s.

La probabilité de détection conjointe aux instants t et t' est donc une fonction de t - t' très piquée autour de

$$t - t' = \tau_1 - \tau_2 . (6.78)$$

En se souvenant que  $\tau_1$  et  $\tau_2$  sont les temps de propagation de la lumière depuis le cristal jusqu'aux détecteurs  $D_1$  et  $D_2$ , on peut interpréter ce résultat en admettant que deux photons ont été émis exactement au même instant dans le cristal, puis se sont propagés respectivement vers  $D_1$  et  $D_2$ .

La mise en évidence expérimentale de la simultanéité des émissions a été permise par les progrès des méthodes de détection de photon en coïncidence, dans les années 1970-1980 (figure 6.10). Couplées à des expériences du type de celle décrite au chapitre II, montrant que chaque photon est unique, ces expériences constituent une preuve convaincante de la nécessité de quantifier le champ électromagnétique. Il n'est pas possible de les interpréter dans le cadre du modèle semi-classique, où l'atome est quantifié mais le champ électromagnétique ne l'est pas.

### Remarque

Du fait de l'écart à la condition d'accord de phase exacte lorsque  $\delta$  est différent de 0, la constante est en fait un nombre complexe dont la phase varie linéairement avec  $\delta$  (au premier ordre). Il s'ensuit un léger décalage de la transformée de Fourier de  $C(\delta)$ , qui reste une fonction très étroite, mais pas exactement centrée sur 0. Ce point est inobservable en pratique, car on n'a pas de moyen de mesurer les retards absolus  $\tau_1$  et  $\tau_2$ . Ce que l'on vérifie expérimentalement, c'est que le signal de photodétection conjointe  $w^{(2)}(\mathbf{r}_1, t; \mathbf{r}_2, t')$  se présente comme un pic extrêmement étroit.



FIG. 6.10: Simultanéité des détections des photons émis par fluorescence paramétrique (S. Friberg, C. K. Hong et L. Mandel, Phys. Rev. Lett. 54, 2011 (1985)). Le système expérimental permet d'obtenir l'histogramme des intervalles de temps entre les détections. La demi-largeur de cet histogramme (170 picosecondes) est du même ordre que la résolution temporelle du système, et la largeur intrinsèque du processus est donc beaucoup plus faible. La largeur théorique attendue est de 0.1 picoseconde.

# 6.4.5 Interférence à deux photons

L'expérience que nous venons de décrire (figure 6.10) s'interprète parfaitement par un modèle corpusculaire où les photons sont émis par paires. On peut se demander s'il était utile de recourir à un traitement aussi élaboré que celui de l'électrodynamique quantique présentée ci-dessus. La réponse est que seul ce formalisme est capable de décrire aussi bien le comportement corpusculaire – par exemple l'émission par paires, que le comportement ondulatoire. Par exemple, on peut réaliser avec chaque photon de la paire une expérience d'interférence du type de celle présentée au paragraphe II.D.3.c (figures II.D.2 et II.D.3).

L'aptitude du formalisme de l'optique quantique à décrire aussi bien le comportement corpusculaire qu'ondulatoire est remarquable, et suffit à justifier l'introduction de ce formalisme. Mais l'intérêt va bien au-delà, car l'optique quantique prévoit des effets inconcevables – et impossibles à décrire – dans le cadre de modèles classiques ondulatoires ou corpusculaires. Il s'agit de phénomènes d'interférences à deux photons, que nous présentons maintenant.

Pour mettre en évidence le phénomène d'interférence à deux photons, reprenons le montage de fluorescence paramétrique de la figure 6.6.9, mais au lieu de détecter les photons émis suivant les deux directions  $\mathbf{u}_1$  et  $\mathbf{u}_2$ , recombinons-les sur une lame semi-réfléchissante S, et intéressons-nous aux signaux de photodétection en D<sub>3</sub> et D<sub>4</sub> (figure 6.11).

Comme au paragraphe 6.6.4.4, les directions  $\mathbf{u}_1$  et  $\mathbf{u}_2$  correspondent à un accord de



FIG. 6.11: Interférences à deux photons. Les photons de chaque paire sont recombinés sur la lame S, et on s'intéresse aux signaux de photodétection en  $D_1$  et  $D_2$ , en particulier aux signaux de double photodétection (coïncidence).

phase exact pour des fréquences  $\omega_1^{(0)}$  et  $\omega_2^{(0)}$ , et on caractérise par l'écart  $\delta$  à ces fréquences une paire de photons de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  émis suivant  $\mathbf{u}_1$  et  $\mathbf{u}_2$  (équations 6.67). L'état du rayonnement sortant du cristal non-linéaire est donc encore décrit, compte tenu du filtrage en directions, par l'expression (6.68).

Pour calculer les probabilités de photodétection en  $D_3$  et  $D_4$  on utilise le point de vue de Heisenberg, et on exprime donc les champs  $\hat{E}_3^{(+)}$  et  $\hat{E}_4^{(+)}$  à la sortie de la lame semi réfléchissante, en fonction des champs  $\hat{E}_1^{(+)}$  et  $\hat{E}_2^{(+)}$  à la sortie du cristal. On écrit d'abord, juste à la sortie de la lame, en prenant les coefficients de transmission et de réflexion égaux (cf. chapitre II)

$$\hat{E}_{3}^{(+)}(\mathbf{r}_{\rm s},t) = \frac{1}{\sqrt{2}} \Big( \hat{E}_{1}^{(+)}(\mathbf{r}_{\rm s},t) + \hat{E}_{2}^{(+)}(\mathbf{r}_{\rm s},t) \Big)$$
(6.79a)

$$\hat{E}_{4}^{(+)}(\mathbf{r}_{\rm s},t) = \frac{1}{\sqrt{2}} \Big( \hat{E}_{1}^{(+)}(\mathbf{r}_{\rm s},t) - \hat{E}_{2}^{(+)}(\mathbf{r}_{\rm s},t) \Big) .$$
(6.79b)

Pour se ramener à la sortie du cristal, on exprime  $\hat{E}_1^{(+)}(\mathbf{r}_s, t)$  et  $\hat{E}_2^{(+)}(\mathbf{r}_s, t)$  comme au paragraphe 6.4.4 ci-dessus, en prenant en compte les temps de propagation  $\tau_1$  et  $\tau_2$  depuis la sortie du cristal jusqu'à la lame s, respectivement suivant les trajets 1 et 2 :

$$\hat{E}_{1}^{(+)}(\mathbf{r}_{s},t) = \sum_{\ell_{1}} \mathcal{E}_{\ell_{1}} \exp\{i\omega_{\ell_{1}}(\tau_{1}-t)\}\,\hat{a}_{\ell_{1}}$$
(6.80a)

$$\hat{E}_{2}^{(+)}(\mathbf{r}_{\rm s},t) = \sum_{\ell_2} \mathcal{E}_{\ell_2} \exp\{i\omega_{\ell_2}(\tau_2 - t)\}\,\hat{a}_{\ell_2} \tag{6.80b}$$

Comme au paragraphe 6.4.4, les modes  $\ell_1$  et  $\ell_2$  qui entrent dans le développement de l'état (6.68) sortant du cristal sont totalement déterminés par le paramètre  $\delta$ , et nous pourrons remplacer  $\ell_1$  par  $\mathbf{u}_1, \delta$  et  $\ell_2$  par  $\mathbf{u}_2, -\delta$  dans les expressions mettant en jeu les champs  $\hat{E}_3^{(+)}$  et  $\hat{E}_4^{(+)}$  et l'état  $|\psi''\rangle$ .

Calculons d'abord le taux de détection simple en D<sub>3</sub>, supposé placé immédiatement à

la sortie de la lame S :

$$w^{(1)}(\mathbf{D}_3, t) = \mathbf{s} \left\| \hat{E}_3^{(+)}(\mathbf{r}_s, t) |\psi''\rangle \right\|^2.$$
 (6.81)

Le calcul de  $\hat{E}_3^{(+)}(\mathbf{r}_s, t) |\psi''\rangle$  fait encore apparaître un développement sur des vecteurs orthogonaux

$$\hat{E}_{3}^{(+)}(\mathbf{r}_{\mathrm{s}},t)|\psi''\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\sum_{\delta} C(\delta) \mathcal{E}_{\omega_{1}} e^{i\omega_{1}(\tau_{1}-t)}|O_{\mathbf{u}_{1},\delta},1_{\mathbf{u}_{2},-\delta}\rangle$$

$$+ \frac{1}{\sqrt{2}}\sum_{\delta} C(\delta) e^{i\omega_{2}(\tau_{2}-t)}|1_{\mathbf{u}_{1},\delta},0_{\mathbf{u}_{2},-\delta}\rangle$$
(6.82)

et on trouve

$$w^{(1)}(\mathbf{D}_3, t) = \frac{s}{2} \sum_{\delta} |C(\delta)|^2 \left( \mathcal{E}_{\omega_1}^2 + \mathcal{E}_{\omega_2}^2 \right), \qquad (6.83)$$

les fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  étant reliées à  $\delta$  par (6.67a) et (6.67b). Le taux de détection par D<sub>3</sub> est donc indépendant du temps. Il en est évidemment de même pour  $w^{(1)}(D_4, t)$ . Comme au paragraphe 6.4.4, on trouve des taux de photo-détections simples constants : les photons arrivent sur les détecteurs avec un débit moyen régulier.

Calculons maintenant le taux de double photo-détection juste derrière S

$$w^{(2)}(\mathbf{D}_3, t; \mathbf{D}_4, t') = s^2 \|\hat{E}_3^{(+)}(\mathbf{r}_s, t) \ \hat{E}_4^{(+)}(\mathbf{r}_s, t') |\psi''\rangle\|^2 .$$
(6.84)

En utilisant (6.79) et (6.80), on obtient

$$\hat{E}_{3}^{(+)}(\mathbf{r}_{s},t)\,\hat{E}_{4}^{(+)}(\mathbf{r}_{s},t')\,|\psi''\rangle = \frac{1}{2}\sum_{\delta}\,C(\delta)\mathcal{E}_{\omega_{1}}\mathcal{E}_{\omega_{2}}\Big(e^{i\omega_{1}(\tau_{1}-t')}\,e^{i\omega_{2}(\tau_{2}-t)} - e^{i\omega_{1}(\tau_{1}-t)}\,e^{i\omega_{2}(\tau_{2}-t')}\Big)|0,0\rangle$$
(6.85)

Comme au paragraphe 6.4.4, le calcul des détections en coïncidence conduit à la mise en facteur du vecteur d'état  $|0,0\rangle$ , le vide, et on a une somme d'amplitudes complexes à effectuer avant de prendre le carré du module.

Pour alléger les calculs, nous supposerons à partir d'ici que  $\omega_1^{(0)} = \omega_2^{(0)} = \frac{\omega_3}{2}$ . En utilisant (6.67a) et (6.67b), on peut exprimer la somme des amplitudes de (6.85) sous la forme

$$A = \frac{1}{2} e^{i\frac{\omega_3}{2}(\tau_1 + \tau_2 - t - t')} \sum_{\delta} \mathcal{E}_{\omega_1} \mathcal{E}_{\omega_2} \left( e^{i\delta(\tau_1 - \tau_2 + t - t')} - e^{i\delta(\tau_1 - \tau_2 - t + t')} \right).$$
(6.86)

Rappelons que  $C(\delta)$  est une fonction en cloche, maximale en  $\delta = 0$ , de largeur typique  $10^{13} \text{ s}^{-1}$ . Pour mener explicitement le calcul jusqu'au bout, on prend une gaussienne de demi-largeur  $\Delta$  (à  $e^{-1/2}$ )

$$C(\delta) = \frac{C_0}{\sqrt{2\pi}\Delta} \exp\left\{-\frac{\delta^2}{2\Delta^2}\right\} , \qquad (6.87)$$

on remplace la somme  $\sum_{\delta}$  par une intégrale, et on sort  $\mathcal{E}_{\omega_1}\mathcal{E}_{\omega_2}$ , qui varie peu sur la largeur  $\Delta$ , de cette intégrale. L'intégrale donne  $A_1 - A_2$ , avec

$$A_{1} = \int d\delta C(\delta) \exp\{i\delta(\tau_{1} - \tau_{2} + t - t')\}$$
  
=  $C_{0} \exp\{-\Delta^{2} \frac{(\tau_{1} - \tau_{2} + t - t')^{2}}{2}\}$  (6.88a)

 $\operatorname{et}$ 

$$A_{2} = \int d\delta C(\delta) \exp\{i\delta(\tau_{1} - \tau_{2} - t + t')\}$$
  
=  $C_{0} \exp\{-\Delta^{2} \frac{(\tau_{1} - \tau_{2} - t - t')^{2}}{2}\}$  (6.88b)

Le taux de détections conjointes vaut en définitive

$$w^{(2)}(\mathbf{D}_3, t; \mathbf{D}_4, t') = \frac{s^2}{4} \mathcal{E}^4_{\omega_3/2} |A_1(t - t') - A_2(t - t')|^2 .$$
(6.89)

Les fonctions  $A_1$  et  $A_2$  sont extrêmement étroites ( $\Delta^{-1}$  vaut typiquement  $10^{-13}$  s), et il n'existe pas de détecteurs, ni d'électronique, ayant une telle résolution temporelle. On va donc supposer qu'en fait on détecte toutes les coïncidences caractérisées par un intervalle de temps t - t' compris dans une fenêtre centrée sur zéro et de largeur beaucoup plus grande que  $\Delta^{-1}$ . On suppose de plus qu'on a ajusté les chemins entre le cristal et la séparatrice de sorte que  $|\tau_1 - \tau_2|$  soit inférieur à la largeur de la fenêtre de coïncidences. Le taux global de coïncidences  $w_c(D_3; D_4)$ , se calcule en intégrant l'expression (6.89) sur  $\theta = t - t'$ , ce qui fait apparaître 3 intégrales

$$\int A_1^2 d\theta = C_0^2 / \sqrt{\pi} \, \Delta^{-1} \tag{6.90a}$$

$$\int A_2^2 d\theta = C_0^2 / \sqrt{\pi} \, \Delta^{-1} \tag{6.90b}$$

$$\int A_1 A_2 d\theta = C_0^2 \exp\{-\Delta^2 (\tau_1 - \tau_2)^2\} \int d\tau \exp\{-\Delta^2 \theta^2\}$$
$$= C_0^2 / \sqrt{\pi} \Delta^{-1} \exp\{-\Delta^2 (\tau_1 - \tau_2)^2\}$$
(6.90c)

Le résultat final s'écrit

$$w_{\rm c}({\rm D}_3;{\rm D}_4) = \frac{s^2}{2} \mathcal{E}_{\omega_3/2}^4 C_0^2 / \sqrt{\pi} \,\Delta^{-1} \Big( 1 - \exp\{-\Delta^2 (\tau_1 - \tau_2)^2\} \Big) \,. \tag{6.91}$$

On constate (figure 6.12) que le taux de détection en coïncidences est constant, sauf autour de  $\tau_1 = \tau_2$  où il s'annule exactement (les temps de propagation de la lumière depuis le cristal jusqu'aux deux côtés de la lame séparatrice sont exactement égaux). La largeur du trou est de l'ordre de  $\Delta^{-1}$ , soit typiquement  $10^{-13}$  s.



FIG. 6.12: Probabilité de double photodétection de part et d'autre de la lame S. Cette probabilité s'annule lorsque les temps de propagation du cristal non-linéaire à la lame S sont exactement égaux. La largeur  $\Delta^{-1}$  du creux est de l'ordre de  $10^{-13}$  s.

### Remarques

(i) Pour ne pas alourdir le calcul ci-dessus, nous avons supposés que les détecteurs  $D_3$  et  $D_4$  sont placés immédiatement après la lame semi-réfléchissante S, ce qui est évidemment irréaliste. En reprenant le calcul ci-dessus, il est facile de vérifier que la prise en compte des temps de propagation  $\tau_3$  et  $\tau_4$  de la lame S aux détecteurs  $D_3$  et  $D_4$  conduit à un résultat inchangé, à condition de remplacer  $\theta = t' - t$  par  $\theta = t' - t + \tau_3 - \tau_4$ . Sur le plan pratique, cela veut dire que la fenêtre de coïncidences doit être centrée sur  $\tau_3 - \tau_4$  et non sur zéro, ce qui était évident a priori.

(ii) On a implicitement supposé que  $C(\delta)$  est réel. Comme au §6.4.4, la prise en compte d'une phase variant linéairement avec  $\delta$  a pour simple effet de décaler (suivant  $\tau_1 - \tau_2$ ) la courbe 6.4.4. En revanche, des termes d'ordre plus élevés sont susceptibles d'élargir le creux.

# 6.4.6 Discussion : photons jumeaux intriqués

Ce résultat est remarquable à plusieurs titres. Tout d'abord, on note qu'il est possible d'obtenir  $w_c$  en fonction de  $\tau_1 - \tau_2$  avec une résolution temporelle bien meilleure que celle des photo-détecteurs, puisqu'elle ne dépend que de la précision avec laquelle on contrôle la différence des temps de propagation jusqu'à la lame S, c'est-à-dire la position de la lame S. En la montant sur des cales piezzo électriques, il est très facile d'obtenir une résolution en position meilleure que le micromètre, c'est-à-dire une résolution en temps (de parcours de la lumière) de quelques femtosecondes  $(10^{-15} \text{ m})$ . La figure 6.13 présente le résultat d'une telle expérience<sup>4</sup>, qui montre que la largeur du creux est bien de l'ordre de  $\Delta^{-1}$ .

Sur le plan conceptuel, ce résultat touche aux propriétés les plus extraordinaires de la physique quantique. Dans cette expérience on a d'abord la manifestation évidente d'un aspect corpusculaire, avec des photons émis par paires. Mais on a en plus le fait que si les deux photons arrivent exactement au même instant sur la lame semi-réfléchissante,

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>C.K. Hong, Z.Y. Ou, et L. Mandel, *Phys. Rev. Lett.* 59, 2044 (1987).



FIG. 6.13: Expérience de Hong, Ou, et Mandel. L'insert montre le taux de coïncidences en fonction du délai entre les temps d'arrivée des photons sur la lame semiréfléchissante BS. Ce délai peut être modifié en déplaçant la lame grâce à un déplacement micrométrique. Lorsque les photons arrivent simultanément, le taux de coïncidences tombe à zéro, ce qui indique que les deux photons sortent du même côté de la lame. La largeur du trou correspond à un déplacement de  $30 \,\mu$ m, soit un délai variant de 100 femtosecondes.

alors, au lieu d'être distribués aléatoirement et indépendamment dans les deux voies de sortie de la lame, ils sortent nécessairement tous les deux dans la même voie, et jamais de part et d'autre de la lame. Cette propriété ne peut évidemment pas se comprendre avec des particules classiques se distribuant aléatoirement de part et d'autre de la lame S: on aurait une coïncidence dans 50% des cas. En revenant sur les calculs par exemple au niveau de l'expression (6.86), on constate que l'annulation du terme de coïncidences résulte d'une interférence destructive entre deux amplitudes de probabilités. Mais ces amplitudes sont associées à des chemins dans un espace de configuration abstrait, où l'on décrit simultanément les deux photons. Plus précisément, l'interférence destructive se produit (pour  $\tau_1 = \tau_2$ ) entre les amplitudes  $\exp\{i\delta\theta\}$  et  $\exp\{-i(-\delta)\theta\}$  associées aux deux processus suivants (voir la figure 6.11) : (a) un photon à  $\omega_3/2 + \delta$  est émis dans la voie 1 puis détecté en  $D_3$ , tandis qu'un photon à  $\omega_3/2 - \delta$  est émis dans la voie 2 et détecté en  $D_4$ ; (b) un photon à  $\omega_3/2 - \delta$  est émis dans la voie 1 puis détecté en  $D_4$ , tandis qu'un photon à  $\omega_3/2 + \delta$  est émis dans la voie 2 puis détecté en  $D_3$ . Rien ne permet de distinguer les deux processus, qui correspondent au même état final où un photon à  $\omega_3/2 + \delta$  est détecté en  $D_3$  tandis qu'un photon à  $\omega_3/2 - \delta$  est détecté en  $D_4$ . Il est donc légitime d'ajouter les amplitudes. Si en revanche les temps de parcours  $\tau_1$  et  $\tau_2$  ne sont pas strictement égaux, il est possible en principe de savoir si une détection est associée au processus (a) ou au processus (b), et on ne doit pas ajouter les amplitudes. Il n'y a plus d'interférence destructive. Notons que l'argument n'exige pas que l'on dispose de

détecteurs capables de résoudre des temps aussi courts. Il suffit que la distinction soit possible en principe, au cas où on disposerait d'appareils parfaits, limités seulement par les règles fondamentales de la physique quantique.

L'analyse élémentaire que nous venons de donner a mis en évidence un état intriqué,

$$|\psi_{\text{intr.}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \Big[ |\mathbf{1}_{\mathbf{u}_{1},+\delta}; \mathbf{1}_{\mathbf{u}_{2},-\delta}\rangle + |\mathbf{1}_{\mathbf{u}_{1},-\delta}; \mathbf{1}_{\mathbf{u}_{2},+\delta}\rangle \Big]$$
(6.92)

superposition de deux états à deux photons :

- l'état  $|1_{\mathbf{u}_1,+\delta}; 1_{\mathbf{u}_2,-\delta}\rangle$  où un photon de fréquence  $\omega_3/2 + \delta$  est émis dans la voie  $\mathbf{u}_1$ , et un photon à  $\omega_3/2 \delta$  est émis dans la voie  $\mathbf{u}_2$ ;
- l'état  $|1_{\mathbf{u}_1,-\delta}; 1_{\mathbf{u}_2,+\delta}\rangle$  où un photon à  $\omega_3/2 \delta$  est émis dans la voie  $\mathbf{u}_1$  et un photon à  $\omega_3/2 + \delta$  est émis dans la voie  $\mathbf{u}_2$ .

Une propriété remarquable de cet état intriqué est qu'il est impossible de le mettre sous la forme du produit tensoriel

$$|\psi_{\text{fact.}}\rangle = |\phi_{\mathbf{u}_1}\rangle \otimes |\chi_{\mathbf{u}_2}\rangle \tag{6.93}$$

d'un état associé à un photon dans la voie  $\mathbf{u}_1$  par un état associé à un photon dans la voie  $\mathbf{u}_2$ . Sur le plan mathématique, cette propriété n'a rien de surprenant : il est bien connu que la plupart des vecteurs de l'espace produit tensoriel  $\mathcal{E}_1 \otimes \mathcal{E}_2$  ne peuvent être factorisés en un vecteur  $|\phi_{\mathbf{u}_1}\rangle$  de l'espace  $\mathcal{E}_1$  et un vecteur  $|\chi_{\mathbf{u}_2}\rangle$  de l'espace  $\mathcal{E}_2$ . L'interprétation physique de tels états soulève en revanche de nombreuses questions, dans la mesure où la paire de photons décrite par un état non factorisable possède des propriétés globales dont on ne peut rendre compte en attribuant des propriétés particulières à chacun des deux photons. Ainsi, on ne peut pas attribuer une fréquence donnée au photon émis dans la direction  $\mathbf{u}_1$ , pas plus qu'à celui émis dans la direction  $\mathbf{u}_2$ . Dans l'état (6.92), on pourrait dire que le photon émis suivant  $\mathbf{u}_1$  à 50% de chance d'avoir la fréquence  $+\delta$ , et 50% de chance d'avoir la fréquence  $-\delta$ . Mais cela ne rend pas compte des propriétés globales de la paire, par exemple le fait que les deux photons vont sortir dans la même voie.

Les interférences à deux photons des états intriqués conduisent à un certain nombre de propriétés extraordinaires, dont le phénomène de Hong, On et Mandel n'est qu'un exemple. Lorsque les photons sont séparés dans l'espace, on peut observer des comportements « non-locaux », incompatibles avec une vision classique du monde « à la Einstein », comme Einstein et Bohr en avaient eu l'intuition dès 1935 (voir le complément II.3). Les propriétés de l'intrication ont également conduit à imaginer de nouvelles méthodes de traitement et de transmission de l'information, donnant naissance à la discipline nouvelle de l'information quantique<sup>5,6</sup>.

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>A. Aspect et P. Grangier, « *De l'article de Einstein, Podolsky et Rosen à l'information quantique : les stupéfiantes propriétés de l'intrication* », in « Einstein 2005 », éditions du CNRS (2005). Voir aussi : A. Aspect et P. Grangier, « *Des intuitions d'Einstein aux bits quantiques* », Pour la Science, décembre 2004.

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup>M.A. Nielsen and I. Chuang-Isaac, « Quantum Computation and Quantum Information », Cambridge

# 6.5 Conclusion

L'optique non-linéaire est d'abord une technique extrêmement puissante, à la base de nombreuses applications d'optique moderne. Dans le domaine des lasers, l'optique nonlinéaire permet par exemple de produire des faisceaux cohérents à de nouvelles fréquences, en partant de fréquences où existent déjà des lasers. Par ailleurs, les effets non-linéaires comme l'effet Kerr (voir complément) permettent de contrôler un signal lumineux à l'aide d'un autre signal lumineux, et jouent donc un rôle important en traitement optique de l'information. C'est aussi l'effet Kerr optique qui permet la propagation sans étalement d'impulsions ultrabrèves de type soliton, ou la bistabilité optique.

Les applications évoquées ci-dessus peuvent souvent se comprendre dans le formalisme semi-classique de l'optique non-linéaire. Mais nous avons aussi montré dans la partie 6.4 qu'il existe toute une classe de phénomènes qui ne peuvent se décrire que dans le cadre de l'optique quantique, un exemple spectaculaire étant la création de paires de photons jumeaux intriqués. Si ces phénomènes relèvent d'abord de la recherche fondamentale, il y a également des perspectives d'application dans le domaine du traitement quantique de l'information. Mais ceci est une autre histoire...

University Press (2003).

J. Preskill, Course Notes for Physics 219, « *Quantum Computation* », http://www.theory.caltech.edu/ preskill/ph219.

# Complément 6A Optique non-linéaire dans les milieux Kerr optiques

Ce complément présente plusieurs exemples de phénomènes d'optique dans les milieux Kerr où l'indice de réfraction dépend linéairement de l'intensité. Après avoir, dans la Partie 6A.1, discuté l'origine de la variation de l'indice avec l'intensité pour plusieurs systèmes physiques (atome à deux niveaux, atome soumis au pompage optique, etc ... ), nous présentons trois applications de l'effet Kerr optique (qui peuvent être étudiées dans un ordre quelconque). Nous commençons par décrire un système optique bistable (milieu non linéaire dans une cavité Fabry-Perot) et nous montrons les applications potentielles de ce système pour la réalisation de mémoires optiques (Partie 6A.2). Nous étudions ensuite les miroirs à conjugaison de phase et nous montrons les possibilités de ces miroirs en optique adaptative (Partie 6A.3). Nous exposons enfin quelques effets se produisant lors de la propagation d'une onde isolée limitée soit transversalement, soit temporellement dans un milieu Kerr et nous discutons les effets d'autofocalisation (Partie 6A.4) et d'automodulation de phase (Partie 6A.5). Nous montrons en particulier que les effets non-linéaires et les effets de dispersion peuvent se compenser pour donner des structures stables ne se déformant pas au cours de la propagation : les solitons.

Ce chapitre est suivi de quatre compléments. Les compléments V.1 et V.2 rappellent les données essentielles sur les cavités Fabry-Perot et sur les faisceaux gaussiens. Le complément V.3 présente quelques résultats importants sur l'optique non-linéaire dans les milieux non-centrosymétriques : doublage de fréquence, effet paramétrique. Enfin, le complément V.4 présente le fonctionnement de l'oscillateur paramétrique qui engendre des ondes dans le domaine optique et qui utilise l'effet paramétrique comme mécanisme de gain.

# 6A.1 Exemples de non-linéarités Kerr

# 6A.1.1 Réponse non-linéaire d'atomes à deux niveaux

### a. Susceptibilité non-linéaire

Nous commençons par étudier une situation simple d'interaction non-linéaire : celui d'un système quantique à deux niveaux soumis à une onde plane. Ce modèle permet, grâce à la simplicité des calculs, de dégager rapidement quelques caractéristiques essentielles des phénomènes qui peuvent être généralisés ensuite à des systèmes plus compliqués. Mentionnons en outre que nous traitons ici le champ comme une variable classique.

Lorsqu'un champ électrique est appliqué à un ensemble d'atomes ou de molécules, le déplacement des charges électriques conduit à la création de moments électriques dipolaires. Pour de faibles valeurs du champ électrique et en supposant le milieu isotrope, ces dipôles induits sont proportionnels au champ électrique et alignés le long de celui-ci. Cependant, lorsque le champ électrique croît, les dipôles ne croissent plus linéairement avec le champ appliqué (saturation). Ainsi, dans le cours d'Optique Quantique I, chapitre II, nous avons montré que pour des atomes à deux niveaux, le moment dipolaire moyen par unité de volume  $\mathbf{P}(\mathbf{r},t)$  (encore appelé polarisation du milieu) est relié au champ électrique incident  $\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = E_0 \vec{\varepsilon} \cos(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$  par une relation de la forme :

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_0 \operatorname{Re} \left\{ (\chi' + i\chi'') E_0 \exp i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t) \right\} \vec{\varepsilon}$$
(6A.1a)

ou

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_0 \left\{ \chi' E_0 \cos(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + \chi'' E_0 \sin(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \right\} \vec{\varepsilon}$$
(6A.1b)

Les susceptibilités  $\chi'$  et  $\chi''$  peuvent être calculées en cherchant la solution stationnaire des équations de Bloch optiques. Dans le cas d'une relaxation purement radiative due à l'émission spontanée, on trouve :

$$\chi' = \frac{N}{V} \frac{d^2}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{\omega_0 - \omega}{\frac{\Gamma_{sp}^2}{4} + \frac{\Omega_1^2}{2} + (\omega_0 - \omega)^2}$$

$$\chi'' = \frac{N}{V} \frac{d^2}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{\frac{\Gamma_{sp}}{2}}{\frac{\Gamma_{sp}^2}{4} + \frac{\Omega_1^2}{2} + (\omega_0 - \omega)^2}$$
(6A.2)

Dans ces formules, N/V est le nombre d'atomes par unité de volume, d est l'élément de matrice du dipôle électrique entre les deux niveaux considérés,  $\omega - \omega_0$  est l'écart à résonance,  $\Gamma_{sp}$  est l'inverse de la durée de vie radiative du niveau excité et  $\Omega_1 = -dE_0/\hbar$ est la pulsation de Rabi à résonance. La saturation du dipôle optique se manifeste par la présence du terme en  $(\Omega_1)^2$  proportionnel à l'intensité lumineuse, au dénominateur des formules (6A.2). Il faut noter que les formules (6A.2) ont été démontrées à l'approximation quasi-résonnante, c'est-à-dire pour  $|\omega_0 - \omega| \ll \omega_0$ . Nous supposerons cette condition satisfaite. De plus, nous nous limiterons à des situations où les effets dispersifs, liés à  $\chi'$ , sont prédominants par rapport aux effets d'absorption, liés à  $\chi''$ , ce qui est le cas lorsque :

$$|\omega_0 - \omega| \gg \Gamma_{sp} \tag{6A.3}$$

Quand (6A.3) est vérifié,  $\chi''$  est très petit devant  $\chi'$  et  $\Gamma_{sp}$  peut être négligé au dénominateur de la formule donnant  $\chi'$ :

$$\chi' = \frac{N}{V} \frac{d^2}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{\omega_0 - \omega}{\frac{\Omega_1^2}{2} + (\omega_0 - \omega)^2}$$
(6A.4)

Si de plus l'écart à résonance  $|\omega_0 - \omega|$  est grand devant la pulsation de Rabi à résonance  $\Omega_1$ , il est possible de faire un développement perturbatif de la formule (6A.4) en fonction de  $\Omega_1/|\omega_0 - \omega|$ . En nous limitant aux deux premiers termes du développement, nous obtenons

$$\chi' = \chi'_1 + \chi'_3 I + \dots$$
 (6A.5)

où  $\chi'_1$  est la susceptibilité linéaire,  $\chi'_3$  la susceptibilité non-linéaire d'ordre le plus bas et  $I = E_0^2/2$  est l'intensité du champ incident. Des équations (6A.4) et (6A.5), nous déduisons les valeurs suivantes de  $\chi'_1$  et  $\chi'_3$ :

$$\chi_1' = \frac{N}{V} \frac{d^2}{\varepsilon_0 \hbar(\omega_0 - \omega)}$$
(6A.6a)

$$\chi_3' = -\frac{N}{V} \frac{d^4}{\varepsilon_0 \hbar^3 (\omega_0 - \omega)^3}$$
(6A.6b)

Le signe de  $\chi'_3$  est *opposé* à celui de  $\chi'_1$  comme cela est naturel pour un effet de *saturation*. Notons que le signe de  $\chi'_3$  change de part et d'autre de la résonance. Nous verrons dans la partie 6A.4 que des effets physiques très différents se produisent selon le signe de  $\chi'_3$ . Il est donc possible d'explorer ces différents effets en se plaçant d'un côté ou de l'autre de la résonance.

### Remarque

Dans le cas où la relaxation n'est pas purement radiative, on trouve pour  $\chi'_3$ :

$$\chi'_{3} = -\frac{2\gamma}{\Gamma_{sp}} \frac{N}{V} \frac{d^4}{\varepsilon_0 \hbar^3 (\omega_0 - \omega)^3}$$
(6A.6c)

où  $\gamma$  est le taux de relaxation de la cohérence optique. En particulier, dans le cas où la relaxation a une composante radiative et une composante collisionnelle, on obtient :

$$\chi'_{3} = -\left(1 + \frac{2\gamma_{\text{coll}}}{\Gamma_{\text{sp}}}\right) \frac{N}{V} \frac{d^{4}}{\varepsilon_{0}\hbar^{3}(\omega_{0} - \omega)^{3}}$$
(6A.6d)

Loin de résonance, la susceptibilité non-linéaire croît dans un environnement collisionnel. Cela est dû à ce que les collisions facilitent les transitions du niveau inférieur de la transition au niveau supérieur en fournissant, ou en extrayant, l'énergie  $\hbar |\omega - \omega_0|$ . De ce fait, les populations s'équilibrent plus facilement, ce qui favorise la saturation et donc les effets non linéaires<sup>1</sup>.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Pour une revue de ce domaine, voir G.S. Agarwal Adv. in Atom. and Mol. Phys. **29**, 113 (1992). La première observation d'un effet induit par collision en optique non linéaire a été réalisée par Y. Prior. A.R. Bogdan, M. Dagenais et N. Bloembergen, Phys. Rev. Lett. **46**, 111 (1981). Pour le cas des atomes à deux niveaux, voir par exemple G. Grynberg et P.R. Berman Phys. Rev. A **39**, 4016 (1989).

Dans la suite, nous aurons souvent besoin de décomposer la polarisation  $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$  en une partie linéaire  $\mathbf{P}_L(\mathbf{r}, t)$  proportionnelle à  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  et une partie non linéaire  $\mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, t)$  égale par définition à  $(\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) - \mathbf{P}_L(\mathbf{r}, t))$ . Dans le cas où l'onde incidente est une onde plane progressive, on trouve en utilisant le développement (6A.5) de la susceptibilité et en se limitant aux termes non-linéaires d'ordre le plus bas :

$$\mathbf{P}_{L}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_{0} \,\chi_{1}^{\prime} \,\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$$

$$\mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_{0} \,\chi_{3}^{\prime} I \,\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$$
(6A.7)

### b. Indice non-linéaire

D'après (6A.5), l'indice de réfraction du milieu  $n = \sqrt{1 + \chi'}$  s'écrit :

$$n = n_0 + n_2 I + \dots \tag{6A.8}$$

où  $I = E_0^2/2$  est l'intensité lumineuse,

$$n_0 = \sqrt{1 + \chi_1'} \tag{6A.9a}$$

 $\operatorname{et}$ 

$$n_2 = \frac{\chi'_3}{2n_0} \tag{6A.9b}$$

Pour un milieu dilué ( $|\chi'| \ll 1$ ), les formules précédentes peuvent être simplifiées :

$$n_0 = 1 + \frac{\chi_1'}{2} \tag{6A.9c}$$

$$n_2 = \frac{\chi'_3}{2} \tag{6A.9d}$$

Le premier terme  $n_0$  est l'indice de réfraction habituel de l'optique. Le terme suivant,  $n_2I$ , corrige l'indice d'une quantité proportionnelle à l'intensité du champ incident. Ce phénomène est appelé « effet Kerr optique » car il est analogue pour des champs électriques oscillants à l'effet Kerr habituel (à savoir une modification de l'indice d'un milieu sous l'effet d'un champ électrostatique). Nous verrons dans la suite quelques effets provenant de la variation de l'indice en fonction de la puissance locale de l'onde.

L'ordre de grandeur relatif du terme non linéaire  $n_2I$  et du terme linéaire  $n_0$  dépend beaucoup du matériau considéré (et de l'intensité lumineuse). Il peut atteindre  $10^{-2}$  pour un milieu gazeux au voisinage immédiat de la résonance et pour un laser continu de puissance modéré, mais il est généralement beaucoup plus petit. Plus que ce rapport, le paramètre important pour de nombreuses applications est l'ordre de grandeur relatif de la non-linéarité dispersive et du coefficient d'absorption linéaire. La figure 6A.1 présente ces paramètres pour quelques milieux couramment utilisés en optique non linéaire.



FIG. 6A.1: Module de  $(\chi'_3)$ , susceptibilité non linéaire d'ordre 3 en fonction de l'absorption (coordonnées logarithmiques<sup>2</sup>). L'unité pour  $\chi'_3$  est le  $(m/V)^2$  et l'unité pour l'absorption est le cm<sup>-1</sup>. La droite correspond aux valeurs obtenues pour un ensemble d'atomes à deux niveaux pour une densité de 10<sup>13</sup> atomes par cm<sup>3</sup> et pour une valeur variable du désaccord à résonance  $\delta = \omega - \omega_0$ . On notera que log $(\chi'_3)$  est proportionnel à  $3/2 \log(\chi'')$  puisque, loin de la résonance,  $\chi'_3$  varie comme  $\delta^{-3}$  et  $\chi''$  comme  $\delta^{-2}$ .

### Remarque

Dans beaucoup de diélectriques, le coefficient  $\chi'_3$  est *positif* pour des ondes électromagnétiques dans le domaine visible. Un tel résultat peut paraître surprenant puisqu'un diélectrique peut souvent être modélisé par un modèle d'atome à deux niveaux avec une fréquence de résonance se situant dans le domaine ultra-violet et que  $\chi'_3$  est négatif pour des atomes à deux niveaux lorsque  $\omega < \omega_0$  (voir Eq. 6A.6b). En fait, lorsque  $\omega \ll \omega_0$ , il y a deux contributions, d'origine électronique, au coefficient  $\chi'_3$ . La première est l'effet de saturation de la transition à un photon conduisant à un signe identique à celui de l'équation (6A.6b). La seconde est associée à une transition à deux photons (voir § 6A.1.3.b) non résonnante vers les niveaux excités. Il apparaît que cette seconde contribution est souvent prédominante et qu'elle impose son signe opposé au signe de la saturation.

### c. Cas où l'onde incidente diffère d'une onde plane

Notons que nous pouvons généraliser les résultats du paragraphe (6A.1.1) et en particulier la décomposition de la polarisation en ses composants linéaire et non-linéaire au cas où les atomes à deux niveaux, supposés immobiles, interagissent avec un champ monochromatique  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  de polarisation  $\vec{\boldsymbol{\varepsilon}}$  pouvant différer d'une onde plane. Partant de :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \vec{\boldsymbol{\varepsilon}} \operatorname{Re}\left[\boldsymbol{\mathcal{E}}(\mathbf{r}) \exp(-i\omega t)\right]$$
(6A.10)

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Cette figure est inspirée de l'article de L. Hilico, J.M. Courty, C. Fabre, E. Giacobino, I. Abram et J.L. Oudar, Appl. Phys. B **55**, 202 (1992).

on trouve, en calquant la démarche sur celle conduisant de l'équation (6A.1) à l'équation (6A.7), qu'il suffit de remplacer  $\Omega_1$  par une fréquence de Rabi  $|d\mathcal{E}(\mathbf{r})|/\hbar$  dépendant de la position. On obtient ainsi :

$$\mathbf{P}_{L}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_{0}\chi_{1}'\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$$

$$\mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_{0}\chi_{3}'I\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$$
(6A.11)

où  $I(\mathbf{r}) = |\mathcal{E}(\mathbf{r})|^2/2$  est l'intensité locale de l'onde.

# 6A.1.2 Non-linéarités par pompage optique

Le pompage optique (voir Complément II.1 du cours « Optique Quantique 1 ») conduit lui aussi à un indice de réfraction dépendant de l'intensité. A titre d'exemple, considérons une transition reliant un niveau fondamental de moment cinétique  $J_a = 1/2$  à un niveau excité de moment cinétique  $J_b = 1/2$  (figure 6A.2). Sous l'action d'une onde polarisée  $\sigma_+$  d'amplitude  $E_+$  (voir Complément II.1, § A.3), les atomes sont pompés optiquement du niveau  $m_a = -1/2$ vers le niveau  $m_a = +1/2$ . Ceci peut s'exprimer mathématiquement sous la forme des équations de pompage suivantes pour les populations  $N_-$  et  $N_+$  des sous-niveaux Zeeman  $m_a = -1/2$  et  $m_a = +1/2$  du niveau fondamental :

$$\left(\frac{dN_{-}}{dt}\right)_{\text{pomp}} = -K_p E_{+}^2 N_{-} \tag{6A.12a}$$

$$\left(\frac{dN_+}{dt}\right)_{\text{pomp}} = K_p E_+^2 N_- \tag{6A.12b}$$

où  $K_p$  est donné par l'expression suivante valable pour une excitation non résonnante (que l'on peut trouver par une méthode analogue à celle présentée dans le § C du Complément II.1 du cours « Optique Quantique 1 »)<sup>3</sup> :

$$K_p = \frac{\Gamma_{\rm sp}}{12} \frac{d^2}{\hbar^2 (\omega_0 - \omega)^2} \tag{6A.12c}$$

avec  $d = \langle b, +1/2 | \hat{\mathbf{D}} \cdot \vec{\boldsymbol{\varepsilon}}_+ | a, -1/2 \rangle.$ 

Le pompage optique est en compétition avec les *phénomènes de relaxation* dans le milieu (collisions entre atomes, collisions contre les parois, champ magnétique fluctuant) qui tendent à égaliser les populations des sous-niveaux Zeeman. L'effet de la relaxation est donc décrit par une équation phénoménologique décrivant le retour à l'équilibre avec un temps caractéristique  $1/\gamma_R$ :

$$\left(\frac{d(N_+ - N_-)}{dt}\right)_{\text{relax}} = -\gamma_R (N_+ - N_- \tag{6A.13})$$

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Le coefficient numérique apparaissant dans la formule (6A.12c) provient de la valeur des coefficients de Clebsch-Gordan de la transition  $1/2 \rightarrow 1/2$  considérée. Pour une autre transition, susceptible de donner lieu à du pompage optique, le coefficient numérique serait généralement différent mais la dépendance en fonction des paramètres physiques (désaccord etc...) serait la même.

En régime permanent, les effets de pompage optique et de relaxation s'équilibrent, ce qui conduit à l'équation

$$\left[\frac{d(N_{+} - N_{-})}{dt}\right]_{\text{pomp}} + \left[\frac{d(N_{+} - N_{-})}{dt}\right]_{\text{relax}} = 2K_{p}E_{+}^{2}N_{-} - \gamma_{R}(N_{+} - N_{-}) = 0$$
(6A.14)

Dans le cas où la transition couplant le niveau fondamental et le niveau excité n'est pas saturée (population négligeable dans les niveaux excités), nous trouvons en appelant N la population totale  $(N_+ + N_- = N)$ :



FIG. 6A.2: Transfert de population du sous-niveau  $m_a = -1/2$  au sous-niveau  $m_a = 1/2$  sous l'action d'une onde polarisée circulairement  $\sigma_+$ .

Si l'intensité de l'onde incidente est trop faible pour saturer la transition entre les niveaux a et b, la susceptibilité du milieu pour une onde incidente polarisée  $\sigma_+$  est d'après la formule (6A.6a) égale à :

$$\chi' = \frac{N_-}{V} \frac{d^2}{\varepsilon_0 \hbar(\omega_0 - \omega)} \tag{6A.16}$$

c'est-à-dire en utilisant (6A.15):

$$\chi' = \frac{N}{2V} \frac{d^2}{\varepsilon_0 \hbar(\omega_0 - \omega)} \frac{1}{1 + \frac{K_p E_+^2}{\gamma_B}}$$
(6A.17)

Nous retrouvons une susceptibilité dépendant de l'intensité, mais l'origine de la non-linéarité est ici associée à l'existence de transferts de population entre sous niveaux Zeeman du niveau inférieur de la transition. En pratique, ces non-linéarités dues au pompage optique s'observent avec des intensités *bien inférieures* à celles nécessaires pour saturer une transition atomique. A la limite  $K_p E_+^2 \ll \gamma_R$  et pour un milieu dilué, il est possible de développer la formule (6A.17) ce qui, en posant  $I = E_+^2/2$ , conduit à une formule semblable à la formule (6A.8) mais avec

$$n_0 = 1 + \frac{N}{V} \frac{d^2}{4\varepsilon_0 \hbar(\omega_0 - \omega)}$$
(6A.18a)

$$n_2 = -\frac{N}{V} \frac{K_p}{2\gamma_R} \frac{d^2}{\varepsilon_0 \hbar(\omega_0 - \omega)}$$
(6A.18b)

Remarquons qu'en remplaçant  $K_p$  par l'expression donnée dans la formule (??c), on trouve

$$n_2 = \frac{\Gamma_{\rm sp}}{24\gamma_R} \left[ -\frac{N}{V} \frac{d^4}{\varepsilon_0 \hbar^3 (\omega_0 - \omega)^3} \right]$$
(6A.18c)

Ce résultat est semblable à celui obtenu dans le cas de la saturation de la transition électronique (Eqs 6A.9d et 6A.6b) à un facteur de l'ordre de  $\Gamma_{\rm sp}/\gamma_R$  près. Comme ce facteur est généralement très grand devant 1 (un ordre de grandeur typique est 10<sup>3</sup>), il s'ensuit que, lorsqu'elles existent, les non-linéarités dues au pompage optique sont bien plus grandes que les non-linéarités électroniques. Elles sont, en revanche, plus lentes à s'établir.

#### Remarque

Notons qu'à cause de l'effet Doppler, le pompage optique de  $m_a = -1/2$  vers  $m_a = 1/2$ est sélectif en vitesse si l'onde incidente est monochromatique et accordée au voisinage de la résonance. Si on sonde le milieu avec un faisceau laser supplémentaire de faible intensité, polarisé  $\sigma_-$  (et donc sensible à la population du niveau m = 1/2), on obtient un signal résonnant lorsque la fréquence de ce second faisceau permet d'interagir avec la classe de vitesse ayant subi le pompage optique. Si le faisceau de pompage et le faisceau sonde ont mêmes fréquences et se propagent en sens opposé, on obtient ainsi, en balayant la fréquence, des signaux de spectroscopie sans élargissement Doppler analogues aux signaux d'absorption saturée (voir cours « Optique Quantique 1 », Complément III.5). Cette méthode s'appelle « pompage optique sélectif en vitesse »<sup>4</sup>.

# 6A.1.3 Autres non-linéarités Kerr

### a. Orientation de molécules

Une dépendance linéaire de l'indice de réfraction avec l'intensité incidente se rencontre également dans de nombreux fluides constitués de molécules anisotropes, par exemple CS<sub>2</sub> (voir figure 6A.1). Cette molécule a la forme d'un cigare et sa polarisabilité (c'est-à-dire le rapport entre le dipole induit et le champ électrique appliqué<sup>5</sup>) diffère selon que le champ, supposé polarisé linéairement, est appliqué le long de l'axe de symétrie du cigare (polarisabilité  $\alpha_{//}$ ) ou selon une direction perpendiculaire (polarisabilité  $\alpha_{\perp}$ ). Comme  $\alpha_{//}$  est plus grand que  $\alpha_{\perp}$ , les molécules ont tendance à s'aligner le long de la polarisation du champ électrique incident, leur énergie potentielle étant alors égale (en valeur moyenne sur le temps<sup>6</sup>) à  $-(1/2)\alpha_{//}I$ . Cependant, à cet

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>Pour plus de détails, voir M. Pinard, C. Aminoff et F. Lalöe, Phys. Rev. A **19**, 2366 (1979).

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>Pour un milieu isotrope, la polarisabilité  $\alpha$  est définie par  $\alpha = \langle \hat{D} \rangle / \varepsilon_0 E$ . Elle est reliée à la susceptibilité électrique  $\chi$  par la relation  $\chi = (N/V)\alpha$ .

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup>Le temps de relaxation de l'orientation des molécules est typiquement de l'ordre de quelques picosecondes. Pour une onde lumineuse, la molécule ne peut pas suivre les variations temporelles à l'échelle de la période optique et seul intervient la valeur moyenne de  $E^2(t)$ , c'est-à-dire l'intensité I.

effet s'oppose l'agitation thermique des molécules qui tend à rendre leur orientation isotrope. Il existe un équilibre entre ces deux effets d'où il résulte une orientation des molécules le long du champ incident qui est d'autant meilleure que le champ est plus grand. Cela se traduit par une variation de l'indice avec l'amplitude du champ. On trouve ainsi<sup>7</sup>:

$$n_0 = \sqrt{1 + \frac{N}{V} \frac{(\alpha_{//} + 2\alpha_{\perp})}{3}}$$
(6A.19a)

$$n_2 = \frac{N}{V} \frac{\varepsilon_0}{45n_0} \frac{(\alpha_{//} - \alpha_\perp)^2}{k_B T}$$
(6A.19b)

Notons que dans cette situation,  $n_2$  est toujours positif.

#### b. Transition à deux photons

En dehors des situations décrites ci-dessus, il existe de nombreux autres processus susceptibles de conduire à un effet Kerr optique. Même si nous ne développerons pas ici les calculs, il est important de signaler qu'au voisinage d'une *transition à deux photons* (voir cours « Optique Quantique 1 », Complément III.5), l'indice dépend de l'intensité même lorsque la transition n'est pas saturée (puisqu'une *absorption à deux photons* est fondamentalement un effet *non-linéaire*.

# 6A.1.4 Propagation des champs dans un milieu Kerr

Dans un milieu diélectrique, le champ électrique  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  obéit à l'équation de propagation :

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}$$
(6A.20)

Décomposons la polarisation en ses composantes linéaire et non-linéaire (voir Eq. (6A.11)). Comme  $\mathbf{P}_L(\mathbf{r},t) = \varepsilon_0 \chi'_1 \mathbf{E}(\mathbf{r},t)$ , la partie linéaire de la polarisation donne un terme proportionnel à la dérivée temporelle seconde du champ **E**. Il se regroupe avec le second terme du premier membre de (6A.20) et donne, compte tenu de la définition (6A.9a) de l'indice du milieu  $(n_0 = \sqrt{1 + \chi'_1})$ :

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{n_0^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2} \tag{6A.21}$$

Pour utiliser cette équation, il faut généralement faire des approximations. Dans le cas de l'optique, une approximation naturelle est l'approximation de l'enveloppe lentement variable. Elle consiste à décrire la solution de (6A.21) comme une superposition d'ondes planes dont l'amplitude varie lentement à l'échelle de la longueur d'onde. On écrira en supposant que ces ondes ont toutes la même polarisation  $\vec{\epsilon}$ :

$$\mathbf{E} = \vec{\boldsymbol{\varepsilon}} \operatorname{Re} \left\{ \sum_{j} \mathcal{E}_{j}(\mathbf{r}) \exp i(\mathbf{k}_{j} \cdot \mathbf{r} - \omega t) \right\}$$
(6A.22)

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup>Voir par exemple R.W. Boyd, Nonlinear Optics § 4.4 (Academic Press, 1992.

où  $\mathcal{E}_j$  est l'amplitude complexe<sup>8</sup> de l'onde. Parmi les termes de la polarisation non-linéaire donnée en (6A.11), seuls ceux ayant une phase dont la dépendance en **r** et *t* est proche de celle d'une onde plane<sup>9</sup> auront une contribution significative à l'évolution des champs dans un milieu suffisamment long pour que les effets de propagation soient sensibles<sup>10</sup>. Nous ne conservons que ces termes que l'on peut écrire :

$$\mathbf{P}_{NL} \cong \vec{\boldsymbol{\varepsilon}} \operatorname{Re} \left\{ \sum_{j} \mathcal{P}_{NL}^{(j)}(\mathbf{r}) \exp i(\mathbf{k}_{j} \cdot \mathbf{r} - \omega t) \right\}$$
(6A.23)

En portant (6A.22) et (6A.23) dans (6A.21) et en identifiant dans le premier et le second membre les termes ayant la même fréquence spatiale, on obtient :

$$\Delta \mathcal{E}_j + \frac{n_0^2 \omega^2}{c^2} \mathcal{E}_j = -\frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2} \mathcal{P}_{NL}^{(j)}$$
(6A.24)

Supposons, à titre d'exemple, qu'une des ondes se propage dans la direction Oz. En appelant  $\mathcal{E}(z)$  l'amplitude complexe locale de cette onde et en posant  $k = \omega n_0/c$  (vecteur d'onde dans le milieu), l'équation (6A.24) devient :

$$-\frac{d^2\mathcal{E}}{dz^2} + 2ik\frac{d\mathcal{E}}{dz} = -\frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2}\mathcal{P}_{NL}(z)$$
(6A.25)

où  $\mathcal{P}_{NL}(z)$  est la composante de Fourier spatiale de la polarisation non-linéaire (6A.23) dans la direction Oz. L'approximation de l'enveloppe lentement variable, qui a son origine dans la petitesse des effets non linéaires, permet de négliger la dérivée seconde  $d^2\mathcal{E}(z)/dz^2$ par rapport au terme en  $kd\mathcal{E}(z)/dz$  dans l'équation (6A.25) puisque la longueur caractéristique d'évolution de  $\mathcal{E}(z)$  est grande devant la longueur d'onde  $2\pi/k$ . En conséquence, l'équation d'évolution de  $\mathcal{E}(z)$  utilisée dans la suite a pour forme :

$$\frac{d}{dz}\mathcal{E}(z) = \frac{i\omega}{2n_0\varepsilon_0 c}\mathcal{P}_{NL}(z) \tag{6A.26}$$

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup>Nous avons introduit la *notation* complexe pour les champs *réels*  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{P}$  en précisant notre convention. En effet, la notation complexe est utilisée selon les auteurs de deux façons : soit  $\mathbf{E}$  est la partie réelle de l'expression du deuxième membre, soit  $\mathbf{E}$  est la somme du deuxième membre et de son complexe conjugué. L'une et l'autre conventions peuvent être utilisées mais il convient d'adopter les mêmes pour  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{P}_{NL}$ . De surcroît, dans le calcul de termes non linéaires comme  $\mathbf{P}_{NL}$ , les coefficients numériques peuvent être différents (par une puissance de 2) selon la convention choisie.

<sup>&</sup>lt;sup>9</sup>En pratique, cela revient à négliger des termes dont la phase est de la forme exp $i[\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega t]$  avec  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_j - \mathbf{k}_l$  et pour lesquels  $|\mathbf{q}|$  est très différent de  $n_0(\omega/c)$ . En effet, si le milieu est suffisamment long, les contributions associées à un tel terme provenant de divers points  $\mathbf{r}$  interfèrent destructivement et ne peuvent engendrer une ondes se propageant.

<sup>&</sup>lt;sup>10</sup>Dans la partie 6A.3, on présente sur un cas particulier la façon dont cette procédure est mise en œuvre.

### Remarque

Considérons, à titre d'exemple, le cas de la polarisation non-linéaire créée par deux ondes progressives se propageant en sens opposé. Le champ électrique est donné par l'équation (6A.10) avec :

$$\mathcal{E}(\mathbf{r}) = \mathcal{E}_1 \exp(ikz) + \mathcal{E}_2 \exp(-ikz) \tag{6A.27}$$

En utilisant (6A.11) et (6A.23), on trouve :

$$\mathcal{P}_{NL}^{(1)} = \varepsilon_0 \chi_3' (I_1 + 2I_2) \mathcal{E}_1$$

$$\mathcal{P}_{NL}^{(2)} = \varepsilon_0 \chi_3' (2I_1 + I_2) \mathcal{E}_2$$
(6A.28)

En portant (6A.28) dans les équations analogues à (6A.26) pour chacune des ondes progressives, on trouve en résolvant ces équations qu'il est possible de définir un indice dépendant des intensités pour chacune des ondes progressives et que l'indice de l'onde  $\mathcal{E}_1$ , par exemple, est égal à :

$$n^{(1)} = n_0 + n_2(I_1 + 2I_2) \tag{6A.29}$$

où  $n_0$  et  $n_2$  sont donnés par les formules (6A.9). On remarquera que l'action de l'onde  $\mathcal{E}_2$  sur l'onde  $\mathcal{E}_1$  diffère de l'action de l'onde  $\mathcal{E}_1$  sur elle-même. Cet effet de non-réciprocité est mis à profit dans certaines expériences d'optique non-linéaire.

Il convient toutefois de noter que le facteur 2 entre l'effet induit par l'autre onde propre à une onde apparaissant dans la formule (6A.29) n'est pas universel. Même pour des atomes à deux niveaux, un facteur différent (compris entre 1 et 2) peut être trouvé pour une relaxation qui n'est pas purement radiative et quand on tient compte du mouvement des atomes<sup>11</sup>. En particulier, si les processus de moyennage par le mouvement sont importants, on peut montrer que la formule donnant  $n^{(1)}$  devient symétrique en  $I_1$  et  $I_2$ :

$$n^{(1)} = n_0 + n_2(I_1 + I_2) \tag{6A.30}$$

Une formule symétrique de la forme (6A.30) est parfois postulée d'emblée pour simplifier certains problèmes d'optique non-linéaire dans des cavités Fabry-Perot linéaires (voir par exemple, la partie B de ce complément). Cette situation correspond à une approximation de champ moyen.

# 6A.2 Bistabilité optique

# 6A.2.1 Milieu Kerr dans une cavité

Considérons un milieu Kerr de longueur  $\ell$  placé dans une cavité Fabry-Perot<sup>12</sup> linéaire de longueur  $L_0$  et étudions la transmission de ce système sous l'action d'un champ incident d'amplitude  $E_i$  et d'intensité  $I_i = E_i^2/2$  (figure 6A.3). Comme nous le montrons dans le complément 6C.3, la transmission T de la cavité est maximum lorsque la longueur optique  $\overline{L}$  associée à un aller-retour de la lumière entre les deux miroirs de la cavité est un multiple

<sup>&</sup>lt;sup>11</sup>Voir G. Grynberg et M. Pinard, Phys. Rev. A. **32**, 3772, 1985.

 $<sup>^{12}</sup>$ Voir complément 6C.3.

entier de  $\lambda$  où  $\lambda$  est la longueur d'onde de la lumière dans le vide<sup>13</sup>. Lorsque  $\overline{L}/\lambda$  s'écarte de cette valeur p, la transmission décroît (figure 6A.4).



FIG. 6A.3 : Cavité Fabry-Perot remplie par un milieu Kerr.

Le paramètre déterminant la transmission de la cavité, et donc l'existence d'une surintensité à l'intérieur de celle-ci, est (voir §2 du Complément V.1, Remarque (iii)) :

$$\frac{\overline{L}}{\lambda} = \frac{2[n\ell + (L_0 - \ell)]}{\lambda} \tag{6A.31}$$

Cette quantité dépend de l'intensité de la lumière dans le milieu puisque l'indice n varie linéairement avec l'intensité de la lumière. L'indice n pour le milieu à l'intérieur de la cavité est, à l'approximation du champ moyen (voir (6A.30)), égal à :

$$n = n_0 + n_2 (I_c + I_c') \tag{6A.32}$$

Il dépend linéairement de l'intensité totale dans la cavité qui est la somme de l'intensité  $I_c$ de l'onde circulant dans la même direction que l'onde incidente et de l'intensité  $I'_c = R_2 I_c$ de l'onde réfléchie par le miroir de sortie de la cavité (voir figure 6D.1 du complément V.1). Nous constatons donc que le paramètre (6A.31) qui contrôle l'intensité dans la cavité dépend lui-même de l'intensité dans la cavité. Il existe donc un processus de réaction qui conduit au phénomène de bistabilité.

Pour étudier ce phénomène, nous notons  $R_2$  et  $T_2$  les coefficients de réflexion et de transmission (en intensité) du miroir de sortie. Les intensités des champs circulant dans la cavité  $I_c$  et  $I'_c$  (voir figure 6A.3) sont reliées à l'intensité transmise  $I_t$  par les formules

$$I_t = T_1 I_c$$

$$I_c' = R_2 I_c$$
(6A.33a)

<sup>&</sup>lt;sup>13</sup>De façon équivalente, si le milieu remplit toute la cavité ( $\ell = K_0$ ), on peut dire que la transmission est maximum quand la longueur géométrique  $2L_0$  est un multiple entier de la *longueur d'onde dans le* milieu égale à  $\lambda/n$  où n est l'indice du milieu.



FIG. 6A.4 : Transmission de la cavité en fonction du déphasage au bout d'un tour.

Nous pouvons alors récrire (6A.31) sous la forme

$$\frac{\overline{L}}{\lambda} = \frac{2\ell}{\lambda} \left( n_0 + n_2 \frac{1 + R_2}{T_2} I_t \right) + \frac{2(L_0 - \ell)}{\lambda}$$
(6A.34)

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

$$\overline{\frac{L}{\lambda}} = \frac{L}{\lambda} + \frac{2\ell}{\lambda} \left( n_0 2 I_i \frac{1+R_2}{T_2} T \right)$$
(6A.35a)

où L est la longueur optique de bouclage à la limite des faibles intensités :

$$L = 2[L_0 + (n_0 - 1)\ell]$$
(6A.35b)

Il apparaît ainsi que pour un milieu Kerr, à intensité constante,  $(\overline{L}/\lambda)$  est une fonction affine de la transmission T de la cavité. Les points de fonctionnement du système correspondent à l'intersection de la courbe de réponse du Fabry-Pérot présentée dans la figure 6A.4 (et dont l'expression mathématique est donnée par la formule (6A.39) du complément 6C.3 en remplaçant kL par  $2\pi \overline{L}/\lambda$ ) et la courbe donnant la variation de  $(\overline{L}/\lambda)$ avec T (formule (6A.35a)). Selon les valeurs des paramètres  $(L/\lambda)$  et  $(n_2I_i\ell/T_2)$ , plusieurs comportements sont possibles. Ceux-ci peuvent être analysés de façon purement graphique (c'est ce qui est fait dans les figures 6A.7 et 6A.10) mais il est également possible d'avoir une solution analytique simple en prenant une formule mathématique approchée pour décrire le pic de transmission du Fabry-Pérot, représenté sur la figure 6A.4. Nous prenons donc une approximation lorentzienne :

$$T = \frac{T_{\max}}{1 + 4\mathcal{F}^2 \left(\frac{\overline{L}}{\lambda} - p\right)^2}$$
(6A.36)

où  $T_{\text{max}}$  et  $\mathcal{F}$  sont donnés par les formules (6D.11) et (6D.20) du Complément (6C.3). La transmission maximum  $T_{\text{max}}$  de la cavité est égale à 1 lorsque les deux miroirs de la cavité ont le même coefficient de réflexion ( $R_1 = R_2$ ). La finesse  $\mathcal{F}$  de la cavité caractérise la largeur de la courbe représentée sur la figure 6A.4. Pour des longueurs de bouclage  $\overline{L}$ ne différant de  $p\lambda$  (où p est un entier) que par une quantité petite devant  $\lambda$  et lorsque  $\mathcal{F}$ est suffisamment grand, la formule (6A.36) décrit un pic de transmission de la cavité de façon satisfaisante<sup>14</sup>.

En utilisant (6A.35a) et (6A.36), nous trouvons l'équation implicite suivante pour l'intensité transmise  $I_t$ :

$$I_t = \frac{T_{\max}I_i}{1 + \left[2\mathcal{F}\left(\frac{L}{\lambda} - p\right) + 4\mathcal{F}\frac{1+R_2}{T_2}\frac{\ell}{\lambda}n_2I_t\right]^2}$$
(6A.37)

Pour simplifier les développements suivants, introduisons les notations

$$x = 2\mathcal{F}\left(\frac{L}{\lambda} - p\right) \tag{6A.38}$$

$$I_t' = 4\mathcal{F}\frac{1+R_2}{T_2}n_2I_t\frac{\ell}{\lambda} \tag{6A.39}$$

$$I_i' = 4\mathcal{F}\frac{1+R_2}{T_2}n_2I_i\frac{\ell}{\lambda}T_{\max}$$
(6A.40)

où x caractérise l'écart à la résonance de la cavité.  $I'_i$  et  $I'_t$  sont des quantités sans dimension proportionnelles aux intensités incidente et transmise. L'équation (6A.37) s'écrit avec ces notations :

$$I'_{t} = \frac{I'_{i}}{1 + (x + I'_{t})^{2}} \tag{6A.41}$$

Il est facile d'étudier les variations de l'intensité incidente  $I'_i$  en fonction de l'intensité transmise  $I'_t$  et donc d'en déduire la variation graphique de  $I'_t$  en fonction de  $I'_i$ . Lorsque  $|x| < \sqrt{3}$ , la fonction  $I'_i = f(I'_t)$  est monotone et il est donc facile de trouver la fonction inverse. C'est ce cas que nous étudierons d'abord. Pour simplifier la discussion ultérieure, nous supposerons  $n_2 > 0$  ce qui permet de se restreindre au quart de plan physique où  $I'_i$ et  $I'_t$  sont positifs (voir Eqs 6A.39 et 6A.40).

# 6A.2.2 Transistor optique

Considérons une valeur de x comprise entre  $-\sqrt{3}$  et 0. La variation de  $I'_t$  en fonction de  $I'_i$  est tracée sur la figure 6A.5.

<sup>&</sup>lt;sup>14</sup>La formule (6A.38) correspond à la limite de la formule (6D.9) du complément (6C.3) lorsque  $|kL - 2p\pi| \ll 1$ . Elle s'obtient en utilisant le développement limité de cos kL.


FIG. 6A.5: Variation de l'intensité  $(I'_t)$  transmise en fonction de l'intensité incidente  $(I'_i)$  pour un désaccord x = -1, 7.

Pour de faibles valeurs de l'intensité incidente, les effets non-linéaires sont négligeables et  $I'_t$  varie linéairement en fonction de  $I'_i$ . Quand l'intensité incidente croît, la pente  $dI'_t/dI'_i$  croît également, passe par une valeur maximum pour  $I'_i = I'_{\alpha}$  puis décroît.

Des applications intéressantes d'un tel système peuvent être obtenues pour  $I'_i$  voisins de  $I'_{\alpha}$ . Supposons que  $I'_i$  soit en valeur moyenne égale à  $I'_{\alpha}$  mais subisse des petites variations autour de  $I'_{\alpha}$ 

$$I_i' = I_\alpha' + \Delta I_i' \tag{6A.42}$$

Ces variations vont se répercuter sur  $I'_t$  qui va lui aussi présenter des variations autour de  $I'_{\beta}$ 

$$I'_t = I'_\beta + g\Delta I'_i \tag{6A.43}$$

En revenant aux intensités  $I_i$  et  $I_t$  à l'aide de (6A.39) et (6A.40), nous obtenons en supposant que les deux miroirs de la cavité ont des coefficients de réflexion identiques, c'est-à-dire que  $T_{\text{max}} = 1$ :

$$\Delta I_t = g \Delta I_i \tag{6A.44}$$

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

En principe, la caractéristique représentée sur la figure 6A.5 a un caractère universel et peut être obtenue avec n'importe quel milieu Kerr. En pratique, pour atteindre la même valeur de  $I'_{\alpha}$ , (qui est, par définition, une quantité sans dimension), il faudra des intensités incidentes  $I_i$  très différentes selon les milieux puisque le coefficient  $n_2$  varie de façon considérable. Cherchons la relation vérifiée par l'intensité incidente pour que la courbe de la figure 6A.5 soit décrite jusqu'au point d'inflexion. Dans le cas où  $x = -\sqrt{3}$ , la courbe  $I'_t = f(I'_i)$  a une tangente verticale pour  $I'_{\alpha} = 8/3\sqrt{3}$ . Pour observer un phénomène d'amplification différentielle au voisinage du point d'inflexion, il faut donc avoir  $I'_i \geq 8/3\sqrt{3}$ . Pour simplifier, considérons à nouveau la situation symétrique où  $T_1 = T_2$  pour laquelle  $T_{\text{max}} = 1$ . Dans ce cas, nous pouvons à l'aide de (6A.40) récrire cette inégalité sous la forme :

$$n_1 \frac{1+R_2}{T_2} I_i \frac{\ell}{\lambda} \ge \frac{2}{\mathcal{F}_3 \sqrt{3}} \tag{6A.45}$$

L'intensité dans la cavité  $I_c + I'_c$  est au maximum égale à  $(1 + R_2)I_i/T_2$ . Le premier membre de (6A.45) décrit donc le déphasage de la lumière dû aux effets non-linéaires lors de sa propagation dans le milieu. Le second membre est de l'ordre de grandeur de la largeur relative des pics de transmission de la cavité. Pour observer les effets non-linéaires considérés dans ce paragraphe, il faut donc que la contribution des effets non-linéaires au déphasage lors de la propagation dans le milieu soit supérieure à la largeur relative de la courbe de transmission de la cavité. Ces effets seront d'autant plus facilement observables que l'indice non-linéaire  $n_2$  sera plus grand et que la finesse  $\mathcal{F}$  de la cavité sera plus élevée.

#### Remarques

(i) Une autre application possible de la courbe de transmission de la figure 6A.5 est la mise en forme d'impulsions lumineuses. Considérons une impulsion  $I_i$  incidente sur le Fabry-Pérot. A la sortie, et dans les conditions de la figure 6A.5, nous obtiendrons l'impulsion  $I_t$ . Aux pentes douces de  $I_i$  ont succédé les flancs raides de  $I_t$  (voir figure 6A.6)



FIG. 6A.6: Variation temporelle d'une impulsion lumineuse incidente  $I_i$  et de l'impulsion transmise  $I_t$  par un Fabry-Pérot rempli d'un milieu non-linéaire. Les paramètres sont ceux du transistor optique. L'impulsion transmise se rapproche d'une fonction créneau.

La forme de  $I_t$  est associée à la faible transmission à basse intensité auquelle succède une plage de variation brutale de l'intensité au voisinage de  $I'_{\alpha}$ . Ceci est une méthode pour obtenir une impulsion lumineuse se rapprochant d'une fonction créneau (encore appelée impulsion carrée)<sup>15</sup>.

(ii) La courbe représentant les variations de l'intensité transmise en fonction de l'intensité incidente (figure 6A.5) peut être trouvée de façon graphique, sans recourir à la forme analytique approchée (6A.36). Nous avons tracé sur la figure 6A.7 la solution obtenue en traçant l'intersection de la courbe de transmission de la cavité et de la droite donnant la variation de  $(\overline{L}/\lambda)$  en fonction de T (Eq. (6A.35a)). A faible intensité incidente  $I_1$ , les effets non-linéaires sont négligeables et la droite est pratiquement verticale. Au fur et à mesure que l'intensité incidente croît, la pente de la droite décroît. Le point de croisement entre la droite et la courbe donne la valeur de la transmission T pour l'intensité incidente  $I_i$ . L'intensité transmise étant égale à  $TI_i$ , il est possible ainsi de reconstruire point par point la courbe de la figure 6A.5.

Outre sa simplicité, une telle approche graphique est utile lorsqu'il n'est pas possible de décrire la courbe de réponse de la cavité par la lorentzienne donnée dans le formule (6A.36). Ceci est le cas lorsque la finesse  $\mathcal{F}$  n'est pas très grande, c'est-à-dire quand la largeur d'un pic n'est pas très petite devant la distance entre deux pics successifs. Ceci peut aussi être le cas lorsque l'intensité incidente est suffisamment intense pour que la pente de la droite de la figure 6A.7 diminue assez pour que la droite coupe *plusieurs* pics de transmission de la cavité.



FIG. 6A.7: Détermination graphique de la transmission pour trois valeurs successives de l'intensité incidente  $I_1 < I_2 < I_3$ . Le fonctionnement en régime d'amplification différentielle est obtenu pour une intensité incidente voisine de  $I_2$ .

<sup>&</sup>lt;sup>15</sup>De même que le fonctionnement du transistor électronique en régime bloqué-saturé a joué un rôle essentiel dans le traitement électronique de l'information, ce type d'application pourrait être utile pour le traitement optique de l'information.

## 6A.2.3 Les conditions de la bistabilité optique

Considérons<sup>16</sup> à nouveau la fonction  $I'_t$  donnée par la formule (6A.41) mais supposons à présent que x est inférieur à  $-\sqrt{3}$ . Dans une telle situation, la courbe représentant les variations de  $I'_t$  en fonction de  $I'_i$  est *multivaluée* (voir figure 6A.8). Il existe une plage de valeurs de l'intensité incidente (comprise entre  $I'_{inf}$  et  $I'_{sup}$  sur la figure 6A.8) pour laquelle  $I'_t$  peut prendre trois valeurs différentes.

Tant que  $I'_i$  est inférieur à  $I'_{inf}$  ou supérieur à  $I'_{sup}$ , la solution pour  $I'_t$  est unique. En revanche, lorsque est compris entre  $I'_{inf}$  et  $I'_{sup}$ , il y a trois solutions possibles pour  $I'_t$ . Une étude dynamique de la stabilité de ces solutions (en étudiant l'évolution temporelle du système légèrement écarté de l'une de ces solutions), prouve qu'il existe *deux solutions stables* et *une solution instable*. La solution instable correspond à la partie de pente négative de la courbe de la figure 6A.8. L'existence de deux solutions stables pour l'intensité transmise (pour la même valeur de l'intensité incidente) est à l'origine de la dénomination « bistable optique » donnée à ce système.



FIG. 6A.8: Variation de l'intensité transmise en fonction de l'intensité incidente pour un désaccord x = -3. Pour toutes les valeurs de  $I'_i$  comprises entre  $I'_{inf}$  et  $I'_{sup}$ , il y a trois solutions possibles pour  $I'_t$ . En fait, une de ces solutions (celle correspondant à la partie de pente négative) est instable vis-à-vis d'une petite perturbation. Les deux autres solutions sont stables.

Du point de vue de la physique et des applications, il est important de comprendre laquelle de ces deux solutions stables sera effectivement choisie par le système. En pratique, la solution observée dépendra de *l'histoire antérieure du système*. Supposons qu'initiale-

<sup>&</sup>lt;sup>16</sup>Nous étudions ici la bistabilité due à la non-linéarité de la dispersion mais la bistabilité optique peut également être due à la saturation de l'absorption. L'étude générale de la bistabilité optique pour un ensemble d'atomes à deux niveaux dans une cavité a été faite par R. Bonifacio et L.A. Lugiato. Pour une revue sur la théorie de la bistabilité, voir L.A. Lugiato « *Theory of Optical Bistability* » in Progress in Optics XXI édité par E. Wolf, North Holland (1984).

ment, l'intensité incidente soit très faible et qu'elle croisse progressivement, le système évoluera continûment sur la branche inférieure de la courbe de bistabilité jusqu'au moment où l'intensité  $I'_i$  dépassera la valeur  $I'_{sup}$  auquel cas le système sera obligé de sauter sur la branche supérieure, le point de fonctionnement passant ainsi brusquement de B à C (voir figure 6A.9).

Lorsque l'intensité incidente décroît à partir du point de fonctionnement C, l'intensité transmise évolue continûment sur la branche supérieure de la courbe de bistabilité jusqu'au moment où  $I'_i$  ayant atteint la valeur  $I'_{inf}$ , le système n'a plus d'autres solutions que de sauter du point de fonctionnement D au point A (figure 6A.9).

Pour une intensité incidente comprise entre  $I'_{inf}$  et  $I'_{sup}$ , le système possède deux points de fonctionnement stable (par exemple P et P' sur la figure 6A.9) et le choix du point de fonctionnement dépend des valeurs antérieures prise par le système<sup>17</sup>. Celui-ci se comporte donc comme une *mémoire optique*. Pour faire basculer le système de P en P', il faut appliquer un créneau positif d'intensité, c'est-à-dire faire passer transitoirement l'intensité par une valeur supérieure à  $I'_{sup}$ . Pour faire basculer la mémoire de P' en P, il faut diminuer transitoirement l'intensité en déçà de  $I'_{inf}$ .



FIG. 6A.9 : Evolution de l'intensité transmise lorsque l'intensité incidente croît puis décroît.

#### Remarques

(i) Pour observer la bistabilité optique, il faut que les paramètres (indice non-linéaire, intensité incidente, finesse de la cavité) satisfassent également la relation (6A.45).

(ii) Il est possible de retrouver la bistabilité optique au moyen de la méthode graphique du § 6A.2.2. Nous avons ainsi représenté sur la figure 6A.10, les solutions graphiques pour

<sup>&</sup>lt;sup>17</sup>La première observation de la bistabilité optique a été réalisée en 1976 par H.M. Gibbs, S.L. Mc Call et T.N.C. Venkatesan. Ils utilisaient une cavité Fabry-Pérot remplie d'une vapeur de sodium et un faisceau laser quasi-résonnant avec la transition atomique.

## COMPLÉMENT 6A

cinq valeurs successives de l'intensité. Pour une intensité incidente  $I_1$  très faible, la droite est pratiquement verticale et la solution unique est celle obtenue en l'absence d'effets nonlinéaires. Quand l'intensité croît, il n'y a qu'une solution tant que  $I_i < I_{inf}$ . Quand  $I_i$  est compris entre  $I_{inf}$  et  $I_{sup}$ , il y a trois solutions  $(M, M' \text{ et } N \text{ lorsque } I_i = I_2)$ . N correspond à la solution instable et M est la solution que le système adopte par continuité lorsque l'intensité croît. Lorsque l'intensité incidente devient plus grande que  $I_{sup}$ , le système saute d'un flanc de la courbe de transmission à l'autre. Si l'intensité incidente décroît, le système reste par continuité sur ce dernier flanc et pour  $I_i = I_2$  le point de fonctionnement est alors M'. Si l'intensité continue à décroître et passe en-deçà de  $I_{inf}$  le système passe brusquement d'une situation de forte transmission à une situation de faible transmission.



FIG. 6A.10: Détermination graphique des points de fonctionnement du système dans le cas de la bistabilité optique. Les intensités incidentes sont ordonnées de la façon suivante  $I_1 < I_{inf} < I_2 < I_{sup} < I_3$ .

## 6A.2.4 Processeur optique

Les systèmes décrits précédemment (transistor optique, bistable optique) ont fait l'objet de nombreuses démonstrations expérimentales<sup>18</sup>. Il semble donc, en principe, possible de construire un ordinateur avec de tels éléments. Dans un tel ordinateur, des ondes lumineuses, se propageant dans des structures guidées comme les fibres optiques, remplaceraient les courants électriques. Quels seraient les avantages d'un ordinateur optique?

Il est d'abord relativement facile d'obtenir des impulsions lumineuses de durée très courte inférieure à la picoseconde. Cette propriété, jointe à la possibilité d'avoir des bistables optiques dont le temps de commutation serait du même ordre de grandeur, pourrait

 $<sup>^{18}</sup>$ Pour plus de détails sur ce problème et sur la bistabilité optique en général, on pourra consulter l'ouvrage de H.M. Gibbs, « Optical Bistability » : Controlling Light with Light », Academic Press, Orlando (1985).

se révéler intéressante pour réaliser des systèmes rapides. Cependant, les obstacles à surmonter sont considérables : il faut d'abord trouver des matériaux ayant un temps de réponse rapide, une grande non-linéarité Kerr, pouvant être facilement miniaturisés et nécessitant de faibles énergies de commutation. Même en supposant ces problèmes résolus, la comparaison avec d'autres systèmes (comme ceux utilisant les jonctions Josephson) n'est pas toujours favorable à l'ordinateur tout optique. En fait, il paraît raisonnable de penser qu'à moyen terme, les contributions optiques à l'ordinateur se développeront essentiellement sur quelques créneaux bien définis comme le transport de l'information au sein de l'ordinateur, le traitement d'images ou les connexions massivement parallèles.

# 6A.3 Miroir à conjugaison de phase

L'optique non-linéaire a permis la réalisation de plusieurs types de miroirs pour lesquels les lois de la réflexion diffèrent sensiblement des lois de Descartes. Nous présentons ici le plus connu de ces nouveaux miroirs : le miroir à conjugaison de phase, dont les propriétés sont décrites aux § 6A.3.2 et 6A.3.3, qui renvoie un rayon lumineux exactement dans la direction opposée à la direction incidente (et non pas dans la direction symétrique par rapport à la normale comme le prévoit la loi de Descartes). Il existe plusieurs processus physiques permettant de réaliser de tels miroirs : nous décrivons dans le § 6A.3.1 le mélange dégénéré à quatre ondes et de façon plus succinte au § 6A.3.4 les miroirs basés sur un processus de diffusion stimulée<sup>19</sup>.

## 6A.3.1 Mélange dégénéré à quatre ondes

Considérons un ensemble d'atomes à deux niveaux, interagissant avec trois ondes incidentes d'amplitudes  $E_p$ ,  $E'_p$  et  $E_s$  et de même pulsation  $\omega$  (figure 6A.11). Les ondes  $E_p$ et  $E'_p$  qui se propagent en *sens opposés* ont une amplitude bien plus grande que l'onde  $E_s$ . Nous appellerons ondes pompe les ondes  $E_p$  et  $E'_p$ , et onde sonde l'onde  $E_s$ .

Nous supposons que les trois champs électriques incidents ont la même polarisation  $\vec{\epsilon}$ . Ils peuvent donc être écrits :

$$\mathbf{E}_{p}(\mathbf{r},t) = E_{p}\vec{\boldsymbol{\varepsilon}}\cos(\omega t - \mathbf{k}\cdot\mathbf{r}) = \vec{\boldsymbol{\varepsilon}}\operatorname{Re}\left[\mathcal{E}_{p}\exp i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t)\right]$$
(6A.46a)

$$\mathbf{E}'_{p}(\mathbf{r},t) = E'_{p}\vec{\boldsymbol{\varepsilon}}\cos(\omega t + \mathbf{k}\cdot\mathbf{r}) = \vec{\boldsymbol{\varepsilon}}\operatorname{Re}\left[\mathcal{E}'_{p}\exp-i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t)\right]$$
(6A.46b)

$$\mathbf{E}_{s}(\mathbf{r},t) = E_{s}\vec{\boldsymbol{\varepsilon}}\cos(\omega t - kz - \varphi_{s}) = \vec{\boldsymbol{\varepsilon}}\operatorname{Re}\left[\mathcal{E}_{s}\exp i(kz - \omega t)\right]$$
(6A.46c)

où nous avons introduit les amplitudes complexes  $\mathcal{E}_p = E_p$ ,  $\mathcal{E}'_p = E'_p$  et  $\mathcal{E}_s = E_s e^{i\varphi_s}$ .

<sup>&</sup>lt;sup>19</sup>Les premiers miroirs à conjugaison de phase ont été trouvés par B. Ya. Zel'dovich et ses collaborateurs en 1972. Ces miroirs utilisaient la diffusion Brillouin stimulée. L'utilisation du mélange à quatre ondes a été proposée par R.W. Hellwarth en 1977.



FIG. 6A.11: Disposition des champs incidents dans une expérience de conjugaison de phase par mélange à quatre ondes.

Comme les trois champs ont la même fréquence et la même polarisation, leur somme

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{E}_p(\mathbf{r},t) + \mathbf{E}'_p(\mathbf{r},t) + \mathbf{E}_s(\mathbf{r},t)$$
(6A.47)

peut s'écrire :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \vec{\varepsilon} \sqrt{2I(\mathbf{r})} \cos(\omega t - \varphi(\mathbf{r}))$$
(6A.48)

où  $\sqrt{2I(\mathbf{r})}$  et  $\varphi(\mathbf{r})$  sont respectivement l'amplitude et la phase *locale* du champ.

Considérons la polarisation non-linéaire pour un ensemble d'atomes à deux niveaux donnée par la formule (6A.11). Comme nous le montrons ci-dessous, l'analyse des diverses composantes de Fourier spatiales de  $\mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r},t)$  montre qu'il existe une composante  $\mathbf{P}_c(\mathbf{r},t)$ évoluant en exp $-i(\omega t + kz)$ . Une telle composante va engendrer un champ de pulsation  $\omega$  se propageant dans la direction opposée à  $\mathbf{E}_s(\mathbf{r},t)$  (qui dépend de l'argument ( $\omega t - kz$ ), voir formule (6A.46c)). Nous verrons par la suite que cette onde que nous noterons  $\mathbf{E}_c$  a des propriétés particulières qui lui valent la dénomination d'onde conjuguée<sup>20</sup>.

Pour évaluer la polarisation non-linéaire (6A.11), calculons  $I(\mathbf{r})$ :

$$I(\mathbf{r}) = \frac{1}{2} (E_p^2 + E_p'^2 + E_s^2) + E_p E_p' \cos 2\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + E_p E_s \cos(kz + \varphi_s - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + E_p' E_s \cos(kz + \varphi_s + \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$$
(6A.49)

En reportant cette expression dans (6A.11), nous trouvons, en multipliant d'une part le terme en  $E_p E_s$  de  $I(\mathbf{r})$  par le terme  $E'_p$  et  $E(\mathbf{r}, t)$ , et d'autre part le terme en  $E'_p E_s$  de  $I(\mathbf{r})$ 

<sup>&</sup>lt;sup>20</sup>Bien qu'il soit théoriquement possible de calculer exactement le champ conjugué pour des atomes à deux niveaux, nous nous limiterons ici au cas où un développement perturbatif en puissance de  $\Omega_1/(\omega-\omega_0)$  est possible. Le calcul exact pourra être trouvé dans l'article de R.L. Abrams, J.F. Lam, R.C. Lind, D.G. Steel et P.F. Liao dans l'ouvrage « Optical Phase Conjugation » p. 211 édité par R.A. Fisher, Academic Press (New-York, 1983).

par le terme en  $E_p$  de  $E(\mathbf{r},t)$ , que la composante cherchée  $\mathbf{P}_c(\mathbf{r},t) = \vec{\epsilon} P_c(\mathbf{r},t)$  est donnée par :

$$P_c(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \chi'_3 E_p E'_p E_s \cos(\omega t + kz + \varphi_s)$$
(6A.50)

ou encore en utilisant les amplitudes complexes :

$$P_c(\mathbf{r}, t) = \operatorname{Re} \left( \mathcal{P}_c \exp -i(kz + \omega t) \right)$$
(6A.51a)

avec

$$\mathcal{P}_c = \varepsilon_0 \chi_3' \mathcal{E}_p \mathcal{E}_p' \mathcal{E}_s^* \tag{6A.51b}$$

Cette composante de la polarisation du milieu est un terme source des équations de Maxwell, ou encore de l'équation de propagation des champs (6A.26) qui engendre le champ  $\mathbf{E}_c$ . Ce processus implique quatre ondes de même fréquence, c'est pourquoi on parle de mélange dégénéré à quatre ondes. Notons aussi que la composante de la polarisation qui génère l'onde  $E_c$  est, d'après (6A.51b), proportionnelle à  $\mathcal{E}_s^*$ : son amplitude est complexe conjuguée de celle de  $\mathcal{E}_s$ . Ceci est l'origine du terme « conjugaison de phase » adopté pour décrire cette situation.

## 6A.3.2 Conjugaison de phase

#### a. Conjugaison de phase et renversement du temps

Considérons la formule (6A.46c) donnant  $\mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t)$  et supposons que l'on renverse le sens du temps. Le champ obtenu

$$\mathbf{E}_{s}(\mathbf{r}, -t) = E_{s}\vec{\boldsymbol{\varepsilon}}\cos(\omega t + kz + \varphi_{s})$$
(6A.52)

a la même dépendance spatio-temporelle que le champ de l'onde conjuguée  $\mathbf{E}_c(\mathbf{r}, t)$  engendrée par la composante  $\mathbf{P}_c(\mathbf{r}, t)$  de la polarisation donnée en (6A.50). Il en résulte que l'action du milieu créant l'onde conjuguée peut être décrite comme un renversement du sens du temps pour l'onde incidente<sup>21</sup>. Ainsi, l'onde conjuguée va-t-elle suivre exactement le même trajet que l'onde incidente mais en sens inverse et cela aussi complexe que soit le milieu dans lequel l'onde se propage.

Pour illustrer cette propriété, suivons une onde incidente initialement plane (figure 6A.12.a) traversant d'abord un milieu transparent déformant (objet O de la figure 6A.12) puis réfléchie sur un *miroir à conjugaison de phase*. Après traversée du milieu O, le front d'onde est déformé puisque les chemins optiques suivis par les divers rayons lumineux

<sup>&</sup>lt;sup>21</sup>C'est pourquoi on parle parfois de « miroir à remonter le temps » pour décrire (de façon médiatique) les propriétés de ces systèmes produisant une onde conjuguée. Une telle dénomination est toutefois inexacte pour une onde non monochromatique puisque les diverses composantes de Fourier ne sont pas réfléchies de la même façon (à cause de la dépendance de la susceptibilité non-linéaire avec  $\omega$ ) par le milieu conjuguant la phase.



FIG. 6A.12: Déformation d'un front d'onde initialement plan (a) après traversée dans un milieu inhomogène (b). L'action du miroir à conjugaison de phase renverse le sens de propagation des rayons en conservant le front d'onde (c). D'après la loi du retour inverse de la lumière, le faisceau réfléchi a un front d'onde à nouveau plan après traversée du milieu optique inhomogène (d).

dans le milieu *O* sont différents (figure 6A.12.b). L'action du miroir à conjugaison de phase étant analogue à un renversement du sens du temps, nous obtenons après réflexion (figure 6A.12.c) un front d'onde identique au front d'onde incident de la figure 6A.12.b. L'application de la loi du retour inverse de la lumière montre alors que le front d'onde réfléchi est à nouveau plan après une seconde traversée du milieu déformant (figure 6A.12.d).

Si nous remplaçons le milieu conjuguant la phase de la figure 6A.12 par un *miroir* normal, il n'y a pas, bien entendu, rectification du front d'onde. Bien au contraire la déformation est doublée après un second passage dans le milieu déformant (figure 6A.13).

#### b. Rectification des fronts d'onde

Nous montrons dans ce paragraphe comment la rectification des fronts d'onde par un miroir à conjugaison de phase peut être utilisée en pratique. De telles corrections de front d'onde trouvent des applications naturelles lorsque des rayonnements électromagnétiques



FIG. 6A.13: Réflexion d'un front d'onde déformé sur un miroir normal. Les diverses étapes (a, b, c et d) peuvent être comparées avec les étapes similaires obtenues dans le cas de la réflexion sur un miroir à conjugaison de phase (figure ). A l'issue de la seconde traversée du milieu, la déformation du front d'onde est ici doublée alors qu'elle avait été corrigée par le miroir à conjugaison de phase.

doivent se propager sur de grandes distances dans l'atmosphère. En effet, à cause des fluctuations de densité de l'air, l'atmosphère se comporte comme un milieu déformant (et qui plus est, les déformations de front d'onde fluctuent dans le temps, comme on peut le constater en observant le scintillement des étoiles). Ainsi un faisceau laser ayant une distribution transverse d'intensité gaussienne et possédant la symétrie cylindrique à la sortie du laser perd ces propriétés au fur et à mesure de la propagation dans l'atmosphère. Il s'ensuit que la qualité du faisceau se dégrade assez rapidement. Si le faisceau est réfléchi sur lui-même par un miroir normal, la détérioration de la qualité sera encore amplifiée sur le chemin retour et l'émetteur recevra un faisceau retour très perturbé. Ceci est préjudiciable à la qualité des communications entre deux stations éloignées. Une façon de résoudre ce problème serait de remplacer le miroir normal par un miroir à conjugaison de phase. Dans ce cas, les rayons lumineux réfléchis suivront le même chemin que les rayons incidents<sup>22</sup> et le faisceau retour sera *automatiquement ciblé* sur la station émettrice. (Le

 $<sup>^{22}</sup>$ Il faut bien entendu, que le temps mis par la lumière pour faire un aller-retour soit petit devant le

transfert d'information entre les deux stations peut se faire en modulant, par exemple, l'intensité du faisceau réfléchi).

Il convient toutefois de préciser que, même si certaines expériences de démonstration ont bien fonctionné, l'utilisation pratique du miroir à conjugaison de phase reste rare. Néanmoins, des miroirs pour amplificateurs à fort gain utilisant la conjugaison de phase ont été commercialisés<sup>23</sup>.

# 6A.3.3 Coefficient de réflexion. Amplification par conjugaison de phase

Une autre propriété importante des miroirs à conjugaison de phase étudiés plus haut est qu'ils peuvent avoir des *coefficients de réflexion plus grande que* 100 %. Ces miroirs ont donc l'intérêt supplémentaire de pouvoir fonctionner en *régime amplificateur*<sup>24</sup>. Nous montrons à présent comment on calcule ce coefficient de réflexion.

### a. Equation de propagation des champs

Nous supposons pour simplifier que les deux ondes pompe  $E_p$  et  $E'_p$  ont même intensité et que leur propagation dans le milieu, localisé entre les plans z = 0 et  $z = \ell$ , n'est pas perturbée par la présence des ondes faibles  $E_s$  et  $E_c$ . En particulier, l'amplitude de  $E_p$  et de  $E'_p$  est supposée constante dans le milieu. POur trouver l'évolution des ondes  $E_s$  et  $E_c$ , il faut résoudre l'équation de propagation (6A.26) pour chacune des ondes se propageant dans le milieu. Le champ électrique étudié est la somme du champ sonde donné par la formule (6A.46c) et du champ conjugué :

$$\mathbf{E}_{c}(\mathbf{r},t) = \vec{\boldsymbol{\varepsilon}} \operatorname{Re} \left[ \mathcal{E}_{c} \exp -i(kz + \omega t) \right]$$
(6A.53)

temps d'évolution des fluctuations du milieu matériel séparant les stations. Ceci est généralement le cas pour les fluctuations atmosphériques.

<sup>&</sup>lt;sup>23</sup>On trouvera des détails sur les applications des miroirs à conjugaison de phase dans les articles de vulgarisation suivant : V.V. Shkunov et B. Ya. Zel'dovich, « Optical Phase Conjugation » Scientific American (Décembre 1985) p. 40; D.M. Pepper, « Applications of Optical Phase Conjugation » Scientific American (Janvier 1986) p. 56; G. Grynberg, Revue Palais Découverte **17**, n° 169 (Juin 1989) p. 27. Des informations complémentaires pourront être trouvées dans les articles de revue de D.M. Pepper dans le Laser Handbook 4, édité par M.L. Stitch et M. Bass, p. 333, Elsevier Science Publisher (Amsterdam 1985) et de R.W. Boyd et G. Grynberg dans « Contemporary Nonlinear Optics » p. 85 édité par G.P. Agrawal et R.W. Boyd (Academic Press 1992).

<sup>&</sup>lt;sup>24</sup>Cette propriété prévue par A. Yariv et D.M. Pepper en 1977 a été démontrée dans de nombreuses expériences.

L'équation de propagation (6A.26) relative au champ conjugué s'écrit<sup>25</sup> :

$$i\frac{d\mathcal{E}_c}{dz} = \kappa \mathcal{E}_s^* \tag{6A.54}$$

où  $\kappa$  se déduit des équations (6A.26) et (6A.51) :

$$\kappa = \frac{\omega}{2n_0c} \chi'_3 \mathcal{E}_p \mathcal{E}'_p \tag{6A.55}$$

#### b. Cas des faibles réflectivités

Tant que  $E_c \ll E_s$ , il est possible de résoudre l'équation (6A.54) en supposant le second membre constant et en imposant la condition aux limites :

$$\mathcal{E}_c(\ell) = 0 \tag{6A.56}$$

(Il n'y a pas de champ entrant par la face  $z = \ell$  du milieu (voir figure 6A.11) et se propageant dans la direction -z). La solution de l'équation (6A.54) est alors :

$$\mathcal{E}_c(z) = -i\kappa(z-\ell)\mathcal{E}_s^* \tag{6A.57}$$

pour  $0 \le z \le \ell$ . En particulier, nous en déduisons le coefficient de réflexion (en intensité) défini comme le rapport des intensités entre le champ conjugué et le champ sonde dans le plan z = 0, le champ conjugué *sortant* du milieu et le champ sonde y *entrant* :

$$R_c = \frac{|\mathcal{E}_c(0)|^2}{|\mathcal{E}_s(0)|^2}$$
(6A.58)

ce qui donne

$$R_c = |\kappa \ell|^2 . \tag{6A.59}$$

#### c. Cas des fortes réflectivités. Solution exacte

Dès que la non-linéarité est suffisante pour que  $|\kappa \ell|$  s'approche de 1, il n'est plus possible de considérer  $\mathcal{E}_s^*$  comme une constante au second membre de (6A.54). Il faut alors écrire un système d'équations couplées pour  $E_c$  et  $E_s$ . Le terme source de l'équation d'évolution (6A.26) pour  $\mathcal{E}_s$  est  $\mathcal{P}_s = \varepsilon_0 \chi'_3 \mathcal{E}_p \mathcal{E}'_p \mathcal{E}_c^*$  ce qui conduit à l'équation d'évolution suivante pour  $\mathcal{E}_s$  :

$$i\frac{d\mathcal{E}_s}{dz} = -\kappa \mathcal{E}_c^* \tag{6A.60}$$

<sup>&</sup>lt;sup>25</sup>On omet au second membre de (6A.54) les termes de polarisation non-linéaire de la forme (6A.28) qui donnent les contributions non-linéaires à l'indice. On peut vérifier que ces contributions sont négligeables si les ondes pompes ont la même intensité  $(I_p = I'_p)$  et si cette intensité est bien plus grande que l'intensité de l'onde sonde. Pour plus de détails sur les effets associés à ces termes supplémentaires, voir R.W. Boyd et G. Grynberg dans « Contemporary Nonlinear Optics » p. 85 édité par G.P. Agarwal et R.W. Boyd (Academic Press 1992).

Le complexe conjugué de l'équation (6A.60) et l'équation (6A.54) constituent un système de deux équations différentielles linéaires couplées :

$$i\frac{d\mathcal{E}_s^*}{dz} = \kappa^* \mathcal{E}_c \tag{6A.61a}$$

$$i\frac{d\mathcal{E}_c}{dz} = \kappa \mathcal{E}_s^* \tag{6A.61b}$$

Les conditions aux limites sont d'une part (6A.56) et d'autre part :

$$\mathcal{E}_s(0) = \mathcal{E}_0 \tag{6A.62}$$

Avec ces conditions aux limites, le système (6A.61) apour solution dans l'intervalle  $0 \le z \le \ell$ :

$$\mathcal{E}_{s}^{*}(z) = \mathcal{E}_{0}^{*} \frac{\cos|\kappa|(z-\ell)}{\cos|\kappa|\ell}$$
(6A.63)

$$\mathcal{E}_c(z) = -i\frac{\kappa}{|\kappa|} \mathcal{E}_0^* \frac{\sin|\kappa|(z-\ell)}{\cos|\kappa|\ell}$$
(6A.64)

La valeur du coefficient de réflexion (en intensité) du miroir à conjugaison de phase défini en (6A.58) vaut donc

$$R_c = \tan^2 |\kappa \ell| \tag{6A.65}$$

Ce coefficient est donc plus grand que 1 lorsque  $|\kappa \ell|$  est compris entre  $\pi/4$  et  $\pi/2$ . Le faisceau réfléchi est alors plus intense que le faisceau incident. Lorsque  $|\kappa \ell|$  approche la valeur  $\pi/2$ , le coefficient de réflexion tend vers l'infini. Ce résultat (non physique) est lié à notre hypothèse sur la constante des amplitudes des ondes pompes dans le milieu. Lorsque  $R_c$  devient grand, les ondes sonde et conjuguée peuvent avoir une amplitude comparable à celle des ondes pompes et donc modifier leur propagation. Pour trouver la solution du problème dans ce cas, il faudrait résoudre un système de quatre équations différentielles couplées puisque l'amplitude complexe des ondes pompes est alors une fonction de z. On trouve que  $R_c$  peut effectivement devenir très grand lorsque  $|\kappa \ell|$  s'approche de  $\pi/2$  et des valeurs supérieures à 100 ont été observées expérimentalement<sup>26</sup>.

L'apparition de l'onde conjuguée s'accompagne d'une amplification de l'onde sonde. En effet, l'onde sonde à la sortie du milieu non-linéaire (dans le plan  $z = \ell$ ) a pour

<sup>&</sup>lt;sup>26</sup>Il est possible d'obtenir un oscillateur engendrant un faisceau cohérent en plaçant un miroir à conjugaison de phase à fort gain face à un miroir (voir Exercice E.12). Un miroir à conjugaison de phase peut également présenter spontanément des instabilités lorsque le coefficient de réflexion est suffisamment grand. Ces instabilités peuvent se manifester par une variation temporelle, éventuellement chaotique, de l'intensité des faisceaux pompes à la sortie du miroir prévue par Y. Silberberg et A. Bar Joseph et observée par R.W. Boyd et ses collaborateurs. Elles peuvent aussi donner lieu à la génération de faisceaux cohérents dans des directions différentes de celles des ondes pompes comme cela a été montré par L.A. Lugiato, G. Grynberg et leur collaborateurs. Le miroir de conjugaison de phase est un système modèle pour l'étude des *instabilités spatio-temporelles* en optique non-linéaire.

amplitude d'après (6A.63)

$$\boldsymbol{\mathcal{E}}_{s}(\ell) = \boldsymbol{\mathcal{E}}_{0} \frac{1}{\cos|\kappa\ell|} \tag{6A.66}$$

Le coefficient de transmission  $T_c$  pour l'onde sonde est donc, en intensité, égal à

$$T_c = \frac{1}{\cos^2 |\kappa \ell|} \tag{6A.67}$$

qui est plus grand que 1.

Il est intéressant de noter, en combinant (6A.65) et (6A.67), que l'on a

$$T_c - R_c = 1 \tag{6A.68}$$

Cette relation signifie que la différence entre les intensités des ondes sonde et conjuguée est indépendante de  $\ell$  et coïncide avec l'intensité de l'onde sonde à l'entrée du milieu. L'accroissement de l'intensité de l'onde sonde est donc égale à l'intensité de l'onde conjuguée. En d'autres termes, le processus physique crée autant de photons dans l'onde sonde que dans l'onde conjuguée.

On peut comprendre cette propriété en cherchant l'origine de l'énergie fournies aux ondes  $E_s$  et  $E_c$ . Cette énergie provient de chacune des ondes pompe qui, dans un processus élémentaire, perdent chacune un photon au profit des ondes sonde et conjuguée (voir figure 6A.14). Ce résultat peut également s'obtenir de façon classique en écrivant l'équation de propagation (6A.26) pour les ondes pompes. On montre alors que les amplitudes des ondes pompes décroissent d'une quantité compensant exactement la croissance des ondes sonde et conjuguée.



FIG. 6A.14: Schéma du processus élémentaire du mélange à quatre ondes. Il y a absorption d'un photon dans chacune des ondes pompe et émission d'un photon dans l'onde sonde et l'onde conjuguée.

## 6A.3.4 Conjugaison de phase par diffusion stimulée

Les miroirs à conjugaison de phase présentés ci-dessus ont l'inconvénient de nécessiter deux ondes pompes pour alimenter constamment le miroir. Il existe d'autres miroirs à conjugaison de phase ne nécessitant pas d'ondes pompes. En particulier, les miroirs utilisant des processus de *diffusion stimulée* on fait l'objet d'une étude très approfondie.

Considérons un milieu où un processus de diffusion Raman peut être obtenu. Un champ incident de pulsation  $\omega_1$  induit par diffusion Raman la création d'un photon de pulsation  $\omega_2$  (voir Chapitre II du cours « Optique Quantique 1 », Figure 6). Si le niveau final du processus Raman (b) est moins peuplé que le niveau initial (a), l'émission stimulée à la fréquence  $\omega_2$  l'emporte sur l'absorption et on peut avoir apparition d'un rayonnement cohérent à cette nouvelle fréquence (voir Chapitre III du cours « Optique Quantique 1 », § B.5). La probabilité d'émission stimulée étant d'autant plus grande que l'intensité I du champ incident est grande, le gain g pour le processus de diffusion Raman stimulé est aussi une fonction croissante de I.

Dans le cas où le champ incident présente des inhomogénéités d'intensité, le gain g varie de point en point. Il est possible de montrer que parmi toutes les ondes de pulsation  $\omega_2$  susceptibles d'être amplifiées dans le milieu, celle qui présente le plus grand gain est l'onde conjuguée de phase de l'onde incidente. La raison physique est que les rayons (lignes orthogonales au front d'onde) de l'onde conjuguée coïncidant exactement avec les rayons de l'onde incidente (au signe près), ils traverseront *automatiquement* les régions où *l'intensité incidente est la plus grande*, c'est-à-dire les régions où *le gain pour la diffusion stimulée est maximum*. En pratique, des miroirs fonctionnant selon ce type de processus, adapté à la diffusion Brillouin stimulée<sup>27</sup>, sont utilisés dans certains lasers commerciaux pour améliorer la qualité du front d'onde du faisceau émis.

Les miroirs à conjugaison de phase à diffusion stimulée ont des coefficient de réflexion inférieurs à l'unité puisque l'énergie nécessaire à l'émission de l'onde conjuguée est prélevée sur l'onde incidente. Ils présentent, en outre, deux inconvénients. Le premier est que la pulsation  $\omega_2$  du faisceau réfléchi diffère de la pulsation  $\omega_1$  du faisceau incident, ce que l'on peut traduire de façon imagée en disant que le faisceau retour n'a pas la même couleur que le faisceau incident. Le second est que ces miroirs ne fonctionnent qu'au-delà d'une certaine intensité incidente : il y a un seuil d'intensité à franchir pour que la conjugaison de phase soit observable. Les miroirs à conjugaison de phase utilisant la diffusion stimulée ou le mélange à quatre ondes ont donc des propriétés notablement différentes.

# 6A.4 Propagation d'une onde spatialement inhomogène dans un milieu Kerr

Nous étudions dans cette partie et dans la suivante les effets associés à la propagation d'une onde dans les milieux Kerr. Contrairement à la situation simple de l'onde plane considérée jusqu'à maintenant, nous considérerons une onde dont l'amplitude peut dépendre de l'espace et du temps. Nous étudierons en fait les cas les plus simples : à savoir, une onde transportant une puissance *constante dans le temps* mais dont *l'amplitude varie* 

<sup>&</sup>lt;sup>27</sup>Voir par exemple R.W. Boyd, Nonlinear Optics, Chapitre 8 (Academic Press, 1992).

dans l'espace (autofocalisation et autodéfocalisation) et une onde plane dont l'amplitude est fonction du temps (automodulation de phase).

## 6A.4.1 Autofocalisation

Considérons une onde dont l'amplitude varie transversalement par rapport à l'axe de propagation comme par exemple le *faisceau gaussien* considéré dans le complément 6D.6 pour lequel l'amplitude au col est de la forme

$$E(x,y) = E_0 \exp -\left(\frac{x^2 + y^2}{w_0^2}\right)$$
(6A.69)

Nous supposons que la longueur de Rayleigh est suffisamment grande pour que les fronts d'onde soient plans sur les distances considérées en l'absence de milieu Kerr. La distance à l'axe de propagation du faisceau sera notée  $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ . Si cette onde traverse un milieu dont l'indice de réfraction est de la forme  $n = n_0 + n_2 I$  (voir formule (6A.8)) où  $I = E^2/2$  est l'intensité du faisceau, l'indice va être différent au centre (r = 0) et sur les bords du faisceau  $(r = w_0)$ . Il s'ensuit que pour un milieu de longueur  $\ell$ , la différence de longueur optique  $\Delta \overline{\ell}$  entre le centre et le bord du faisceau est de l'ordre de :

$$\Delta \overline{\ell} \approx n_2 I_0 \ell \tag{6A.70}$$

avec  $I_0 = E_0^2/2$ . Etudions le cas  $n_2 > 0$  qui conduit à l'autofocalisation<sup>28</sup>. Le rayon lumineux correspondant à l'axe du faisceau a parcouru un chemin optique plus long qu'un rayon limuneux parallèle à l'axe et pour lequel  $r \approx w_0/2$ . Cette situation est identique à celle rencontrée à la traversée d'une *lentille convergente* en optique classique. L'onde incidente est ainsi focalisée par la traversée du milieu. Pour trouver l'ordre de grandeur de la distance focale apparente, nous allons chercher à quelle distance OF le rayon correspondant à r = 0 et celui correspondant à  $r = w_0$  se retrouvent en phase (figure 5.2). Pour cela il faut que la différence de longueur dans le vide (BF - OF) compense la différence de longueur due à la propagation dans le milieu Kerr qui est de l'ordre de  $\Delta \overline{\ell}/2$ . En supposant  $w_0 \ll OF$ , nous trouvons

$$BF - OF = \sqrt{OF^2 + \frac{w_0^2}{4} - OF} \approx \frac{w_0^2}{8OF}$$
 (6A.71)

En utilisant (6A.70) et (6A.71)n nous trouvons :

$$OF \approx \frac{w_0^2}{4n_2 I_0 \ell} \tag{6A.72}$$

Pour un système à deux niveaux,  $n_2$  est positif lorsque  $\omega > \omega_0$  (voir formules (6A.6b) et (6A.9d)). L'autofocalisation se produit alors pour des fréquences supérieures à la fréquence de résonance. En revanche, si  $n_2$  est négatif, le milieu non-linéaire se comporte comme une lentille divergente, il y a autodéfocalisation. Pour des atomes à deux niveaux, cela se produit pour des fréquences inférieures à la fréquence de résonance. Le passage de l'autodéfocalisation à l'autofocalisation, quand on traverse la résonance, a été observée dans de nombreuses expériences faites avec des atomes alcalins.

 $<sup>^{28}\</sup>mathrm{L'autofocalisation}$ a été observée en 1964 par R.Y. Chiao, E. Garmire et C.H. Townes.



FIG. 6A.15 : Autofocalisation à travers un milieu non-linéaire mince ( $\ell \ll OF$ ).

#### Remarques

(i) Il existe des méthodes plus rigoureuses pour calculer l'autofocalisation. On peut, par exemple, calculer le déphasage  $\varphi(r)$  à la sortie du milieu dû à la propagation dans le milieu non-linéaire :

$$\varphi(r) = \omega \frac{\ell}{c} \left( n_0 + n_2 I_0 \exp\left(-2\frac{r^2}{w_0^2}\right) \right)$$
(6A.73)

Pour des distances à l'axe r petites :

$$\varphi(r) \approx \omega \frac{\ell}{c} \left[ n_0 + n_2 I_0 \left( 1 - 2 \frac{r^2}{w_0^2} \right) \right]$$
(6A.74)

La dépendence quadratique de la phase avec la variable transverse est exactement celle d'une onde sphérique de rayon de courbure R (voir complément 6D.6, équation (1b)) avec R donné par l'équation (6A.72). Notons toutefois que le passage de (6A.73) à (6A.74) n'étant valable que pour r petit, le point focal n'est pas parfaitement déterminé.

(ii) Dans un milieu fortement non-linéaire, le coefficient non-linéaire  $n_2$  est tel que  $n_2I$  est de l'ordre de  $10^{-15}$  pour un éclairement de  $1(W/m^2)$ . Pour 1 mm d'épaisseur, et pour un faisceau de 1W focalisé sur  $10^{-3}$  mm<sup>2</sup>, la distance de focalisation est alors un peu inférieure à 1 m. Le phénomène est donc observable dans des conditions d'intensité relativement modérées.

Les raisonnements précédents ne sont valables que si le milieu est suffisamment mince pour que l'autofocalisation se manifeste à *l'extérieur* du milieu à une distance grande devant son épaisseur  $\ell$ . La condition de validité de (6A.72) est donc  $\ell \ll OF$  soit :

$$\ell \ll \frac{w_0}{\sqrt{n_2 I_0}} \tag{6A.75}$$

On peut s'interroger sur ce qu'il advient dans des milieux épais pour lesquels  $\ell$  est grand devant  $w_0/\sqrt{n_2I_0}$ . C'est ce que nous allons étudier dans le paragraphe suivant.

## 6A.4.2 Onde autoguidée. Filamentation

Pour évaluer qualitativement la distance OF' au bout de laquelle une onde limitée transversalement du type (6A.15) est focalisée dans le milieu non-linéaire, nous pouvons

partir de la formule (6A.72) et remplacer  $\ell$  par la distance OF' parcourue par la lumière jusqu'au point de focalisation. En appelant w est la dimension transverse du faisceau et en se souvenant que le milieu a un indice linéaire  $n_0$ , on trouve ainsi

$$OF' \approx w \sqrt{\frac{n_0}{4n_2 I_0}} \tag{6A.76}$$

L'angle de convergence vers le « foyer » F' est égal à :

$$\theta_c \approx \frac{w}{OF'} \approx 2\sqrt{\frac{n_2 I_0}{n_0}}$$
(6A.77)

En fait, cette analyse préliminaire néglige un effet important qui s'oppose à la convergence, il s'agit de la *diffraction*. Nous savons, en effet, qu'une onde de dimension transverse w tend à diverger à cause de la diffraction, avec un angle

$$\theta_d \approx \frac{\lambda}{w n_0}$$
(6A.78)

puisque  $\lambda/n_0$  est la longueur d'onde dans le milieu. Le phénomène d'autofocalisation se stabilise lorsque la dimension  $w_f$  du faisceau est tel que les effets d'autofocalisation et de diffraction se compensent. Ceci se produit lorsque  $\theta_c \approx \theta_d$ , c'est-à-dire pour

$$w_f \approx \frac{\lambda}{2\sqrt{n_0 n_2 I_f}} \tag{6A.79}$$

où  $I_f$  est l'intensité de la lumière au centre du filament ainsi créé. Ce filament de dimension transverse constante se propage sans déformation dans le milieu autofocalisant. On décrit parfois ce filament sous le terme de « soliton spatial » (voir § 6A.4.3).

#### Remarques

(i) La formule (6A.79) ne prédit pas tant le diamètre du filament que la puissance  $\Theta_f$  se propageant dans le filament. En effet  $\Theta_f \approx \varepsilon_0 cn_0 I_f w_f^2$  est, d'après (6A.79), égal à :

$$\Theta_f \approx \varepsilon_0 c \frac{\lambda^2}{n_2} \tag{6A.80}$$

Dans une telle approche, on s'attend à ce qu'un faisceau incident de puissance bien supérieure à  $\Theta_f$  se brise en plusieurs filaments dans le milieu non-linéaire<sup>29</sup>. Un tel phénomène de multifilamentation s'amorce sur les inhomogénéités d'intensité de l'onde incidente. Comme il est très généralement nuisible dans les expériences, on cherche à éviter son apparition en lissant l'intensité incidente.

(ii) L'approche précédente n'est pas toujours suffisante parce que les fortes intensités au centre du filament (ou au voisinage du point focal) entraînent que les termes d'ordre supérieur du développement de l'indice en fonction de I ne peuvent plus être négligés. Ainsi dans un gaz au voisinage d'une transition de résonance, l'indice peut-il être aisément complètement

<sup>&</sup>lt;sup>29</sup>Pour plus de détails sur la filamentation, voir par exemple l'article de revue de S.A. Akhmanov, R.V. Khoklov et A.P. Sukhorukov dans Laser Handbook (F.T. Arecchi et E.O. Schulz-Dubois éditeurs), North Holland (1972).

saturé au centre du filament et donc valoir 1 alors qu'il est égal à  $1 + \chi'_1/2$  sur les bords (voir § 6A.1.1). La différence d'indice entre le centre et le bord du faisceau est alors indépendante de l'intensité et égale à la moitié de la suceptibilité  $\chi'_1$ , alors qu'elle est linéaire en intensité (terme en  $n_2I$ ) dans l'hypothèse du milieu Kerr faite dans le paragraphe. La démonstration conduisant à la formule (6A.79) est facilement adaptable au cas d'un indice saturé, on trouve que  $\theta_d$  ne change pas et que  $n_2I$  est remplacé par  $\chi'_1/2$  dans l'expression de  $\theta_c$ . En faisant  $n_0 = 1$  (gaz dilué), on obtient pour ordre de grandeur du diamètre du filament :

$$w_f \approx \frac{\lambda}{\sqrt{2\chi_1'}}$$
 (6A.81)

En utilisant la valeur de  $\chi'_1$  donnée par l'équation (6A.6a), on peut donc prévoir la variation de la dimension du filament en fonction de la densité d'atomes N/V et de l'écart à résonance<sup>30</sup>.

(iii) Il est possible de donner une autre interprétation de l'autoguidage. A cause de la valeur positive de  $n_2$ , l'indice de réfraction est plus grand à l'intérieur du filament qu'à l'extérieur. Un rayon provenant de l'intérieur du filament subira une réfraction totale si son angle d'incidence sur les bords du filament est plus grand qu'un certain angle limite (dont on peut montrer qu'il est de l'ordre de  $(\pi/2 - \theta_c)$  où  $\theta_c$  est donné en (6A.77)). Il s'ensuit que ces rayons sont canalisés à l'intérieur du filament (comme dans une fibre optique) et contribuent à son auto-entretien<sup>31</sup>.

## 6A.4.3 Soliton spatial

Une approche plus quantitative et plus rigoureuse du phénomène de filamentation peut être aisément faite en se limitant à *une seule dimension transverse*<sup>32</sup> notée x. L'équation d'onde à l'approximation paraxiale s'obtient par une démarche analogue à celle menant à l'équation (6A.26) en rajoutant le terme  $\partial^2/\partial x^2$  du laplacien relatif à la variable transverse qui décrit le phénomène de diffraction :

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2} \mathcal{E} + 2i\omega \frac{n_0}{c} \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} = -\frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2} \mathcal{P}_{NL}$$
(6A.82)

à la limite Kerr où  $\mathcal{P}_{NL}$  est proportionnel à l'intensité :

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2} \mathcal{E} + 2i\omega \frac{n_0}{c} \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} = -\frac{\omega^2}{2c^2} \chi_3' |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E}$$
(6A.83)

Cette équation est appelée *équation de Schrödinger non-linéaire*. Cherchons une solution de la forme :

$$\mathcal{E}(x,z) = E_f g(x) \exp(i\alpha E_f^2 z) \tag{6A.84}$$

<sup>&</sup>lt;sup>30</sup>Pour plus de détails voir P.L. Kelley, Phys. Rev. Lett. **15**, 1005 (1965).

<sup>&</sup>lt;sup>31</sup>Pour plus de détails voir R.W. Boyd, Nonlinear Optics § 6-2 (Academic Press, 1992).

<sup>&</sup>lt;sup>32</sup>La solution analytique présentée ici dans le cas d'une dimension transverse ne se généralise pas à deux dimensions. On peut comprendre cela en remarquant que dans un milieu épais, l'autofocalisation produit un accroissement de l'intensité lumineuse sur l'axe qui renforce l'effet d'autofocalisation, cet effet étant bien plus important dans le cas de deux dimensions transverses. Cet effet peut cependant être limité par les effets de saturation (voir remarque (ii)) qui empêchent l'indice non-linéaire de croître indéfiniment sur l'axe.

où g(x) est une fonction réelle telle que g(0) = 1 et qui tend vers 0 pour  $|x| \to \infty$ . (Notons que la dépendance en z correspond au déphasage non-linéaire que l'on aurait pour une onde plane, au paramètre  $\alpha$  près indéterminé pour l'instant). En portant (6A.84) dans l'équation (6A.83), nous trouvons :

$$g'' - a g + b g^3 = 0 (6A.85)$$

avec  $a = 4\alpha(\omega/c)n_0I_f$ ,  $b = (\omega^2/c^2)\chi'_3I_f$  et  $I_f = E_f^2/2$ . Cette équation s'apparente à l'équation de la dynamique d'un point matériel dans un potentiel en  $(bg^4/4 - ag^2/2)$ . En multipliant (6A.85) par g', on obtient par intégration une équation différentielle du premier ordre (qui correspondrait à l'énergie du point matériel équivalent), qui se résout simplement en utilisant la fonction h = 1/g. Tous calculs faits, nous trouvons

$$g(x) = \sqrt{\frac{2a}{b}} \frac{1}{\cosh(x\sqrt{a})} \tag{6A.86}$$

La condition g(0) = 1 entraı̂ne b = 2a et permet de déterminer  $\alpha$ :

$$\alpha = \frac{\omega}{c} \frac{\chi_3'}{8n_0} \tag{6A.87}$$

La dimension transverse  $w_f$  du filament est d'après (6A.86) de l'ordre de  $2/\sqrt{a}$  soit :

$$w_f = \frac{\lambda\sqrt{2}}{\pi\sqrt{\chi'_3 I_f}} \tag{6A.88}$$

Nous pouvons relier  $\chi'_3$  à  $n_0$  et  $n_2$  en utilisant (6A.9b). Il vient alors

$$w_f = \frac{\lambda}{\pi \sqrt{n_0 n_2 I_f}} \tag{6A.89}$$

ce qui est en bon accord avec l'estimation (6A.79) pour la dimension transverse du filament. La solution de (6A.84), (6A.86) de l'équation de Schrödinger non-linéaire est appelée « *soliton spatial* ». Elle correspond à une *propagation sans déformation* de l'onde dans le milieu autofocalisant.

#### Remarque

Il existe aussi une solution analytique pour l'équation de Schrödinger non-linéaire (6A.83) dans un milieu *autodéfocalisant*. Cette solution est appelée *soliton noir*. A une dimension transverse, elle décrit un champ d'intensité nul à l'origine (x = 0) et tendant vers une intensité constante lorsque  $x \to \pm \infty$ . A deux dimensions transverse, on a également un champ nul à l'origine et la phase dans le plan transverse change d'un multiple de  $2\pi$  après circulation autour de l'origine. Il s'agit d'une solution de type *vortex*.

# 6A.5 Propagation d'une impulsion dans un milieu Kerr

## 6A.5.1 Automodulation de phase

Jusqu'ici, nous avons considéré des phénomènes *permanents* et avons étudié des manifestations *spatiales* des processus non-linéaires. On observe aussi des effets intéressants quand on prend en considération l'aspect temporel de tels phénomènes.

Supposons que l'on envoie sur un milieu non-linéaire d'épaisseur  $\ell$  une impulsion intense d'intensité variable I(t). La phase de l'onde à la sortie

$$\varphi = \left[\omega t - n\frac{\omega}{c}\ell\right] \tag{6A.90}$$

va dépendre de l'intensité « *instantanée* » de l'onde comme l'indice  $n = n_0 + n_2 I(t)$ . Le déphasage du à la propagation dépend donc du temps : c'est le phénomène d'automodulation de phase. La fréquence  $\omega_{ins}$  de l'onde qui n'est rien d'autre que la dérivée de la phase par rapport au temps va donc être aussi modifiée :

$$\omega_{\rm ins} = \omega - \frac{\omega}{c} n_2 \ell \frac{dI}{dt} \tag{6A.91}$$

Si l'onde incidente a une fréquence bien définie, l'onde transmise a un spectre en fréquence élargi. De plus, on peut noter que pour  $n_2 > 0$ , la fréquence est plutôt décalée vers le rouge quand l'intensité croît et vers le bleu quand l'intensité décroît. Cet élargissement spectral de l'impulsion est mis à profit dans de nombreux dispositifs pour obtenir des impulsions très courtes. En effet, une impulsion courte dans le domaine temporel doit possèder un spectre de fréquence large. En envoyant une impulsion picoseconde dans un milieu Kerr, on obtient à la sortie du milieu une impulsion élargie dans le domaine des fréquences. On peut alors par un dispositif géométrique<sup>33</sup> comprimer temporellement cette impulsion et aboutir dans le domaine des fremtosecondes.

Une deuxième conséquence est que le temps de propagation dans le milieu (égal à ln/c pour un milieu d'indice n non dispersif) est alors lui-même modulé (puisque n est une fonction du temps), entraînant une distorsion temporelle de l'impulsion incidente : si  $n_2$  est négatif, par exemple, le sommet de l'impulsion va se propager plus rapidement que ses flancs. Il en résultera une forme d'impulsion distordue, avec un flanc de montée de plus en plus raide.

Ces conclusions sont valables uniquement dans un milieu faiblement dispersif. En effet, il existe un autre phénomène (linéaire celui-là) responsable de la déformation d'une impulsion temporelle : il s'agit de la variation de l'indice avec la fréquence. Ce phénomène a généralement tendance à élargir l'impulsion temporelle (voir § 6A.5.2). Le traitement mathématique du comportement temporel de l'impulsion dans ces conditions est assez voisin de celui vu au § 6A.4.3, la diffraction étant remplacée par les effets de dispersion d'indice. On trouve de la même manière que dans certaines conditions les effets non-linéaires et les effets de dispersion se compensent : il y a alors propagation sans distorsion de l'impulsion lumineuse, pourvu que sa forme et son intensité maximum soient bien définies (voir § 6A.5.3). Il s'agit de l'« onde soliton » qui présente un grand intérêt pour le transfert de l'information et dont les propriétés font l'objet de nombreux travaux notamment en vue des applications aux télécommunications par fibre optique qui recherchent la propagation sans étalement d'impulsions les plus courtes possibles pour accroître les débits d'information.

 $<sup>^{33}</sup>$  On utilise par exemple des réseaux ou des prismes permettant d'adapter les longueurs des trajets optiques parcourus par les composantes de longueur d'onde différente de l'impulsion.

## 6A.5.2 Dispersion

Nous nous proposons dans ce paragraphe d'analyser comment une impulsion de durée  $\tau_0$  et de longueur *a* se déforme par suite des effets de dispersion de l'indice. On suppose que le milieu est sans absorption, que l'impulsion se propage dans la direction Oz et que sa fréquence moyenne est  $\omega_0$ . Dans ce paragraphe, la réponse du milieu au champ électromagnétique est supposé *linéaire*.

Pour un problème unidimensionnel, l'équation (6A.20) s'écrit pour une impulsion d'amplitude E et dont la polarisation ne change pas au cours de la propagation<sup>34</sup> :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 P_L}{\partial t^2}$$
(6A.92)

Pour étudier cette équation, nous introduisons d'abord l'enveloppe  $E_+(z,t)$  de l'impulsion :

$$E(z,t) = E_{+}(z,t) \exp i(k_0 z - \omega_0 t) + E_{-}(z,t) \exp -i(k_0 z - \omega_0 t)$$
(6A.93a)

$$E_{-}(z,t) = [E_{+}(z,t)]^{*}$$
(6A.93b)

où  $k_0$  est le vecteur d'onde pour une onde de fréquence  $\omega_0(k_0 = (\omega_0/c)\sqrt{1 + \chi'_1(\omega_0)})$ , puis un développement de Fourier dans l'espace des temps :

$$E_{+}(z,t)\exp(-i\omega_{0}t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int d\omega \mathcal{E}(z,\omega)\exp(-i\omega t)$$
(6A.94)

Des transformations analogues sont faites sur la polarisation linéaire :

$$P_L(z,t) = P_+(z,t) \exp i(k_0 z - \omega_0 t) + P_-(z,t) \exp -i(k_0 z - \omega_0 t)$$
(6A.95a)

$$P_{+}(z,t)\exp(-i\omega_{0}t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\int d\omega \mathcal{P}(z,\omega)\exp(-i\omega t)$$
(6A.95b)

En utilisant la relation entre la polarisation diélectrique et le champ  $\mathcal{P} = \varepsilon_0 \chi'_1(\omega) \boldsymbol{\mathcal{E}}$  (voir (6A.7a), on aboutit à l'équation :

$$\frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial z^2} + 2ik_0 \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} + (k^2 - k_0^2)\mathcal{E} = 0$$
 (6A.96a)

où l'on a posé

$$k = (\omega/c)\sqrt{1 + \chi_1'(\omega)}$$
 (6A.96b)

Transformons l'équation (6A.96a) en faisant d'une part l'approximation de l'enveloppe lentement variable (qui consiste à négliger le premier terme du membre de gauche de l'équation (6A.96a) et d'autre part en remplaçant  $(k^2 - k_0^2)$  par  $2k_0(k - k_0)$ , ce qui est

 $<sup>^{34}</sup>$ C'est le cas lorsque la susceptibilité est scalaire. En l'absence de causes extérieures (champ électrique ou magnétique supplémentaire, pompage optique, etc...), c'est la situation habituelle en physique atomique.

légitime pour une distribution en fréquence étroite et centrée autour de  $\omega = \omega_0$ . L'équation (6A.96a)devient alors :

$$i\frac{\partial \boldsymbol{\mathcal{E}}}{\partial z} + (k - k_0)\boldsymbol{\mathcal{E}} = 0 \tag{6A.97}$$

Pour les valeurs de k voisines de  $k_0$ , qui sont les seules valeurs à prendre en compte à cause de l'hypothèse sur l'étroitesse de la distribution en fréquence du champ, il est possible d'utiliser un développement de Taylor de  $k(\omega)$ :

$$k = k_0 + (\omega - \omega_0) \left(\frac{dk}{d\omega}\right)_0 + \frac{1}{2}(\omega - \omega_0)^2 \left(\frac{d^2k}{d\omega^2}\right)_0$$
(6A.98)

Ce développement fait apparaître la vitesse de groupe  $v_0$  de l'impulsion (prise pour la fréquence centrale  $\omega = \omega_0$ ) :

$$v_0 = \left(\frac{dk}{d\omega}\right)_0 \tag{6A.99}$$

ainsi que la dispersion des vitesses de groupe puisque :

$$\frac{d^2k}{d\omega^2} = \frac{d}{d\omega} \left(\frac{1}{v}\right) = -\frac{1}{v^2} \left(\frac{dv}{d\omega}\right) \tag{6A.100}$$

L'équation (6A.97) est alors transformée en

$$i\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial z} + \left(\frac{1}{v_0}\right)(\omega - \omega_0)\mathcal{E} - \frac{1}{2v_0^2}\left(\frac{dv}{d\omega}\right)_0(\omega - \omega_0)^2\mathcal{E} = 0$$
(6A.101)

Pour trouver l'équation vérifiée par l'enveloppe  $E_+(z,t)$ , nous récrivons (6A.94) sous la forme :

$$E_{+}(z,t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int d\omega \mathcal{E}(z,\omega) \exp[i(\omega_{0}-\omega)t]$$
(6A.102)

En dérivant (6A.102) par rapport au temps, nous trouvons :

$$\frac{\partial E_{+}(z,t)}{\partial t} = -\frac{i}{\sqrt{2\pi}} \int d\omega \mathcal{E}(z,\omega)(\omega-\omega_0) \exp[i(\omega_0-\omega)t]$$
(6A.103a)

$$\frac{\partial^2 E_+(z,t)}{\partial t^2} = -\frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int d\omega \mathcal{E}(z,\omega) (\omega - \omega_0)^2 \exp[i(\omega_0 - \omega)t]$$
(6A.103b)

Les équations (6A.101), (6A.102) et (6A.103) entraînent alors :

$$i\frac{\partial E_{+}}{\partial z} + \frac{i}{v_{0}}\frac{\partial E_{+}}{\partial t} + \frac{1}{2v_{0}^{2}}\left(\frac{dv}{d\omega}\right)_{0}\frac{\partial^{2}E_{+}}{\partial t^{2}} = 0$$
(6A.104)

En l'absence du terme en  $\partial^2/\partial t^2$ , qui traduit la dispersion des vitesses selon la fréquence, l'équation (6A.104) décrirait un mouvement sans déformation de l'enveloppe à la vitesse  $v_0$ . Ceci suggère d'introduire comme nouvelles variables z et

$$Z = z - v_0 t \tag{6A.105}$$

qui correspond à l'abscisse dans le référentiel en mouvement avec l'impulsion. Avec ces nouvelles variables, l'équation (6A.104) devient :

$$i\frac{\partial E_{+}}{\partial z} + \frac{1}{2}\left(\frac{dv}{d\omega}\right)_{0}\frac{\partial^{2}E_{+}}{\partial Z^{2}} = 0$$
(6A.106)

Comme prévu, on trouve qu'en l'absence de dispersion (terme en  $\partial^2/\partial Z^2$ ),  $E_+$  ne dépendrait que de Z, c'est-à-dire que l'impulsion se propagerait sans déformation à la vitesse  $v_0$ . Le terme en  $\partial^2/\partial Z^2$ ) décrit donc bien le fait que l'impulsion se déforme par suite de l'éparpillement des vitesses de groupe. Remarquons que l'équation (6A.106) a la même forme mathématique que l'équation de Schrödinger pour une particule matérielle libre. Le phénomène d'étalement du paquet d'onde démontré en mécanique quantique se manifeste ici par un élargissement de l'impulsion lumineuse au cours de la propagation.

#### Remarque

Les deux approximations faites pour passer de (6A.96a) à (6A.97) ne sont pas indépendantes. Pour négliger  $\partial^2 \boldsymbol{\mathcal{E}}/\partial z^2$  devant  $2ik_0(\partial \boldsymbol{\mathcal{E}}/\partial z)$  il faut que la dimension spatiale de l'impulsion a soit telle que  $k_0 a \gg 1$ , c'est-à-dire que la dimension spatiale soit beaucoup plus longue que la longueur d'onde moyenne. Pour remplacer  $(k^2 - k_0^2)$  par  $2k_0(k - k_0)$  il faut que la largeur en k du paquet d'onde, qui est de l'ordre de 1/a, soit petite devant  $k_0$ . On doit donc aussi avoir  $k_0 a \gg 1$ . Il est donc logique de faire simultanément ces deux approximations.

## 6A.5.3 Soliton temporel

Dans un milieu Kerr, le second membre de l'équation (6A.92) fait intervenir la polarisation diélectrique totale P au lieu de sa composante linéaire  $P_L$ . Dans ce cas, il est néanmoins utile de décomposer P en ses composantes linéaire et non-linéaire (voir (6A.11)) :

$$P = P_L + P_{NL} \tag{6A.107a}$$

avec

$$P_{NL} = \varepsilon_0 \chi'_3 I(z,t) E(z,t) \tag{6A.107b}$$

L'intensité I correspond à une moyenne sur un temps long devant la période optique. Si celle-ci est courte devant la durée de l'impulsion, on a

$$I(z,t) = 2E_{+}(z,t)E_{+}^{*}(z,t)$$
(6A.108)

Revenons à l'équation de propagation du champ qui généralise (6A.92) au cas d'une polarisation diélectrique de la forme (6A.107a). Comme la fréquence moyenne  $\omega_0$  est beaucoup plus grande que a/c (inverse de la largeur temporelle de l'impulsion), le terme dominant de  $\partial^2 P_{NL}/\partial t^2$  provient de la dérivation de  $\exp(-i\omega_0 t)$ . On trouve ainsi :

$$\frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} \cong -\frac{2\omega_0^2}{c^2} \chi_3'(E_+^* E_+) [E_+ \exp i(k_0 z - \omega_0 t) + c.c.]$$
(6A.109)

En ajoutant ce terme, l'équation de propagation (6A.106) devient :

$$i\frac{\partial E_+}{\partial z} + \frac{1}{2}\left(\frac{dv}{d\omega}\right)_0 \frac{\partial^2 E_+}{\partial Z^2} + \frac{\omega_0}{n_0 c}\chi_3'(E_+^*E_+)E_+ = 0$$
(6A.110)

où  $n_0 = \sqrt{1 + \chi'_1(\omega_0)}$  est l'indice (linéaire) pour une onde de fréquence  $\omega_0$ . Ceci est une équation de Schrödinger non-linéaire tout à fait analogue à (6A.83) et elle admet donc des solutions analogues. Ainsi, lorsque  $(dv/d\omega_0)$  et  $\chi'_3$  ont mêmes signes, on trouve une solution analogue au filament brillant donné en (6A.84) et qui correspond dans le cas présent à un soliton temporel. Une solution particulière de (6A.110) est donc :

$$E_{+}(z,Z) = E_s \frac{\exp\left(i\frac{\omega_0}{2n_0c}\chi'_3 E_s^2 z\right)}{\cosh\left(\frac{Z}{a}\right)}$$
(6A.111)

avec pour dimension spatiale a du soliton :

$$a = \sqrt{\frac{n_0 c \left(\frac{dv}{d\omega}\right)_0}{\omega_0 \chi'_3 E_s^2}} \tag{6A.112}$$

Cette relation liant la dimension spatiale du soliton et son intensité peut encore être écrite de la façon suivante en utilisant (6A.9b) :

$$E_s^2 = \frac{c \left(\frac{dv}{d\omega}\right)_0}{2\omega_0 n_2 a^2} \tag{6A.113}$$

Dans les fibres optiques,  $\chi'_3$  est positif et l'existence d'impulsions soliton n'est possible que pour  $(dv/d\omega)_0 > 0$ . Cette dernière condition correspond à un milieu ayant une dispersion anormale (puisque la vitesse de groupe en principe diminue quand on s'approche de résonance). Dans les fibres  $(dv/d\omega)_0$  change de signe pour une longueur d'onde voisine de 1,  $3\mu$ m ce qui permet d'observer des ondes solitons au voisinage de 1,  $5\mu$ m qui est au voisinage du minimum des pertes de la fibre et qui correspond à la longueur d'onde typique de fonctionnement des amplificateurs à Erbium (voir cours « Optique Quantique 1 », Chapitre III). Ces impulsions solitons peuvent constituer les éléments d'un transport digital de l'information.

#### Remarques

(i) La démarche suivie pour aboutir à (6A.110) peut être critiquée dans la mesure où la susceptibilité non-linéaire est supposée indépendante de la fréquence alors que la dispersion sur la susceptibilité linéaire est fondamentale pour obtenir l'onde soliton. En fait, la prise en compte de la dispersion sur la susceptibilité non-linéaire conduirait à des termes correctifs d'autant plus petits que la largeur spectrale de l'onde soliton est petite.

(ii) Dans le cas où la susceptibilité non-linéaire et la dispersion des vitesses de groupe ont des signes opposés, il existe aussi une onde soliton mais celle-ci prend la forme d'un trou dans une distribution uniforme d'intensité. Cette solution correspond à un soliton *noir*. Elle est analogue au soliton spatial trouvé dans les milieux défocalisants (voir la remarque à la fin du § 6A.4.3).

(iii) A cause de sa grande importance aussi bien au niveau appliqué que fondamental, de nombreux ouvrages ont été publiés sur l'optique non-linéaire depuis le livre de B. Bloembergen (Nonlinear Optics, World Scientific) qui reste une référence incontournable. Parmi les livres plus récents, certains sont très généraux, comme par exemple R.W. Boyd (Nonlinear Optics, Academic Press), Y.R. Shen (The Principles of Nonlinear Optics, Wiley) ou H. Schubert et B. Wilhelmi (Nonlinear Optics and Quantum Electronics, Wiley). D'autres sont plus ciblés sur un problème précis comme D.C. Hanna, M.A. Yuratich et D. Cotter (Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules, Springer) qui traite des effets dans les gaz ou A. Newell et J. Moloney (Nonlinear OPtics, Addison Wesley) qui analyse les effets de propagation. Cette liste est évidemment non-exhaustive.

# Complément 6B Non-linéarité du second ordre dans les milieux non centrosymétriques

Le chapitre V a été consacré aux milieux pour lesquels la polarisation ne dépendait que des *puissances impaires* du champ électrique. Une telle situation se rencontre dans les vapeurs atomiques et plus généralement dans les milieux centrosymétriques décrits par un hamiltonien invariant dans la transformation  $\mathbf{r} \to -\mathbf{r}$ . Il existe des situations physiques nombreuses et importantes où cette symétrie est absente. C'est en particulier le cas de nombreux *cristaux*. En l'absence de cette symétrie, des termes *pairs* peuvent apparaître dans le développement de la polarisation en puissances du champ. Ces nouveaux termes vont être responsables de l'apparition d'effets importants comme le *doublage de fréquence* et le *mélange paramétrique*. Après avoir présenté un modèle simple pour lequel apparaissent des non-linéarités du second ordre (Partie 6B.1), nous étudions dans la partie 6B.2 quelques effets physiques engendrés par ces non-linéarités<sup>1</sup>.

# 6B.1 Non-linéarités du second ordre

## 6B.1.1 Étude d'un modèle simple

Dans les systèmes atomiques isolés, les éléments de matrice diagonaux du dipôle électrique (dans la base des états propres de l'hamiltonien) sont *nuls* pour des raisons de symétrie : en effet l'hamiltonien d'un atome étant invariant dans la transformation  $\mathbf{r} \rightarrow -\mathbf{r}$ (parité), les états propres sont de parité bien définie. Un élément de matrice diagonal, égal à l'intégrale dans tout l'espace d'une fonction impaire, en l'occurrance le produit de  $\mathbf{r}$  par le carré d'une fonction paire ou impaire est donc nul. Lorsque la symétrie par parité est absente, les éléments de matrice diagonaux du dipôle peuvent être non nuls (c'est

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Pour plus de détails, on pourra consulter les ouvrages cités dans la remarque concluant le chapitre V.

par exemple ce qui arrive quand on place un atome dans un champ électrique statique<sup>2</sup>). Nous nous proposons d'en étudier les conséquences sur la dynamique d'un système à deux niveaux (a, b) soumis à un rayonnement de fréquence  $\omega$ . Nous nous limitons au cas où la fréquence  $\omega$  du champ appliqué est petite devant la fréquence de Bohr du système  $\omega_0 = (E_b - E_a)/\hbar$  (limite « paramétrique ») et où l'onde incidente est polarisée linéairement suivant la direction  $\vec{\varepsilon}$  du dipôle couplant les états a et b.

Nous supposerons également qu'un seul des deux éléments diagonaux  $D_{bb} = \langle b | \hat{\mathbf{D}} \cdot \vec{\boldsymbol{\varepsilon}} | b \rangle$  est non nul de sorte que l'opérateur dipolaire électrique est représenté dans la base des états a et b par la matrice

$$\begin{pmatrix} 0 & d \\ d & D_{bb} \end{pmatrix}$$
(6B.1)

Pour calculer le dipôle induit, nous utilisons la même méthode que dans le chapitre II du cours « Optique Quantique » (partie D). Nous cherchons les composantes du vecteur d'état  $|\psi(t)\rangle$  du système sur la base  $|a\rangle, |b\rangle$ :

$$|\psi(t)\rangle = \gamma_a(t) \exp\left(-i\frac{E_a}{\hbar}\right)|a\rangle + \gamma_b(t) \exp\left(-i\frac{E_b}{\hbar}\right)|b\rangle$$
(6B.2)

avec la condition initiale  $|\psi(0)\rangle = |a\rangle$ . Le champ électrique appliqué est pris de la forme  $\mathbf{E}(t) = \vec{\boldsymbol{\varepsilon}} E(t) = \vec{\boldsymbol{\varepsilon}} E \sin \omega t$ . L'équation de Schrödinger s'écrit dans la base  $|a\rangle, |b\rangle$ :

$$i\hbar \frac{d\gamma_a}{dt} = -dE(t)e^{-i\omega_0 t}\gamma_b$$

$$i\hbar \frac{d\gamma_b}{dt} = -E(t)\Big(D_{bb}\gamma_b + d\gamma_a e^{i\omega_0 t}\Big)$$
(6B.3)

La connaissance du vecteur d'état permettra de calculer la valeur moyenne du dipôle électrique<sup>3</sup> :

$$\langle \hat{D} \rangle = D_{bb} |\gamma_b|^2 + d(\gamma_a)^* \gamma_b e^{-i\omega_0 t} + d\gamma_a (\gamma_b)^* e^{i\omega_0 t}$$
(6B.4)

Nous résolvons les équations (6B.3) de manière perturbative en puissances de E, sous la forme :

$$\gamma_a = \sum_{n=0}^{\infty} \gamma_a^{(n)} \quad ; \quad \gamma_b = \sum_{n=0}^{\infty} \gamma_b^{(n)} \tag{6B.5}$$

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>La parité est également brisée à l'interface entre deux milieux. Ainsi des molécules déposées sur une surface peuvent-elles rayonner un champ de fréquence double du champ incident (voir Y.R. Shen « Surface nonlinear optics and applications » dans « Fundamental Systems in Quantum Optics », Les Houches 1990, J. Dalibard, J.M. Raimond et J. Zinn-Justin editeurs, p. 1049, North Holland 1992). En revanche, on pourra noter qu'un champ magnétique statique (qui est un pseudo-vecteur) ne brise pas la parité.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Dans le cadre des hypothèses simplificatrices de ce complément, le dipôle électrique est parallèle à la polarisation du champ. C'est pourquoi nous traitons dans la suite le champ électrique, le dipôle électrique et la polarisation du milieu comme des scalaires.

où  $\gamma_a^{(n)}$  et  $\gamma_b^{(n)}$  sont proportionnels à  $E^n$ . On trouve ainsi :

- À l'ordre 0,  $\gamma_a^{(0)} = 1$  et  $\gamma_b^{(0)} = 0$  (comme cela était prévisible).
- À l'ordre 1,  $\gamma_a^{(1)} = 0$ , et l'équation d'évolution de  $\gamma_b^{(1)}$  s'écrit :

$$i\hbar \frac{d\gamma_b^{(1)}}{dt} = -Ed(\sin\omega t)\exp(i\omega_0 t)$$
(6B.6)

Elle a pour solution :

$$\gamma_b^{(1)}(t) = \frac{Ed}{2\hbar} \left( \frac{e^{i(\omega_0 + \omega)t} - 1}{i(\omega_0 + \omega)} - \frac{e^{i(\omega_0 - \omega)t} - 1}{i(\omega_0 - \omega)} \right)$$
(6B.7)

À la limite paramétrique ( $\omega \ll \omega_0$ ), les dénominateurs d'énergie de (6B.7) peuvent être remplacé par  $i\omega_0$  et l'équation (6B.7) prend la forme simple suivante :

$$\gamma_b^{(1)}(t) \cong \frac{dE\sin\omega t}{\hbar\omega_0} e^{i\omega_0 t}$$
(6B.8)

• À l'ordre 2, nous n'aurons besoin que de  $\gamma_b^{(2)}$  qui vaut :

$$\gamma_b^{(2)}(t) = \frac{dD_{bb}(E\sin\omega t)^2}{\hbar^2 \Omega_0^2} e^{i\Omega_0 t}$$
(6B.9)

En reportant ces valeurs dans (6B.4), on obtient finalement la valeur moyenne du dipôle, au second ordre, pour ce système à deux niveaux :

$$\langle \hat{D} \rangle = \frac{2d^2}{\hbar\omega_0} E(t) + \frac{3d^2 D_{bb}}{(\hbar\omega_0)^2} (E(t))^2$$
 (6B.10)

Si le milieu contient une densité N/V de tels systèmes à deux niveaux ayant des dipôles orientés suivant la même direction  $\vec{\epsilon}$ , la polarisation moyenne du milieu  $\mathbf{P} = \vec{\epsilon} P = \vec{\epsilon} N \langle \hat{D} \rangle / V$  peut, à la *limite paramétrique*, s'écrire :

$$P = \varepsilon_0 \sum_n \chi^{(n)} (E(t))^n \tag{6B.11a}$$

avec

$$\chi^{(1)} = \frac{2Nd^2}{\varepsilon_0 V \hbar \omega_0} \tag{6B.11b}$$

$$\chi^{(2)} = \frac{3Nd^2 D_{bb}}{\varepsilon_0 V \hbar^2 \omega_0^2} \tag{6B.11c}$$

La susceptibilité linéaire  $\chi^{(1)}$  a une forme similaire à l'expression (6A.6.a) du chapitre 6.5. Cependant, il convient de noter que la formule du chapitre avait été calculée à l'approximation quasi-résonnante alors que la relation (6B.11.b), valable pour  $\omega \ll \omega_0$ , contient à la fois les contributions résonnantes et non résonnantes (c'est l'origine du facteur 2 au numérateur de (6B.11.b)). Il s'agit donc de valeurs limites différentes de la même quantité (dont l'expression exacte peut être déduite de l'équation (5C.16) du chapitre IV).

#### Remarques

(i) La comparaison de la formule (6B.11.a) avec la formule (6A.5) du chapitre 6.5 montre qu'un calcul *exact* devrait conduire aux égalités suivantes :

$$\chi'_{1} = \chi^{(1)}$$

$$\chi'_{3} = \frac{3}{4}\chi^{(3)}$$
(6B.12)

(ii) Nous avons présenté dans ce paragraphe un calcul extrêmement simplifié des susceptibilités du deuxième ordre. On pourrait faire un calcul plus précis en utilisant la matrice densité (voir chapitre 4) dans lequel on prendrait une forme généralisant (6B.1) pour l'opérateur dipolaire.

# 6B.1.2 Propriétés de la susceptibilité d'ordre 2 à la limite paramétrique

La susceptibilité d'ordre 2 par la formule (6B.11.c) a les caractéristiques suivantes :

Étant proportionnelle au produit  $d^2D_{bb}$ , son apparition nécessite l'existence simultanée d'éléments de matrice diagonaux et non diagonaux de l'opérateur dipolaire électrique. On voit bien que l'existence d'un coefficient  $\chi^{(2)}$  différent de 0 est fondamentalement lié à l'absence de symétrie par parité dans le système considéré. C'est le cas de beaucoup de structures moléculaires et cristallines. En revanche, un atome isolé ou une vapeur atomique<sup>4</sup> est invariante par parité et ne donne pas lieu à des non-linéarités du deuxième ordre.

La susceptibilité ainsi calculée se trouve être réelle, et ne donne donc pas lieu à un phénomène d'absorption. Cette propriété est caractéristique de la *limite paramétrique*. Aucun transfert énergétique de l'onde vers le système matériel n'est possible, l'énergie d'un photon incident étant bien trop petite pour créer une population réelle dans le niveau excité b. Le seul effet du champ incident est de *modifier les fonctions d'onde*. Une telle situation se rencontre fréquemment lorsqu'on utilise des cristaux comme le quartz, le KDP, le Niobate de Lithium etc... soumis à un rayonnement visible, car leurs bandes d'absorption se trouvent dans l'ultra-violet lointain.

Le calcul de la susceptibilité non-linéaire a été fait ici avec une onde monochromatique de fréquence  $\omega$  et le résultat obtenu ne dépend pas de cette fréquence. On peut se convaincre aisément que le calcul précédent reste valable pour un champ de dépendance temporelle plus complexe, pourvu que *toutes* ses composantes de Fourier se situent dans la limite paramétrique  $\omega \ll \omega_0$ . Ceci est en particulier le cas pour le champ composé de deux ondes monochromatiques que nous étudierons en détail dans le paragraphe 6B.2.3.

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>Une vapeur composée de molécules possédant un moment dipolaire permanent donne également un coefficient  $\chi^{(2)}$  nul parce que les dipoles sont orientés de façon isotrope.

## 6B.2 Exemples d'effets non-linéaires du second ordre

Nous nous proposons maintenant d'étudier un certain nombre d'effets associés à l'existence d'une susceptibilité du second ordre  $\chi^{(2)}$ . Une telle étude commence naturellement par le premier phénomène découvert en optique non linéaire : le *doublage de fréquence*<sup>5</sup>.

## 6B.2.1 Doublage de fréquence

Le système étudié est schématisé sur la figure 6B.1 : il consiste en un matériau nonlinéaire de longueur  $\ell$ , caractérisé par un coefficient non-linéaire  $\chi^{(2)}$ , qui est illuminé par une onde plane intense de fréquence  $\omega$  et d'amplitude  $\mathcal{E}_{\omega}$  se propageant le long de l'axe Oz:

$$E(z,t) = \operatorname{Re} \left\{ \mathcal{E}_{\omega} \exp i \left( n_{\omega} \frac{\omega}{c} z - \omega t \right) \right\}$$
(6B.13)

Nous appellons  $n_{\omega}$  et  $n_{2\omega}$  l'indice de réfraction du milieu aux fréquences  $\omega$  et  $2\omega$  respectivement<sup>6</sup>.



FIG. 6B.1 : Doublage de fréquence dans un matériau non-linéaire.

Pour éviter d'alourdir les calculs nous supposerons le processus de doublage suffisamment inefficace pour que l'on puisse négliger la variation de l'amplitude de l'onde (6B.13) au cours de la traversée du cristal. Sous l'action du champ incident, la polarisation nonlinéaire  $P_{NL}(z,t)$  du milieu (qui, rappelons-le, est la différence entre la polarisation totale et la polarisation linéaire, voir chapitre 6.5, § 6A.1) contient une composante de Fourier à la fréquence  $2\omega$  puisque le dipôle électrique (6B.10) présente une composante à cette fréquence. La décomposition de  $P_{NL}(z,t)$  en ses diverses harmoniques :

$$P_{NL}(z,t) = \operatorname{Re} \left\{ \sum_{p} \mathcal{P}_{NL}(p\omega) \exp\left[ip(n_{\omega}\frac{\omega}{c}z - \omega t\right] \right\}$$
(6B.14)

donne, compte-tenu de (6B.11.a), (6B.13) et (6B.14), pour la composante de Fourier à la fréquence  $2\omega$ :

$$\mathcal{P}_{NL}(2\omega) = \frac{\varepsilon_0}{2} \chi^{(2)} \boldsymbol{\mathcal{E}}_{\omega}^2$$
(6B.15)

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>Cet effet a été observé pour la première fois par P.A. Franken et ses collaborateurs en 1961.

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup>Ces indices sont associés à la susceptibilité linéaire. Ils sont donc considérés comme indépendant de l'intensité des ondes.

L'équation de propagation du champ à la fréquence double

$$E_{2\omega}(z,t) = \operatorname{Re}\left[\mathcal{E}_{2\omega}(z)\exp i(n_{2\omega}\frac{2\omega}{c}z - 2\omega t)\right]$$
(6B.16a)

se trouve par une méthode semblable à celle à l'équation (6A.26) du chapitre 6.5. Il faut prendre comme terme source pour l'équation de propagation de ce champ, la composante de Fourier temporelle de la polarisation à la fréquence  $2\omega$ . On obtient ainsi, à l'approximation de l'enveloppe lentement variable (voir chapitre 6.5, §6A.1.4) :

$$\frac{d\mathcal{E}_{2\omega}}{dz} = \frac{i\omega}{\varepsilon_0 c n_{2\omega}} \mathcal{P}_{NL}(2\omega) \exp\left[2i(n_\omega - n_{2\omega})\frac{\omega}{c}z\right]$$
(6B.16b)

La différence avec l'équation (6A.26) du chapitre 6.5 réside dans le facteur du second membre qui décrit le déphasage entre la propagation du champ à la fréquence  $2\omega$  et la polarisation du milieu qui engendre ce champ. Ce facteur valait 1 dans le chapitre 6.5 parce que tous les champs avaient même fréquence et donc même indice linéaire.

La solution de (6B.16.b) correspondant à la condition initiale :  $\mathcal{E}_{2\omega}(0) = 0$  (champ de fréquence  $2\omega$  nul à l'entrée du milieu) est égale, compte-tenu de (6B.15), à :

$$\mathcal{E}_{2\omega}(\ell) = \frac{\chi^{(2)} \mathcal{E}_{\omega}^2}{4n_{2\omega}(n_{\omega} - n_{2\omega})} \left( \exp\left\{2i\omega(n_{\omega} - n_{2\omega})\frac{\ell}{c}\right\} - 1 \right)$$
(6B.16c)

En utilisant la relation  $\Phi = \frac{1}{2} n \varepsilon_0 c |\mathcal{E}|^2 A$  liant la puissance  $\Phi$  transportée par le faisceau au vecteur de Poynting et à la surface A éclairée par le champ, on trouve l'expression de la puissance de sortie  $\Phi_{2\omega}$  en fonction de la puissance incidente  $\Phi_{\Omega}$  et de la surface A de focalisation de l'onde sur le cristal :

$$\Phi_{2\omega} = \frac{(\chi^{(2)})^2}{2\varepsilon_0 c n_{2\omega} n_{\omega}^2} \frac{\Phi_{\Omega}^2}{A} \frac{\sin^2 \left[ (n_{\omega} - n_{2\omega}) \omega \frac{\ell}{c} \right]}{(n_{\omega} - n_{2\omega})^2}$$
(6B.17)

La relation (6B.17) appelle un certain nombre de commentaires. La puissance de sortie est proportionnelle au carré de la puissance incidente, comme cela est attendu pour un effet du second ordre. Elle varie aussi en raison inverse de la surface illuminée. On pourrait, a priori, en conclure qu'on a intérêt à focaliser au maximum le faisceau incident. Cela est vrai jusqu'à une certaine valeur : une forte focalisation s'accompagne nécessairement d'une rapide divergence du faisceau, qui fait diminuer son intensité lorsqu'on s'éloigne du foyer et donc l'efficacité du processus non-linéaire. Le doublage est en fait efficace sur une longueur de l'ordre de la longueur de Rayleigh  $z_R$  (voir Complément 6D.6) du faisceau incident. En pratique, on s'arrangera pour que  $z_R$  soit de l'ordre de grandeur de la longueur  $\ell$  du milieu non-linéaire. En utilisant les résultats du complément 6D.6, il est possible de montrer que la section A du faisceau est alors de l'ordre de  $\ell\lambda$ .

La variation de l'efficacité du doublage de fréquence avec la longueur  $\ell$  du matériau non-linéaire dépend de manière cruciale de la valeur respective des indices aux deux fréquences concernées. Si la condition :

$$n_{\omega} = n_{2\omega} \tag{6B.18}$$

est remplie, le transfert énergétique de l'onde pompe vers l'harmonique, 2 est maximal et croît comme  $\ell^2$ . Si la condition (6B.18) n'est pas remplie, la puissance du faisceau doublé présente un comportement oscillant en fonction de  $\ell$ , allant même jusqu'à s'annuler pour des longueurs de cristal multiples de  $\lambda/2(n_{\omega} - n_{2\omega})$  (voir figure 6B.2). Cet effet est dû à une *interférence destructive* entre les champs rayonnés à la fréquence  $2\omega$  par différents points du cristal<sup>7</sup>.



FIG. 6B.2: Intensité de l'harmonique 2 en fonction de la longueur  $\ell$  du milieu non-linéaire. L'intensité croît de façon monotone lorsqu'il y a accord de phase. Elle oscille et s'annule pour des valeurs de  $\ell$  multiples de  $\lambda/2(n_{\omega} - n_{2\omega})$  lorsque l'indice pour l'harmonique diffère de l'indice de l'onde incidente.

La condition (6B.18) est appelée condition d'accord de phase : elle exprime l'égalité des vitesse de phase<sup>8</sup> dans le milieu pour les ondes de fréquences  $\omega$  et  $2\omega$ . Elle assure une interférence constructive entre les champs de fréquence  $2\omega$  émis par tous les points du cristal. La variation de l'indice avec la fréquence étant monotone si on est loin d'une fréquence de résonance du milieu, cette condition apparaît de prime abord impossible à satisfaire. Elle peut être cependant remplie dans des cristaux biréfringents, où l'on peut rendre égaux par exemple l'indice extraordinaire à la fréquence  $2\omega$  et l'indice ordinaire à la fréquence  $\omega$  (voir figure 6B.3)<sup>9</sup>, ces deux indices étant associés à des polarisations différentes<sup>10</sup>. Comme l'indice extraordinaire dépend de l'angle d'incidence de la lumière, il suffit d'orienter convenablement le cristal par rapport au faisceau incident pour obtenir la condition d'accord de phase et donc l'efficacité de doublage maximum.

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup>Cet effet a été observé et étudié par P.D. Maker, R.W. Terhune, M. Nisenoff et C.M. Savage en 1962. Il existe une solution analytique, obtenue par J.A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing et P.S. Pershan, Phys. Rev. **127**, 1918 (1962), des équations de propagation couplées pour l'onde harmonique et l'onde fondamentale.

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup>La longueur d'onde dans le milieu est égale à  $\lambda/n$  où  $\lambda$  est la longueur d'onde dans le vide et n est l'indice du milieu. La condition d'accord de phase entraîne que la longueur d'onde associée à la fréquence  $2\omega$  dans le milieu est exactement la moitié de la longueur d'onde associée à la fréquence  $\omega$ .

<sup>&</sup>lt;sup>9</sup>Selon les milieux, l'indice extraordinaire peut être plus grand ou plus petit que l'indice ordinaire et on utilise ainsi l'indice ordinaire soit pour l'onde harmonique soit pour l'onde incidente.

<sup>&</sup>lt;sup>10</sup>Le formalisme de la partie 6B.1 doit être adapté pour prendre en compte ces effets qui ne peuvent pas être décrits par des systèmes à deux niveaux.

Donnons pour finir un ordre de grandeur de l'effet de doublage dans des conditions expérimentales réalistes. Un cristal doubleur a typiquement un coefficient  $\chi^{(2)}$  de l'ordre de  $10^{-12}$  m/V. Alors, un cristal de 1 cm de long éclairé par un laser YAG à 1,06 $\mu$ m continu de 1W donnera une puissance pour le faisceau doublé, à la longueur d'onde de 0,53 $\mu$ m, de l'ordre de 0,1mW. Pour augmenter le rendement de conversion, il faut augmenter l'intensité incidente (cf. Éq. 6B.17). On peut inclure le cristal non-linéaire dans une cavité optique résonnante à la fréquence de pompe (voir complément 6C.3, §6D.2), ou bien utiliser des lasers en impulsion, de puissance crête bien plus importante. Dans les deux cas, on peut atteindre des *rendements de conversion supérieurs* à 50%. La technique de doublage de fréquence est largement utilisée, soit pour atteindre des domaines spectraux dans lesquels il y a peu de lasers disponibles (c'est le cas de l'ultra-violet), soit pour produire des faisceaux cohérents dans le visible à partir de lasers infra-rouge de grand rendement.



FIG. 6B.3: Exemple de variation des indices ordinaires  $n_0(\omega)$  et extraordinaire  $n_e(\omega)$  avec la fréquence. On a représenté l'indice extraordinaire pour trois incidences  $i_1, i_2$  et  $i_3$ . L'accord de phase est réalisé pour l'incidence  $i_2$ .

#### Remarques

(i) Il est possible en utilisant des composantes d'ordre plus élevé de la polarisation nonlinéaire d'engendrer d'autres harmoniques du faisceau incident. Le triplage de fréquence est ainsi un phénomène relativement facile à observer dans une vapeur atomique. Cette émission d'harmoniques est maximale quand la condition d'accord de phase est réalisée. Pour l'harmonique 3, l'accord de phase est obtenu par  $n_{\omega} = n_{3\omega}$ .

(ii) En utilisant les impulsions très intenses des lasers femtosecondes, on a pu obtenir dans des gaz des harmoniques d'ordre supérieur à 100 ce qui est une voie intéressante pour l'obtention de sources cohérentes de rayons X.

(iii) Il est possible d'étudier quantitativement le doublage, et plus généralement la multiplication de fréquence, pour un *faisceau gaussien* en utilisant les formules du complément 6D.6. Dans cette situation, il ne faut pas oublier que, non seulement l'amplitude du champ varie avec la variable transverse, mais la phase du champ varie aussi avec z (formule (6E.4) du complément 6D.6). Ainsi sur des distances petites devant la longueur de Rayleigh  $z_R$
faut-il multiplier l'expression (6B.13) du champ incident par  $\exp -i(z/z_R)$ . Un facteur de phase *identique* existe pour l'harmonique d'ordre p (puisque cette onde a même longueur de Rayleigh, ayant une surface p fois plus petite par suite de la relation

$$E_{p\omega} = (E_{\omega})^p \approx \left(\exp - \left(\frac{r^2}{w_0^2}\right)\right)^2$$

et une longueur d'onde également divisée par p). Il s'ensuit qu'il faut remplacer dans les expressions généralisant (6B.16) et (6B.17),  $n_{\omega} \omega/c$  et  $n_{p\omega} p\omega/c$  respectivement par  $(n_{\omega} \omega/c - 1/z_R)$  et  $(n_{p\omega} p\omega/c - 1/z_R)$ . En particulier l'argument de l'exponentielle de (6B.16.c) devient :

$$p\left(n_{\omega}\frac{\omega}{c}-\frac{1}{z_{R}}\right)\ell - \left(n_{p\omega}\frac{p\omega}{c}-\frac{1}{z_{R}}\right)\ell = \left(\frac{p\omega}{c}(n_{\omega}-n_{p\omega})-\frac{p-1}{z_{R}}\right)\ell$$

Dans le cas de faisceaux gaussiens et pour  $\ell < z_R$ , nous déduisons de l'expression précédente que la condition d'accord de phase<sup>11</sup> prend la forme

$$n_{\omega} = n_{p\Omega} + \frac{p-1}{2p\pi} \frac{\lambda}{z_R} \tag{6B.19}$$

où  $\lambda$  est la longueur dans le vide de l'onde incidente. Cette petite correction d'ordre  $\lambda/z_R$  est surtout significative pour la génération d'harmoniques dans les gaz<sup>12</sup> où les indices varient peu et restent voisins de 1.

#### 6B.2.2 Rectification optique

Le même dispositif expérimental que dans le paragraphe précédent (figure 6B.1) est le siège d'un deuxième phénomène non-linéaire : la rectification optique. En effet le dipôle induit dans le milieu par l'onde incidente (voir (6B.10)) comporte aussi une composante à fréquence nulle. Il apparaît ainsi un dipôle permanent dans le milieu, et donc des charges électriques sur les faces du cristal perpendiculaires à la direction de polarisation de l'onde incidente. La différence de potentiel correspondante peut être mesurée.

Donnons un ordre de grandeur de l'effet : en supposant pour simplifier un éclairement uniforme de toute la section droite du cristal par la faisceau incident, la tension V entre les deux faces du cristal distantes de  $\ell'$  est égale à la circulation du champ électrostatique induit<sup>13</sup> égal à  $P_{NL}(0)/\varepsilon_0$ , soit :

$$V = \frac{\chi^{(2)} \boldsymbol{\mathcal{E}}_{\omega}^2}{2} \boldsymbol{\ell}' \tag{6B.20}$$

Pour un cristal non-linéaire typique de section carrée de côté 1 mm, cette tension est de l'ordre du mV pour un faisceau incident de l'ordre du kW.

<sup>&</sup>lt;sup>11</sup>Pour plus de détails sur la génération d'harmoniques avec des faisceaux focalisés, voir par exemple R.W. Boyd, Nonlinear Optics §2.8, Academic Press.

<sup>&</sup>lt;sup>12</sup>La méthode habituelle pour réaliser la condition d'accord de phase dans des gaz est de réaliser un mélange de gaz de sorte que les indices de l'onde fondamentale et de l'onde harmonique soient aussi voisins que possible.

<sup>&</sup>lt;sup>13</sup>Voir par exemple R.P. Feynman, R.B. Leighton et M. Sands, The Feynman Lectures on Physics Vol. II, chapitre 10.

#### 6B.2.3 Mélange paramétrique à trois ondes

Considérons maintenant un cristal éclairé par deux faisceaux lumineux colinéaires monochromatiques, de fréquence  $\omega_1$  et  $\omega_2$ :

$$E(z,t) = \operatorname{Re} \left\{ \mathcal{E}_1(z) \exp\left[i\left(n_1\frac{\omega_1}{c}z - \omega_1 t\right)\right] + \mathcal{E}_2(z) \left[\exp i\left(n_2\frac{\omega_2}{c}z - \omega_2 t\right)\right] \right\}$$
(6B.21)

où  $n_1$  et  $n_2$  sont les indices linéaires du milieu aux fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  (nous prendrons par exemple  $\omega_1 > \omega_2$ ). Dans le cadre du modèle<sup>14</sup> de la partie 6B.1, le dipôle induit, proportionnel au carré de E(t), aura des composantes de Fourier non nulles pour plusieurs fréquences  $\omega$ :

- $\omega = 2\omega_1$  ou  $2\omega_2$  : c'est le doublage de fréquence étudié dans le paragraphe 6B.2.1.
- $\omega = 0$ : c'est la rectification optique étudiée dans le paragraphe 6B.2.2.
- $\omega = \omega_1 + \omega_2$ : c'est le phénomène d'*addition de fréquence*, qui généralise à des fréquences différentes le doublage de fréquence déjà étudié. La physique est donc très similaire et les résultats précédents peuvent être généralisés sans difficulté.
- $\omega = \omega_1 \omega_2$ : on a alors un phénomène de *mélange paramétrique* entre les deux ondes incidentes, que nous considérons maintenant en détail.

Plaçons-nous dans le cas où l'onde  $E_1$  qui a la fréquence la plus grande est intense, de sorte qu'on pourra négliger la variation de son amplitude lors de l'interaction non-linéaire. La composante de Fourier de la polarisation non-linéaire correspondant à la fréquence  $\omega_3 = \Omega_1 - \omega_2$  vaut :

$$P_{NL}^{(\omega_1 - \omega_2)} = \operatorname{Re} \left\{ \frac{\varepsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* \exp i \left[ \frac{(n_1 \omega_1 - n_2 \omega_2)}{c} z - (\omega_1 - \omega_2) t \right] \right\}$$
(6B.22)

Elle va donner naissance à un champ de fréquence  $\omega_3$  dont l'enveloppe lentement variable  $\mathcal{E}_3(z)$  obéit à l'équation :

$$\frac{d}{dz}\mathcal{E}_3(z) = \frac{i\omega_3\chi^{(2)}}{4n_3c}\mathcal{E}_1\mathcal{E}_2^*(z)\exp\left(i\frac{\Delta_{2,3}^1}{c}z\right)$$
(6B.23)

avec  $\Delta_{2,3}^1 = n_1 \omega_1 - n_2 \omega_2 - n_3 \omega_3$  (où  $n_3$  est l'indice du milieu pour l'onde à la fréquence  $\omega_3$ ). Remarquons que dès que  $\mathcal{E}_3(z)$  est non nul, il y a possibilité de mélange paramétrique entre l'onde intense  $E_1$  et  $E_3$ , engendrant un dipôle à la fréquence  $\omega_1 - \omega_3 = \omega_2$  qui va donc servir de terme source pour la variation du champ  $E_2$ , selon l'équation :

$$\frac{d}{dz}\mathcal{E}_2(z) = \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2c}\mathcal{E}_1\mathcal{E}_3^*(z)\exp\left(i\frac{\Delta_{2,3}^1}{c}z\right)$$
(6B.24)

Chacun des deux champs  $E_2$  et  $E_3$ , varie donc d'une manière proportionnelle à l'amplitude de l'autre<sup>15</sup>. Selon le signe des seconds membres de (6B.23) et (6B.24), donc en

<sup>&</sup>lt;sup>14</sup>Les champs  $E_1$  et  $E_2$  sont supposés avoir la même polarisation linéaire et le dipôle induit est alors parallèle à cette polarisation. Rappelons que ce modèle utilisant un champ scalaire ne peut, en toute rigueur, décrire les cristaux paramétriques réels.

<sup>&</sup>lt;sup>15</sup>De même les champs  $E_2$  et  $E_3$ , par phénomène d'addition de fréquence, vont créer un terme source pour la variation du champ  $E_1$ , mais nous négligerons ici cet effet, qui fait intervenir le produit des amplitudes de deux champs supposés peu intenses.

fonction de la phase relative des différents champs présents, cette interaction peut conduire à une amplification de  $E_2$  et  $E_3$ , ou à une atténuation de ces champs (simultanément, le champ  $E_1$  serait atténué dans le premier cas et amplifié dans le second). Les équations (6B.23) et (6B.24) montrent aussi que si  $\Delta_{2,3}^1$  n'est pas nul, le facteur exp  $\left(i\Delta_{2,3}^1 z/c\right)$ contribue à la phase relative des champs d'une manière qui dépend de z. Après propagation dans un milieu de longueur  $\ell$  donnée, l'effet cumulatif sera maximum lorsque  $\Delta_{2,3}^1 = 0$ , cas où il y a interférence constructive parfaite entre les champs rayonnés par les différents points du cristal (comme pour le doublage de fréquence lorsque la condition (6B.18) est vérifiée). Cette condition d'accord de phase est réalisée pour :

$$n_1\omega_1 = n_2\omega_2 + n_3\omega_3 \tag{6B.25}$$

Dans ce cas, les gains en intensité pour les deux ondes faibles sont maximaux. De surcroît, les équations couplées (6B.23) et (6B.24) se résolvent facilement et donnent :

$$\mathcal{E}_2(\ell) = \mathcal{E}_2(0)\cosh(g_p\ell) + i\sqrt{\frac{n_3\omega_2}{n_2\omega_3}}\mathcal{E}_3^*(0)\sinh(g_p\ell)$$
(6B.26a)

$$\mathcal{E}_3(\ell) = \mathcal{E}_3(0)\cosh(g_p\ell) + i\sqrt{\frac{n_2\omega_3}{n_3\omega_2}}\mathcal{E}_3^*(0)\sinh(g_p\ell)$$
(6B.26b)

avec :

$$g_p = \sqrt{\frac{\omega_2 \omega_3}{n_2 n_3}} \frac{|\chi^{(2)} \mathcal{E}_1|}{4c} \tag{6B.27}$$

Dans la configuration où le champ  $E_3$  est initialement nul, on obtient une amplification<sup>16</sup> de l'onde  $E_2$ , appelée onde « signal », égale à  $\cosh(g_p \ell)$ . De plus, une nouvelle onde  $E_3$ , appelée onde « complémentaire »<sup>17</sup>, est engendrée dans le milieu. Un cristal non-linéaire soumis à une onde intense peut donc se comporter comme un amplificateur optique à une autre fréquence. Cet amplificateur, appelé amplificateur paramétrique peut être utilisé, au même titre qu'un amplificateur à inversion de population, pour réaliser un oscillateur optique : on obtient ainsi un « oscillateur paramétrique optique » dont les propriétés sont exposées dans le Complément III.8.

Donnons enfin un ordre de grandeur du gain réalisable dans des conditions réalistes. Le coefficient  $g_p \ell$  dans un cristal non-linéaire typique de 1 cm de long, éclairé par un laser continu de 1W focalisé de manière optimale vaut environ  $10^{-2}$ . Ici aussi l'effet est faible, et il faut utiliser des lasers en impulsion pour atteindre les régions où les effets d'amplification sont facilement observables en un seul passage dans le milieu non-linéaire.

 $<sup>^{16}</sup>$ Il existe en électronique un effet analogue de gain paramétrique entre courants oscillants à des fréquences différentes lorsqu'on utilise des composants électroniques non-linéaires.

<sup>&</sup>lt;sup>17</sup>Ces ondes sont appelées en anglais « signal » et « idler ». La traduction littérale de « idler » est « oisive », terme parfois employé. Nous préférons la dénomination « complémentaire » (ou « compagnon » également utilisé) qui reflète mieux, à notre avis, la physique du processus.

#### 6B.2.4 Interprétation en terme de photons

Nous avons utilisé une description classique pour les différents champs en présence. Cependant, les différents phénomènes peuvent s'interpréter comme des phénomènes d'émission et d'absorption de *photons* par le milieu, avec conservation de l'énergie au cours du processus.



FIG. 6B.4: Description des processus de doublage de fréquence et paramétrique en terme d'échange de photons.

Considérons d'abord le phénomène de doublage de fréquence. Il peut s'interpréter par le diagramme de la figure (6B.4.a) : au cours du processus, il y a *absorption de deux photons de l'onde pompe et émission d'un photon de fréquence double*. De même, l'émission paramétrique correspond au diagramme de la figure (6B.4.b) : il y a *absorption d'un photon de l'onde pompe* et fréquence  $\omega_1$ , *émission stimulée à la fréquence*  $\omega_2$  *et création d'un photon à la fréquence*  $\omega_3$ . On a ainsi une image simple du fait que le phénomène d'amplification à la fréquence  $\omega_2$  s'accompagne de la génération d'une nouvelle onde à la fréquence  $\omega_3$ .

Sachant que pour une onde de fréquence  $\omega_i$ , le module du vecteur d'onde vaut  $n_{\omega_i}\omega_i/c$ , les conditions d'accord de phase (6B.18) et (6B.25) peuvent aussi s'écrire :

$$2\hbar k_{\omega} = \hbar k_{2\omega} \tag{6B.28}$$

pour le doublage de fréquence et

$$\hbar k_1 = \hbar k_2 + \hbar k_3 \tag{6B.29}$$

pour le processus paramétrique. Ces expressions obtenues pour des ondes se propageant dans la même direction Oz peuvent être généralisées au cas où les ondes peuvent se propager dans des directions différentes. On trouverait alors les relations vectorielles suivantes pour la condition d'accord de phase, c'est-à-dire pour obtenir l'efficacité maximale du processus de conversion :

$$2\hbar\mathbf{k}_{\omega} = \hbar\mathbf{k}_{2\omega} \tag{6B.30a}$$

$$\hbar \mathbf{k}_1 = \hbar \mathbf{k}_3 + \hbar \mathbf{k}_3 \tag{6B.30b}$$

Les équations (6B.30) ont la forme de relations de conservation de *l'impulsion* au cours des processus élémentaires. Notons que ces conditions ne doivent pas être obligatoirement remplies pour que le processus ait lieu. Elles donnent simplement les conditions de son efficacité  $maximale^{18}$ .

Notons enfin que la figure 6B.4 suggère l'existence d'un phénomène d'émission paramétrique spontanée, analogue à l'émission spontanée habituelle, dans lequel en présence de l'onde pompe  $E_1$  uniquement, il y a génération à partir du vide (voir chapitre III de paires de photons à toutes les fréquences  $\omega_2$  et  $\omega_3$  telles que  $\omega_1 = \omega_2 + \omega_3$ . Ce phénomène, qui est effectivement observé, ne peut être compris et traité que dans le cadre de la théorie quantique du rayonnement au même titre que l'émission spontanée habituelle.

 $<sup>^{18}</sup>$ Pour l'interprétation de ces processus dans l'approche quantique en termes de diffusion de photons, voir CDG II § (II.D.4). Voir également G. Grynberg et P.R. Berman Phys. Rev. A. **43**, 3994 (1991) où les conditions de validité des images de la figure 6B.4 sont précisées.

# Complément 6C L'oscillateur paramétrique optique : un autre type d'oscillateur optique

Dans le cours Lasers, nous avons vu que les deux ingrédients nécessaires pour construire un oscillateur optique étaient d'une part un *amplificateur optique*, d'autre part *un système de réaction* de la sortie sur l'entrée, constitué par un ensemble de miroirs formant une cavité optique résonnante.

Dans le laser, l'amplification est assurée par le phénomène d'émission stimulée dans un milieu présentant une inversion de population. Mais d'autres phénomènes peuvent jouer le même rôle : tout mécanisme qui, à partir d'une source extérieure d'énergie, permet de créer un dipôle oscillant cohérent en phase avec le champ incident, peut éventuellement conduire à un amplificateur de lumière à cette fréquence. En particulier, il existe en optique non-linéaire un phénomène qui permet d'amplifier une onde lumineuse incidente : c'est le *mélange paramétrique*. On peut donc construire, à partir de l'émission paramétrique et d'une cavité optique résonnante un autre type d'oscillateur optique, baptisé « Oscillateur Paramétrique Optique » ou OPO, qui est utilisé dans de nombreuses applications modernes de l'optique.

# 6C.1 Principe d'un oscillateur paramétrique optique

#### 6C.1.1 Rappels sur l'interaction paramétrique

Nous avons montré qu'un milieu non-linéaire du second ordre (avec coefficient  $\chi^{(2)}$  non-nul) éclairé par une onde de fréquence  $\omega_1$  était susceptible d'amplifier toute onde de fréquence inférieure  $\omega_2$ . Cette amplification est inséparable de la génération dans le milieu d'une troisième onde, l'onde complémentaire, de fréquence  $\omega_3$  telle que :

$$\omega_3 = \omega_1 - \omega_2 \tag{6C.1}$$

Le gain est maximal, toutes choses égales par ailleurs, lorsque la *condition d'accord de phase* entre les trois ondes est vérifiée :

$$n_1\omega_1 = n_2\omega_2 + n_3\omega_3 \tag{6C.2}$$

Nous la supposerons remplie dans la suite de ce complément. Appelons  $\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2, \mathcal{E}_3$  les amplitudes complexes des ondes oscillant à ces trois fréquences. Le champ pompe  $\mathcal{E}_1$  est supposé intense devant les deux autres champs. Nous supposons en outre que l'interaction paramétrique reste perturbative, de sorte que la gain paramétrique  $g_p\ell$  est petit devant 1. Les champs signaux et complémentaires s'écrivent alors, au premier ordre inclus en  $g_p\ell$ :

$$\mathcal{E}_{2}(\ell) = \mathcal{E}_{2}(0) + i\xi_{2}\mathcal{E}_{1}(0)\mathcal{E}_{3}^{*}(0)$$
(6C.3a)

$$\mathcal{E}_{3}(\ell) = \mathcal{E}_{3}(0) + i\xi_{3}\mathcal{E}_{1}(0)\mathcal{E}_{2}^{*}(0)$$
(6C.3b)

avec :

$$\xi_i = \frac{\omega_i \ell}{4n_i c} \chi^{(2)} \quad (i = 2, 3) \tag{6C.4}$$

(Rappelons que nous avons négligé la variation de  $\mathcal{E}_1$  dans la traversée du cristal pour obtenir ces équations). Les champs  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$ , que nous appellerons champs « signaux », jouent dans ces équations des rôles totalement symétriques. Il y a en fait amplification croisée de ces deux champs, chacun servant de termes source pour la variation de l'autre.

#### 6C.1.2 Description de l'Oscillateur Paramétrique Optique

L'OPO est schématisée sur la figure 6C.1 : il est constitué d'un cristal non-linéaire de longueur  $\ell$  dans lequel se produit l'interaction paramétrique, inséré dans une cavité optique de longueur L délimitée par deux miroirs totalement réfléchissants pour les fréquences  $\omega_2$ et  $\omega_3$  et un miroir de sortie  $M_S$  de coefficient de réflexion R peut différent de 1 (c'est-à-dire avec  $T = 1 - R \ll 1$ ). Nous supposerons pour simplifier que cette cavité est en anneau. L'ensemble est pompé par un champ laser intense  $E_1$  à la fréquence  $\omega_1$  (les miroirs sont supposés transmettre parfaitement cette onde, qui atteint donc l'entrée du cristal sans être atténuée). On suppose enfin qu'il n'y a pas de pertes dans le cristal ou à la réflexion sur les miroirs.

Comme dans le cas du laser, une oscillation pourra s'établir dans la cavité si, à chaque tour, le gain paramétrique l'emporte sur les pertes à la réflexion sur le miroir de sortie. On obtient alors, à travers le miroir  $M_S$ , des champs signaux,  $\mathcal{E}_2^{\text{out}}$  et  $\mathcal{E}_3^{\text{out}}$  intenses et cohérents, analogues à ceux d'un laser. Nous allons développer dans le paragraphe suivant la description qualitative que nous venons d'esquisser.

# 6C.2 Fonctionnement de l'OPO en régime stationnaire

Les conditions d'oscillation du système vont être données, comme dans le cas du laser, en écrivant que le champ se retrouve identique à lui-même, en phase et en amplitude, au



FIG. 6C.1 : Schéma d'un oscillateur paramétrique optique.

bout d'un tour de cavité.

#### 6C.2.1 Condition d'oscillation pour la phase

En écrivant que la phase des champs signaux est inchangée, à un multiple de  $2\pi$  près, sur un tour de cavité, on obtient :

$$\frac{\omega_2}{c} \Big[ (n_2 - 1)\ell + L \Big] = 2\pi \, p_2 \tag{6C.5a}$$

$$\frac{\omega_3}{c} \Big[ (n_3 - 1)\ell + L \Big] = 2\pi p_3$$
 (6C.5b)

où  $p_2$  et  $p_3$  sont des entiers, et  $n_2$  et  $n_3$  sont les indices de réfraction du cristal pour les fréquences  $\omega_2$  et  $\omega_3$ . Ces conditions indiquent que la cavité optique doit être *doublement résonnante* pour les deux ondes qui vont se bâtir dans l'OPO. Elles imposent (avec la relation supplémentaire  $\omega_1 = \omega_2 + \omega_3$ ) les fréquences auxquelles il peut y avoir émission paramétrique.

Dans le cas du laser (voir le cours d'Optique Quantique 1) la condition sur la phase déterminait un peigne de fréquences d'oscillation possibles (les modes longitudinaux) pour chaque longueur de la cavité laser. Dans le cas de l'OPO, il faut satisfaire une double condition de résonance, ce qui impose une contrainte sur la longueur L. En tenant compte de 6C.1, les équations 6C.5 conduisent à la relation :

$$\frac{\omega_1}{2\pi c} = \frac{p_2}{(n_2 - 1)\ell + L} + \frac{p_3}{(n_3 - 1)\ell + L}$$
(6C.6)

Pour une fréquence incidente  $\omega_1$  donnée, les valeurs de L pour laquelle l'oscillation se produit sont déterminées par les entiers  $p_2$  et  $p_3$ . Il s'ensuit que l'OPO ne peut osciller de façon stable que pour un *ensemble discret de longueurs de la cavité*, à la différence du laser où l'oscillation était possible pour toute longueur. En fait, un calcul détaillé, tenant compte du couplage entre les deux champs signaux montre que l'oscillation a lieu pour des longueurs pouvant s'écarter légèrement des valeurs obtenues par la formule 6C.6. Néanmoins, cette condition indique que l'OPO est beaucoup plus sensible qu'un laser aux fluctuations de longueur de la cavité (vibrations, dilatation), qui doivent être bien très bien compensées.

Pour un couple d'entiers  $p_2$  et  $p_3$  donnés, et donc, d'après 6C.6, pour une longueur L déterminée, l'OPO émet deux champs signaux dont les fréquences sont déterminées par les équations 6C.5. Lorsque  $p_2$  et  $p_3$  varient, on obtient ainsi un « peigne » serré de fréquences possibles d'oscillation pour l'OPO, qui s'étend de 0 à  $\omega_1$ . À la différence de la plupart des lasers, l'OPO est ainsi une source accordable sur une très grande bande de fréquence. En fait, il faut aussi tenir compte de la relation d'accord de phase, qui permet de déterminer le couple de fréquences  $\omega_2$  et  $\omega_3$  pour lequel le gain paramétrique est maximal. Mais, en changeant la température ou l'angle d'incidence sur le cristal, on peut faire varier les indices  $n_2$  et  $n_3$ , donc la zone de fréquences où la relation d'accord de phase est satisfaite.

#### 6C.2.2 Condition d'oscillation pour l'amplitude

Les amplitudes des champs signaux à l'entrée et à la sortie du cristal doivent être liées par :

$$\mathcal{E}_i(0) = \sqrt{R}\mathcal{E}_i(\ell) \approx \left(1 - \frac{T}{2}\right)\mathcal{E}_i(\ell)$$
 (6C.7)

relation qui, combinée avec les équations 6C.3, conduit au système d'équations suivant pour les champs à l'entrée du cristal (à l'ordre le plus bas par rapport à l'infiniment petit T) :

$$T\mathcal{E}_2(0) = 2i\xi_2\mathcal{E}_1(0)\mathcal{E}_3^*(0)$$
 (6C.8a)

$$T\mathcal{E}_3(0) = 2i\xi_3\mathcal{E}_1(0)\mathcal{E}_2^*(0)$$
 (6C.8b)

Ce système linéaire homogène admet une solution non nulle en  $\mathcal{E}_2(0), \mathcal{E}_3(0)$  lorsque le déterminant est nul, soit :

$$T^2 = 4\xi_2\xi_3|\mathcal{E}_1(0)|^2 \tag{6C.9}$$

Cette relation correspond à l'égalité entre gains et pertes au cours du processus et fixe une valeur pour le champ pompe qui dépend du coefficient de réflexion de la cavité. Elle donne la valeur de la puissance pompe minimale, ou puissance seuil, qui permet à l'émission de l'OPO de s'amorcer. Si on augmente la puissance pompe au-delà de cette valeur seuil, des champs signaux de valeur non nulle sont émis par l'OPO, et il faut alors tenir compte du transfert d'énergie du champ pompe vers les champs signaux, qui provoque une variation de la valeur du champ pompe à l'intérieur du cristal. Remarquons que la relation (6C.9)

est analogue à celle du laser, mais qu'elle fait intervenir le carré de la transmission Tau lieu de T simplement. Cette différence est encore à mettre sur le compte du caractère doublement résonnant de l'OPO.

Donnons un ordre de grandeur du seuil d'oscillation, pour les conditions expérimentales déjà envisagées dans le complément V.3 : cristal de KTP de 1 cm de long pompé par une laser continu de  $0,53\mu m$  focalisé de manière optimale, avec un miroir de couplage de transmission T = 1%. La puissance pompe seuil n'est alors que de 50 mW. Ce bas seuil d'oscillation illustre bien l'intérêt des cavités résonnantes pour augmenter l'efficacité des effets d'optique non-linéaire.

#### 6C.2.3 Intensité des champs sortants

En multipliant la première équation 6C.8 par  $\xi_3 \mathcal{E}_2^*(0)$  et la seconde par  $\xi_2 \mathcal{E}_3^*(0)$ , on trouve :

$$\xi_3 |\mathcal{E}_2(0)|^2 = \xi_2 |\mathcal{E}_3(0)|^2 \tag{6C.10}$$

Cette relation, appelée relation de Manley-Rowe, peut être interprétée simplement. En utilisant (6C.4), on peut la récrire sous la forme :

$$\frac{n_2\left(\frac{1}{2}\varepsilon_0|\mathcal{E}_2(0)|^2c\right)}{\hbar\omega_2} = \frac{n_3\left(\frac{1}{2}\varepsilon_0|\mathcal{E}_3(0)|^2c\right)}{\hbar\omega_3} \tag{6C.11}$$

Elle indique que les flux numériques de photons (flux énergétique divisé par l'énergie d'un photon) dans les deux champs signaux à l'intérieur du cristal sont égaux. La relation (6C.11) corrobore ainsi l'interprétation quantique de l'interaction paramétrique : les photons sont créés par paires ( $\omega_2, \omega_3$ ), et il y en a donc nécessairement toujours *le même* nombre dans chacun des deux modes. Une fois de plus un calcul semi-classique, effectué sans faire appel à la notion de photon, trouve une interprétation simple et naturelle dans le cadre de la théorie quantique du rayonnement.

En conclusion, on trouve pour l'OPO de nombreuses analogies avec le laser : existence d'un seuil d'oscillation, fréquences d'émission déterminées. Les équations sont légèrement plus compliquées, du fait de la présence simultanée de deux champs, aux fréquences  $\omega_2$  et  $\omega_3$ , qui sont recyclés par la cavité optique et combinés par l'interaction non-linéaire.

Comme dans le cas du laser, les équations de fonctionnement (6C.3), écrites à l'ordre le plus bas par rapport au processus non-linéaire, permettent de montrer qu'il existe un seuil d'oscillation. Elles donnent en outre ici une relation entre les intensités des deux champs émis. Par contre, elles ne permettent pas de trouver la valeur de chacun d'eux. Pour déterminer celles-ci, il faut tenir compte du phénomène de saturation du gain lorsque l'intensité des ondes  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$  croît. Dans le cas de l'OPO, le mécanisme de saturation est très simple : l'énergie des champs signaux est nécessairement prise au champ pompe. On ne peut donc plus supposer que l'intensité de ce dernier est constante lors de la traversée du cristal. L'intensité moyenne de la pompe baissant lorsque les champs signaux augmentent, il en est de même pour le gain paramétrique. Plus précisément, la variation du champ pompe  $\mathcal{E}_1$  est liée au fait que les ondes  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$  produisent par addition de fréquence un dipôle à la fréquence  $\omega_2 + \Omega_3 = \omega_1$  qui sert de terme source pour la propagation de  $\mathcal{E}_1$ , selon l'équation :

$$\frac{d}{dz}\mathcal{E}_1(z) = \frac{i\omega_1}{4n_1c}\chi^{(2)}\mathcal{E}_2(z)\mathcal{E}_3(z)$$
(6C.12)

Dans l'OPO, l'équation (6C.12) conduit à une atténuation progressive de l'onde pompe pour des intensités  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$  modérées. Nous ne résoudrons ici pas les équations de propagation couplées pour les trois champs en présence. Donnons seulement le résultat, valable si le gain paramétrique n'est pas trop grand. Pour les champs  $\mathcal{E}_i^{\text{out}}(i = 2, 3)$  transmis à travers le miroir de sortie, on obtient :

$$|\mathcal{E}_i^{\text{out}}|^2 = \frac{n_1}{n_i} \frac{\omega_i}{\omega_1} \mathcal{E}_{1S} \Big( |\mathcal{E}_1(0)| - \mathcal{E}_{1S} \Big) \quad (i = 2, 3)$$
(6C.13)

où  $\mathcal{E}_{1S}$  est l'amplitude du champ pompe au seuil d'oscillations, donnée par l'équation (6C.9). La puissance de sortie varie donc comme la racine carrée de la puissance incidente (et non linéairement, comme dans le cas du laser), et peut atteindre des valeurs appréciables<sup>1</sup>. Dans le cadre de cette théorie simplifiée, on trouve qu'il y a conversion totale de la puissance pompe d'entrée  $\frac{1}{2}\varepsilon_0 n_1 |\mathcal{E}_1|^2 c$  en énergie des champs signaux,  $\frac{1}{2}\varepsilon_0 (n_2 |\mathcal{E}_2|^2 + n_3 |\mathcal{E}_3|^2)c$ , pour une puissance pompe égale à 4 fois la puissance seuil  $(|\mathcal{E}_1| = 2\mathcal{E}_{1S})$ . Expérimentalement, on obtient des rendements de conversion qui peuvent atteindre jusqu'à 80%.

En pratique, la puissance maximale de tels dispositifs pompé par des lasers continus est limitée à des valeurs relativement basses (de l'ordre de 100 mW continus) par des problèmes de dommages dans le cristal non-linéaire causés par les fortes densités de puissance pompe. Lorsqu'on utilise des lasers de pompe en impulsion, on peut atteindre des puissances crête bien supérieures sur les champs signaux.

### 6C.3 Intérêt de l'OPO

L'OPO émet deux faisceaux qui possèdent les mêmes propriétés de cohérence qu'un faisceau laser habituel. Il présente d'autre part l'intérêt d'être facilement accordable dans une gamme étendue, puisque ses fréquences d'émission ne sont pas liées à des niveaux d'énergie bien définis d'un atome ou d'une molécule. Trés étudié dans les années 65-70, il a été supplanté pendant une vingtaine d'années par les lasers à colorants, plus faciles à manipuler, à stabiliser et de puissance maximale plus grande.

Vers la fin des années 80, on a mis au point de nouveaux cristaux non-linéaires, plus efficaces et résistant mieux à des puissances importantes. On a alors assisté à un regain d'intérêt pour ces dispositifs, surtout en fonctionnement impulsionnel, pour lequel

 $<sup>^{1}</sup>$ Un oscillateur analogue à l'OPO et présentant notamment les mêmes caractéristiques au seuil, peut être obtenu avec un milieu présentant une non-linéarité d'ordre 3.

157

les grandes puissances crête des impulsions du laser de pompage permettent un gain paramétrique important. Il existe sur le marché des OPO pompés par des lasers YAG en impulsion, éventuellement doublés ou triplés, qui fournissent des faisceaux dont la fréquence est accordable dans tout le domaine visible et proche infrarouge.

Les OPO présentent un deuxième intérêt, qui n'a été souligné que plus récemment. Il a en effet été montré que le rayonnement produit par génération paramétrique avait des propriétés remarquables en ce qui concerne les fluctuations quantiques. Les OPO sont parmi les dispositifs expérimentaux les plus efficaces pour produire des états « comprimés » du rayonnement.

# Complément 6D Cavité résonnante Fabry-Perot

Les interféromètres de Fabry et Perot ont une longue et riche histoire. Inventés pour réaliser des mesures spectroscopiques de haute précision, ils se sont révélés être l'outil essentiel de la physique des lasers. Un laser n'est souvent, en effet, qu'un milieu amplificateur enfermé dans une cavité résonnante Fabry-Perot. Cette cavité assure d'une part le renvoi de la lumière issue de l'amplificateur sur celui-ci, et elle permet d'autre part de réaliser une sélection de longueur d'onde dans la courbe de gain de l'amplificateur (modes de la cavité). Le rôle des cavités Fabry-Perot ne s'arrête cependant pas là : on peut en insérer à l'intérieur de la cavité laser où elles permettent de filtrer une gamme spectrale déterminée dans la courbe de gain. Dans la cavité de certains lasers accordables, il est fréquent de trouver en série plusieurs filtres de ce type, de largeurs spectrales de plus en plus étroites en longueur d'onde. Enfin, on trouve aussi à l'extérieur du laser des cavités Fabry-Perot qui servent de référence de longueur d'onde pour l'oscillateur laser.

### 6D.1 Position du problème. Cavité linéaire

Considérons deux miroirs plans  $M_1$  et  $M_2$  sans absorption, partiellement réfléchissants (leurs coefficients de réflexion et de transmission en amplitude sont respectivement  $r_1, r_2$ et  $t_1, t_2$ ) parallèles entre eux. L'ensemble de ces deux miroirs constitue, comme nous le verrons, une cavité *résonnante* pour la lumière. Une onde électromagnétique  $\mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t)$  de polarisation  $\vec{\boldsymbol{\varepsilon}}$  se propage suivant la direction Oz perpendiculaire aux miroirs :

$$\mathbf{E}_{i}(\mathbf{r},t) = E_{i}\vec{\boldsymbol{\varepsilon}}\cos(\omega t - kz + \varphi_{i}) = \vec{\boldsymbol{\varepsilon}}\operatorname{Re}\left[\mathcal{E}_{i}e^{i(kz-\omega t)}\right]$$
(6D.1)

 $E_i$  et  $\mathcal{E}_i$  sont respectivement les amplitudes réelle et complexe du champ électrique incident. On notera de la même façon les amplitudes des champs réfléchis  $(E_r)$ , transmis  $(E_t)$ et se propageant entre les deux miroirs  $(E_c \text{ et } E'_c)$ . Ces diverses ondes sont représentées sur la figure 6D.1.

Plutôt que l'amplitude des champs, on utilisera souvent les flux lumineux  $\Pi$  par unité de surface qui sont reliés à la valeur moyenne du vecteur de Poynting. Le flux incident

(6D.3)

par unité de surface est égal à (voir cours Lasers, Éq. II.C.8c) :

$$\Pi_i = \varepsilon_0 c \frac{E_i^2}{2} = \varepsilon_0 c \frac{|\mathcal{E}_i|^2}{2} \tag{6D.2}$$

On se propose de calculer les coefficients de transmission T et de réflexion R de la cavité pour ces flux<sup>1</sup> :



FIG. 6D.1: Les amplitudes des champs électriques (ondes polarisées linéairement)  $E_i, E_r, E_c$  et  $E'_c$  sont considérées en  $M_1$  et  $E_t$  en  $M_2$ .

En choisissant convenablement les origines des phases, on peut écrire les relations entre champs incident et émergent sur le miroir  $M_1$  sous la forme :

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\mathcal{E}}_{c} &= t_{1}\boldsymbol{\mathcal{E}}_{i} - r_{1}\boldsymbol{\mathcal{E}}_{c}^{\prime} \\ \boldsymbol{\mathcal{E}}_{r} &= r_{1}\boldsymbol{\mathcal{E}}_{i} + t_{1}\boldsymbol{\mathcal{E}}_{c}^{\prime} \end{aligned} \tag{6D.4}$$

avec  $r_1$  et  $t_1$  réels et obéissant à la relation :

$$r_1^2 + t_1^2 = R_1 + T_1 = 1. (6D.5)$$

Remarquons que le signe – de la première relation (6D.4) garantit que la matrice de transformation des champs est unitaire, ce qui assure la conservation des flux d'énergie, c'est-à-dire :  $E_c^2 + E_r^2 = E_i^2 + E_c'^2$  (ou encore  $|\mathcal{E}_c|^2 + |\mathcal{E}_r|^2 = |\mathcal{E}_i|^2 + |\mathcal{E}_c'|^2$ ).

De même, les relations entre les champs s'écrivent au niveau du miroir  $M_2$ :

$$\mathcal{E}_t = t_2 \mathcal{E}_c \exp(ikL_0)$$

$$\mathcal{E}'_c = -r_2 \mathcal{E}_c \exp(2ikL_0)$$
(6D.6)

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Pour éviter d'alourdir le texte, nous omettons de préciser par « unité de surface » quand il n'y a pas ambiguité.

avec  $r_2$  et  $t_2$  réels et tels que

$$r_2^2 + t_2^2 = R_2 + T_2 = 1. (6D.7)$$

Ici encore, la conservation des flux est assurée :  $E_t^2 + E_c'^2 = E_c^2$  (ou  $|\mathcal{E}_t|^2 + |\mathcal{E}_c'|^2 = |\mathcal{E}_c|^2$ ).

Remarque

Le signe de  $r_2$  dans la seconde équation (6D.6) n'est pas arbitraire. Ce signe, opposé à celui considéré dans l'équation (6D.4) pour le champ se propageant dans la même direction Oz, est lié au fait que *la face réfléchissante* des miroirs est toujours positionnée vers *l'intérieur* de la cavité.

# 6D.2 Facteur de transmission et de réflexion de la cavité. Résonances

Les équations (6D.4) et (6D.6) donnent immédiatement, en introduisant la longueur de bouclage  $L = 2L_0$ 

$$\frac{\mathcal{E}_t}{\mathcal{E}_i} = \frac{t_1 t_2 \exp(ikL_0)}{1 - r_1 r_2 \exp(ikL)} \tag{6D.8}$$

d'où l'on déduit

$$T = \left|\frac{\mathcal{E}_t}{\mathcal{E}_i}\right|^2 = \frac{T_1 T_2}{1 + R_1 R_2 - 2\sqrt{R_1 R_2} \cos(kL)}$$
(6D.9)

La formule (6D.9) montre que T passe par un maximum chaque fois que  $kL = 2p\pi$  (voir figure 6D.2), c'est-à-dire pour :

$$\omega = \omega_p = p2\pi \frac{c}{L}$$
 avec  $p$  entier. (6D.10)

Le facteur de transmission vaut alors

$$T_{\rm max} = \frac{T_1 T_2}{(1 - \sqrt{R_1 R_2})^2} \tag{6D.11}$$

Si  $R_1 = R_2$ , nous trouvons  $T_{\text{max}} = 1$ , même si  $T_1(=T_2)$  est arbitrairement proche de zéro. La cavité transmet alors la totalité du champ incident. Naturellement, dans la pratique, les imperfections des miroirs limiteront la valeur de  $T_{\text{max}}$ .

Les fréquences  $\omega_p$  définies par l'équation (6D.10) correspondent à des résonances de la cavité. En effet, puisque  $|\mathcal{E}_t|^2 = T_2 |\mathcal{E}_c|^2$ , nous trouvons en utilisant (6D.9) :

$$\left|\frac{\mathcal{E}_c}{\mathcal{E}_i}\right|^2 = \frac{T_1}{1 + R_1 R_2 - 2\sqrt{R_1 R_2} \cos(kL)}$$
(6D.12)



FIG. 6D.2: Transmission de la cavité. Des résonances très marquées apparaissent lorsque le déphasage kL est égal à un nombre entier de fois  $2\pi$  (la courbe ci-dessus est obtenue pour  $R_1 = R_2 = 0, 8$ ).

ce qui montre que pour un champ incident  $E_i$  donné, la puissance circulant dans la cavité est maximale pour  $\omega = \omega_p$  (c'est-à-dire  $kL = 2p\pi$ ). Par exemple, pour une cavité symétrique, l'intensité circulant dans la cavité est alors plus grande que l'intensité incidente par le facteur  $1/T_2$ . Ce facteur peut être très grand si  $T_2$  est petit.

Notons enfin que le coefficient de réflexion de la cavité peut être calculée<sup>2</sup> à partir de la relation (6D.9):

$$R = \left| \frac{\mathcal{E}_r}{\mathcal{E}_i} \right|^2 = 1 - T \tag{6D.13}$$

Il passe par un minimum à résonance. En particulier, dans le cas d'une cavité symétrique  $(R_1 = R_2)$ , nous trouvons R = 0: le coefficient de réflexion passe par 0 pour les fréquences de résonance.

#### Remarques

(i) Pour trouver la relation (6D.9) on peut, au lieu de simplement écrire les relations de passage globales (6D.4) et (6D.6) sur les deux miroirs, écrire les séries relatives aux ondes transmises et réfléchies, ce qui met l'accent sur le fait qu'il s'agit d'un phénomène d'interférence à ondes multiples. Le traitement présenté ici est plus simple et tout aussi rigoureux.

(ii) De nombreuses expériences de spectroscopie ou d'optique non-linéaire comme les transitions à deux photons ou le doublage de fréquence (Complément V.3) sont réalisés, avec des lasers continus de puissance modérée, à l'intérieur d'une cavité Fabry-Perot parce que l'intensité lumineuse peut y être bien plus grande que l'intensité incidente. Selon les applications, il pourra être plus habile d'utiliser une cavité en anneau (pour n'avoir qu'une onde

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>On peut aussi l'obtenir directement à partir des équations (6D.4) et (6D.6).

progressive) ou une cavité linéaire.

(iii) Dans ce complément, on suppose implicitement que l'espace entre les deux miroirs est vide de sorte qu'il y a coïncidence entre longueur optique et longueur géométrique pour la propagation de la lumière entre les deux miroirs. En fait, les résultats ne dépendent que du déphasage kL. Si la cavité est remplie avec un milieu d'indice n, le déphasage dû à la propagation est égal à  $(n\omega/c)L_0$  (où  $L_0$  est la longueur géométrique de la cavité). On pourra écrire ce déphasage sous la forme  $(\omega/c)(nL_0)$  où l'on a fait apparaître la longueur optique  $nL_0$ séparant les deux miroirs. De manière générale, les résultats de ce complément peuvent être généralisés en considérant L comme la longueur optique de bouclage et en posant  $k = \omega/c$ .

### 6D.3 Cavité en anneau à un seul miroir de couplage

La plupart des résultats démontrés pour une cavité linéaire peuvent être étendus au cas d'une cavité en anneau. Considérons l'anneau représenté sur la figure 6D.3. Il consiste en un miroir M partiellement transparent (coefficient  $r_1, t_1$ ) et deux miroirs totalement réfléchissants.



FIG. 6D.3: Cavité de Fabry-Perot en anneau. Les champs  $E_i, E_r, E_c$  et  $E'_c$  sont évalués sur le miroir M partiellement transparent. La longueur de l'anneau est L.

Les relations entre le champ incident  $E_i$ , le champ réfléchi  $E_r$  et le champ dans la cavité  $E_c$  sont analogues aux équations (6D.4) :

$$\mathcal{E}_c = t_1 \mathcal{E}_i + r_1 \mathcal{E}'_c \tag{6D.14a}$$

$$\mathcal{E}_r = -r_1 \mathcal{E}_i + t_1 \mathcal{E}_c' \tag{6D.14b}$$

$$\mathcal{E}'_c = \mathcal{E}_c \exp(ikL) \tag{6D.14c}$$

où L est la longueur de l'anneau. En combinant la première et la dernière des équations (6D.14), nous trouvons :

$$\mathcal{E}_c = \frac{t_1 \mathcal{E}_i}{1 - r_1 \exp(ikL)} \tag{6D.15}$$

soit :

$$\left. \frac{\mathcal{E}_c}{\mathcal{E}_i} \right|^2 = \frac{T_1}{1 + R_1 - 2\sqrt{R_1}\cos(kL)} \tag{6D.16}$$

L'équation (6D.16) coïncide avec l'équation (6D.12) lorsque l'on pose  $R_2 = 1$ . La valeur de l'intensité à l'intérieur de la cavité en anneau à un seul miroir de couplage est donc *identique* à celle obtenue dans une cavité *linéaire* pour lequel un des miroirs a un coefficient de réflexion égal à 100%. Les résultats établis pour les cavités linéaires peuvent donc être facilement adaptés aux cavités en anneau en faisant  $R_2 = 1$ . En particulier, les phénomènes de résonance sont identiques et se produisent pour les mêmes valeurs de la pulsation, données par l'équation (6D.10).

En ce qui concerne le champ réfléchi, nous trouvons en combinant les équations (6D.14.b) et (6D.14.c) avec (6D.15):

$$\frac{\mathcal{E}_r}{\mathcal{E}_i} = \frac{1 - r_1 \exp(-ikL)}{1 - r_1 \exp(ikL)} \exp(ikL) \tag{6D.17}$$

ce qui implique que le coefficient de réflexion  $|\mathcal{E}_r|^2/|\mathcal{E}_i|^2$  est égal à 1 quelque soit la longueur de la cavité. Dans la cavité en anneau de la figure 6D.2, toute l'intensité incidente se retrouve nécessairement (en l'absence de pertes dans la cavité) dans le faisceau réfléchi. Ceci ne veut pas dire pour autant que les résonances de la cavité ne se manifestent pas sur le champ réfléchi mais les résonances apparaissent uniquement sur sa phase.

## 6D.4 Finesse. Facteur de qualité

Il est intéressant (et traditionnel) de transformer le dénominateur résonnant D des formules (6D.9) et (6D.12), de la façon suivante :

$$D = 1 + R_1 R_2 - 2\sqrt{R_1 R_2} \cos(kL) = 1 + R_1 R_2 - 2\sqrt{R_1 R_2} + 4\sqrt{R_1 R_2} \sin^2\left(k\frac{L}{2}\right)$$
$$= (1 - \sqrt{R_1 R_2})^2 \left(1 + m \sin^2\left(k\frac{L}{2}\right)\right)$$
(6D.18)

où nous avons introduit le paramètre m

$$m = \frac{4\sqrt{R_1R_2}}{(1 - \sqrt{R_1R_2})^2} \tag{6D.19}$$

La valeur maximale de 1/D est d'autant plus grande que  $R_1R_2$  est plus proche de 1. Par ailleurs, 1/D varie avec le déphasage kL et est maximum lorsque la condition de résonance (6D.10) est vérifiée. La largeur de la résonance peut être caractérisée en cherchant les

164

valeurs de kL telles que 1/D soit égal à la moitié de sa valeur maximum : on trouve ainsi pour  $m\gg 1$ 

$$k\frac{L}{2} \approx p\pi \pm \frac{1}{\sqrt{m}}$$

On définit la « *finesse* »  $\mathcal{F}$  comme le rapport entre l'intervalle de fréquence entre deux pics et la largeur des résonances :

$$\mathcal{F} = \pi \frac{\sqrt{m}}{2} = \pi \frac{(R_1 R_2)^{1/4}}{1 - \sqrt{R_1 R_2}}$$
(6D.20)

Si on balaie la fréquence de l'onde incidente, les pics de résonance ont une largeur

$$\frac{\Delta\omega_{\rm cav}}{2\pi} = \frac{1}{\mathcal{F}}\frac{c}{L} \tag{6D.21}$$

Il est clair que le système présente des résonances d'autant plus fines que  $\mathcal{F}$  est plus grand.

Une façon habituelle de caractériser un système résonnant en électricité ou en mécanique est d'étudier la façon dont il s'amortit lorsque l'excitation cesse. L'énergie stockée dans une cavité linéaire de surface transverse S est :

$$W = \frac{L_0}{c} (\Pi_c + \Pi'_c) S$$
 (6D.22)

où  $\Pi_c$  et  $\Pi'_c$  sont les flux circulants dans la cavité linéaire respectivement dans la direction des z croissants et décroissants (voir figure 6D.1). La puissance perdue aux extrémités est

$$-\frac{d}{dt}W = (T_2\Pi_c + T_1\Pi'_c)S \tag{6D.23a}$$

En tenant compte de  $\Pi'_c = R_2 \Pi_c$  on obtient

$$-\frac{d}{dt}W = \frac{T_2 + T_1R_2}{1 + R_2}\frac{c}{L_0}W$$
(6D.23b)

Pour un système résonnant de fréquence propre  $\omega$ , on définit le facteur de qualité Q par

$$\frac{dW}{dt} = -\frac{\omega}{Q}W \tag{6D.24}$$

En comparant les équations (6D.23.b) et (6D.24), et en utilisant  $\omega = 2\pi c/\lambda$ , nous trouvons :

$$Q = \pi \frac{1 + R_2}{T_2 + T_1 R_2} \frac{L}{\lambda}$$
(6D.25)

À cause du facteur  $L/\lambda$  qui dépasse couramment  $10^5$  pour des longueurs d'onde optiques et pour  $R_1$  et  $R_2$  proche de 1, le champ intracavité effectue de nombreuses oscillations avant de s'amortir.

## 6D.5 Exemple. Cavité de grande finesse

Il est intéressant de considérer le cas où les miroirs ont des coefficients de réflexion élevés. Des développements limités en  $T_1$  et  $T_2$  sont alors possibles. Ils conduisent à :

$$\mathcal{F} \approx \frac{2\pi}{T_1 + T_2} \tag{6D.26a}$$

$$Q = \mathcal{F}\frac{L}{\lambda} \tag{6D.26b}$$

On sait couramment faire des miroirs sans absorption de coefficient de transmission de l'ordre de 1%, ce qui donne des finesses supérieures à 100. Il est possible d'atteindre des valeurs supérieures à  $10^5$  avec des couches diélectriques de très haute qualité.

Dans cette limite ( $R_1$  et  $R_2$  voisins de 1), l'équation (6D.12) donnant l'intensité du champ dans la cavité s'écrit en utilisant (6D.18), (6D.19) et (6D.20)

$$\left|\frac{\mathcal{E}_c}{\mathcal{E}_i}\right|^2 = \frac{4T_1}{(T_1 + T_2)^2 \left(1 + \frac{4\mathcal{F}^2}{\pi^2} \sin^2\left(\frac{kL}{2}\right)\right)}$$
(6D.27)

Donnons pour conclure quelques chiffres, relatifs à une cavité linéaire de longueur  $L_0 = 5$  cm, et de finesse  $\mathcal{F} = 300$  (obtenue pour  $T_1 = T_2 \approx 1\%$ ):

- l'intervalle spectral libre (écart entre deux modes successifs) vaut c/L = 3 GHz
- la largeur d'une résonance vaut  $\Delta \omega_{\rm cav}/2\pi = 10$  MHz
- dans le visible ( $\lambda = 0, 5\mu$ m), le facteur de qualité vaut  $Q = 6 \times 10^7$ .

Une telle cavité peut être utilisée comme un spectromètre de très haute résolution : si on modifie sa longueur  $L_0$  les fréquences susceptibles d'être transmises changent. En modifiant  $L_0$ de  $\lambda/2$ , on balaie un intervalle spectral de 3 GHz : compte-tenu de la petite valeur de  $\Delta\omega_{cav}$ , on peut ainsi analyser la structure de la raie émise par un laser Hélium-Néon (3 modes séparés de 500 MHz).

#### Remarques

(i) Les pertes par transmission ne sont pas les seules pertes d'une cavité Fabry-Perot. Il faut aussi tenir compte des pertes des miroirs et éventuellement des pertes dues à l'absorption ou à la diffusion lorsque un milieu matériel est placé à l'intérieur de la cavité. Considérons la cavité linéaire de la Figure 6D.1 et supposons que les pertes en intensité pour une propagation d'un miroir à l'autre soient égales à  $A_1$  de sorte que les équations (6D.6) deviennent :

$$\mathcal{E}_t = t_2 \mathcal{E}_c \sqrt{1 - A_1} \exp(ikL_0) \tag{6D.28a}$$

$$\mathcal{E}'_c = -r_2 \mathcal{E}_c (1 - A_1) \exp(2ikL_0) \tag{6D.28b}$$

alors que les équations (6D.4) restent inchangées. Les développements précédents peuvent être facilement adaptés pour inclure ce terme supplémentaire. On trouve par exemple que dans la limite  $T_1, T_2, A_1 \ll 1$ , les coefficients de transmission et de réflexion à résonance et la finesse sont respectivement égaux à :

$$T_{\max} = \frac{4T_1T_2}{(A+T_1+T_2)^2}$$
(6D.29a)

$$R_{\rm res} = \frac{(A - T_1 + T_2)^2}{(A + T_1 + T_2)^2}$$
(6D.29b)

$$\mathcal{F} = \frac{2\pi}{A + T_1 + T_1} \tag{6D.29c}$$

où  $A = 2A_1$  correspond aux pertes sur un aller-retour.

(ii) Le cas d'un laser (milieu amplificateur) correspond à A < 0. Il est alors possible d'obtenir  $T_{\max} = \infty$  ce qui signifie qu'une onde peut être émise par le laser en absence d'onde incidente.

# 6D.6 Cavité laser linéaire

L'analyse précédente peut être appliquée à une cavité laser linéaire, en faisant  $T_2 = 0$   $(R_2 = 1)$ , ce qui correspondrait à un faisceau laser émis dans la direction des z décroissants sur la figure 6D.1. Dans ce cas, la transmission est bien sûr nulle pour la cavité (T = 0), mais on peut vérifier que les formules (6D.12) et suivantes restent valables. En particulier, la résonance pour la puissance circulant dans la cavité subsiste. La finesse vaut (cas où  $T_1 \ll 1$ , et  $T_2 = 0$ ) :

$$\mathcal{F} = \frac{2\pi}{T_1} \tag{6D.30}$$

Les flux circulant dans la cavité  $\Pi_c$  et  $\Pi'_c$  et le flux incident  $\Pi_i$  sont reliés par

$$\Pi_c = \Pi'_c \tag{6D.31a}$$

$$\frac{\Pi_c}{\Pi_i} = \frac{2\mathcal{F}}{\pi \left(1 + \frac{4\mathcal{F}^2}{\pi^2}\sin^2\left(\frac{kL}{2}\right)\right)} \tag{6D.31b}$$

L'énergie stockée dans la cavité est, d'après les équations (6D.22) et (6D.31.a), égale à :

$$W = \frac{L}{c} \Pi_c S \tag{6D.32}$$

soit en utilisant les équations (6D.21) et (6D.31.b):

$$W = \frac{4\Pi_i}{\Delta\omega_{\text{cav}} \left(1 + \frac{4\mathcal{F}^2}{\pi^2} \sin^2\left(\frac{kL}{2}\right)\right)} \tag{6D.33}$$

ce qui montre qu'à résonance, l'énergie dans la cavité est d'autant plus grande que la largeur est étroite, à flux incident constant.

#### Remarques

(i) Dans le cas d'un laser, la situation est différente dans la mesure où il n'y a pas de faisceau incident ( $\Pi_i = 0$ ), mais il y a cependant de l'énergie dans la cavité ( $\Pi_c \neq 0$ ) à cause de la présence du milieu amplificateur. Pour cette situation, l'équation (6D.32) reste valable et le flux lumineux  $\Pi_s$  émis par le laser est égal à

$$\Pi_s = T_1 \Pi_c \tag{6D.34}$$

soit en utilisant les équations (6D.21), (6D.30) et (6D.32):

$$W = \frac{\Pi_s}{\Delta\omega_{\rm cav}} S \tag{6D.35}$$

formule qui permet de relier la puissance de sortie à l'énergie dans la cavité.

(ii) Les résultats démontrés dans ce paragraphe 6D.6, sont immédiatement applicables au cas d'une cavité en anneau à cause de la similitude entre une cavité linéaire dont le miroir  $M_2$  a un coefficient de réflexion égal à 1 et une cavité en anneau (voir paragraphe 6D.3).

# Complément 6E Faisceaux gaussiens Modes transverses d'un laser

La description élémentaire du fonctionnement d'un laser, présentée dans la partie A du chapitre III du cours Lasers, repose sur l'hypothèse implicite que l'onde lumineuse circulant dans la cavité laser est une onde plane homogène, illimitée dans la direction perpendiculaire à sa direction de propagation. Cette hypothèse est manifestement irréaliste : les divers composants d'un laser (miroirs, milieu amplificateur) ont des dimensions transverses limitées, souvent petites (de l'ordre du centimètre). Si l'onde laser était réellement plane et uniforme, la diffraction au niveau de l'un de ces composants suffirait à provoquer une divergence de l'onde l'empêchant de revenir identique à elle-même au bout d'un tour de cavité. On conçoit qu'il puisse être possible de compenser cette divergence, qui provoque des pertes, en utilisant des miroirs convergents, mais le traitement théorique par ondes planes est alors inadapté.

Une description plus correcte du champ dans la cavité consiste à partir d'une distribution transversale non uniforme pour l'onde et à se poser le problème de la stabilité d'une telle distribution lorsque le faisceau s'est propagé sur un tour de cavité. La description de cette propagation doit naturellement prendre en compte les phénomènes de diffraction, ainsi que la réflexion sur les miroirs. Une telle structure stable, si elle existe, s'appelle un mode transverse de la cavité.

La recherche des modes transverses d'une cavité est un problème en général très compliqué. Heureusement, pour les cavités habituellement utilisées dans les lasers (et plus particulièrement dans le cas d'une cavité linéaire formée de deux miroirs concaves) il existe une classe de solutions simples, les *modes transverses gaussiens*, qui sont une excellente approximation pour la plupart des lasers continus.

## 6E.1 Faisceau gaussien

Considérons le champ électrique suivant (dont on montrera dans le paragraphe 6E.3 qu'il est une solution approchée de l'équation de propagation dans le vide) correspondant à une onde de pulsation  $\omega$  se propageant dans la direction Oz:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \vec{\boldsymbol{\varepsilon}} E(\mathbf{r},t) \tag{6E.1a}$$

avec

$$E(\mathbf{r},t) = \operatorname{Re} \left\{ E_0 \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{w^2}\right) \exp\left(ik\frac{x^2 + y^2}{2R}\right) \exp\left[i(kz - \omega t - \varphi)\right] \right\}$$
(6E.1b)

Dans l'équation (6E.1.b), l'amplitude du champ  $E_0$ , la taille du faisceau w, le rayon de courbure R et la phase du champ  $\varphi$  sont des fonctions réelles de z. Le vecteur unitaire  $\vec{\varepsilon}$ , perpendiculaire à Oz, est la polarisation de l'onde. L'amplitude du champ a une symétrie cylindrique autour de Oz et son extension transverse est de l'ordre de w. Il est facile de montrer que la seconde exponentielle de la formule (6E.1.b) décrit une variation transverse de phase caractéristique, pour les petites valeurs de x et y, d'une onde sphérique de rayon de courbure R. Pour une propagation vers les z positifs, l'onde est divergente si R est positif comme on peut le constater en considérant les surfaces où la phase est constante. Elle est convergente dans le cas contraire (R < 0).

En prenant pour origine de l'axe Oz le point où la taille du faisceau est minimum (ce point de focalisation, ou d'étranglement, est appelé col du faisceau ou « waist » en anglais), on trouve (cela sera démontré au paragraphe 6E.3) :

$$w(z) = w_0 \sqrt{\frac{z^2}{z_R^2}}$$
 (6E.2a)

$$E_0(z) = E_0(0) \frac{w_0}{w(z)}$$
 (6E.2b)

$$R(z) = z + \frac{z_R^2}{z}$$
 (6E.3)

$$\varphi = \tan^{-1} \left( \frac{z}{z_R} \right) \tag{6E.4}$$

Le rayon au col  $w_0$  caractérise la dimension transversale<sup>1</sup> du faisceau dans le plan  $z \approx 0$ . La longueur de Rayleigh  $z_R$ , égale à

$$z_R = \pi \frac{w_0^2}{\lambda} \tag{6E.5}$$

caractérise l'échelle longitudinale de la variation de la section. En effet, la dimension transversale du faisceau est multipliée par  $\sqrt{2}$  entre z = 0 et  $z = z_R$  (formule (6E.2.a)).

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>On emploie parfois aussi la dénomination « rayon à  $1/e^2$  » ce qui fait référence à l'intensité.

Pour des distances z à l'origine petites devant  $z_R$ , le faisceau lumineux a une section pratiquement constante comme le montre la formule (6E.2.a). Comme par ailleurs, le rayon de courbure (formule (6E.3)) est pratiquement infini dans cette zone, on peut considérer que l'on a un faisceau cylindrique de rayons lumineux parallèles à l'axe Oz dans un domaine de longueur  $z_R$  de part et d'autre du sol.

Conformément aux lois de la diffraction, le domaine où le faisceau est pratiquement cylindrique est d'autant plus petit que le rayon au col du faisceau à l'origine est petit puisque  $z_R$  est proportionnel à  $w_0^2$  (formule (6E.5)). Ainsi pour  $\lambda = 0,633 \,\mu\text{m}$ , on a  $z_R = 5 \,\text{m}$  pour  $w_0 = 1 \,\text{mm}$  mais seulement  $z_R = 0,5 \,\text{mm}$  pour  $w_0 = 0,01 \,\text{mm}$ .

A des distances du col grandes devant  $z_R$ , nous trouvons

$$w(z) \approx \frac{\lambda}{\pi w_0} z$$
 (6E.6a)

$$R(z) \approx z$$
 (6E.6b)

On a alors un faisceau divergent à partir du point x = y = z = 0 (voir figure 6E.1.b) limité par un cône de demi-angle au sommet  $\lambda/\pi w_0$  (qui vaut respectivement  $2 \times 10^{-4}$ et  $2 \times 10^{-2}$  dans les exemples ci-dessus). Cette *divergence*, qui résulte simplement de la diffraction, est d'autant plus grande que la taille est petite. C'est pourquoi la taille des faisceaux doit être augmentée pour diminuer leur divergence dans certaines applications. La figure 6E.1 donne une représentation schématique d'un faisceau gaussien.

La formule (6E.4) montre que le champ subit une variation de phase de  $-\pi/2$  à  $\pi/2$ lorsque z varie entre  $-\infty$  et  $+\infty$ . Ce déphasage, appelé déphasage de Gouy, apparaît de part et d'autre de la région focale pour un faisceau focalisé (cet effet, connu en optique classique, est parfois appelé variation de  $\pi$  au passage par un « foyer »).

Il est possible de relier  $E_0$  à la puissance  $\Phi$  transportée dans l'onde et à la section du faisceau w puisque cette puissance est égale au flux du vecteur de Poynting à travers n'importe quel plan d'abscisse s. De la relation

$$\frac{\varepsilon_0 c}{2} \iint dx dy |E(x, y, z, t)^2| = \Phi$$
(6E.7)

on déduit

$$E_0(z) = \frac{1}{w(z)} \sqrt{\frac{4\Phi}{\varepsilon_0 \pi c}}$$
(6E.8)

qui montre que  $E_0$  et w sont bien reliés par l'équation (6E.2.b).

# 6E.2 Mode gaussien fondamental d'une cavité stable

Considérons une cavité résonnante linéaire, formée d'un miroir plan  $M_1$  et d'un miroir concave  $M_2$  de rayon de courbure  $R_2$  distants de  $L_0$  (fig. 6E.2).



FIG. 6E.1: (a) Variation de l'intensité d'un faisceau gaussien dans la direction de propagation z et dans une direction transverse x. (b) Évolution d'un faisceau gaussien. On a représenté schématiquement le profil. Autour du col, l'onde est proche d'un faisceau cylindrique. Au-delà de la zone de Rayleigh, le profil est divergent avec des surfaces d'onde sphériques centrées sur le col.



FIG. 6E.2: Cavité stable composée d'un miroir de rayon de courbure  $R_2$  et d'un miroir plan. Mode gaussien fondamental dans cette cavité.

S'il existe un faisceau gaussien dont les surfaces d'onde coïncident exactement avec chaque miroir, ce faisceau est un mode stable de la cavité. Un tel faisceau aura donc son col sur le miroir plan et il sera tel que

$$R(L_0) = R_2 \tag{6E.9}$$

d'où l'on déduit à l'aide de (6E.3) :

$$z_R = \sqrt{(R_2 - L_0)L_0} \tag{6E.10}$$

L'équation (6E.10) n'a de solution que si

$$R_2 \ge L_0 \tag{6E.11}$$

La relation (6E.11) est la condition de stabilité de la cavité représentée sur la figure 6E.2. Si elle est vérifiée, il existe un mode gaussien dont les rayons de courbure sont adaptés aux deux miroirs de la cavité. Notons en outre que la relation (6E.10) jointe à l'équation (6E.5) permet de déterminer la taille  $w_0$  du faisceau en fonction de  $R_2$  et de  $L_0$ .

Le raisonnement ci-dessus se généraliser directement à toute cavité linéaire de longueur  $L_0$  fermée par deux miroirs concaves de rayons de courbure  $R_1$  et  $R_2$ . La condition de stabilité s'écrit alors

$$0 \le \left(1 - \frac{L_0}{R_1}\right) \left(1 - \frac{L_0}{R_2}\right) \le 1$$
(6E.12)

Le paramètre  $z_R$  (ou  $w_0$ ) caractérisant le mode s'obtient de façon univoque en imposant aux surfaces d'onde de coïncider exactement avec les miroirs.

## 6E.3 Modes gaussiens

La solution donnée par les équations (6E.1) et (6E.2) est une solution particulière des équations de Maxwell pour le champ électromagnétique entre les deux miroirs de la cavité. Nous nous proposons maintenant de trouver un ensemble de solutions respectant les mêmes conditions aux limites. L'équation de propagation du champ électrique dans le vide se déduit des équations de Maxwell :

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0 \tag{6E.13}$$

Nous nous plaçons dans l'approximation paraxiale, c'est-à-dire que nous supposons que l'onde électromagnétique se propage approximativement suivant Oz (les normales aux surfaces d'onde forment un angle petit avec Oz) et son amplitude n'est notable qu'au voisinage de l'axe Oz (à des distances petites comparées au rayon de courbure de la surface d'onde mais grandes par rapport à la longueur d'onde). La condition de transversalité du champ électrique permet alors de négliger<sup>2</sup> la composante de  $\mathbf{E}$  le long de Oz. L'équation (6E.13) se décompose alors en deux équations de propagation indépendantes pour chaque polarisation linéaire  $\mathbf{e}_X$  et  $\mathbf{e}_Y$  et on peut chercher des solutions de la forme

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = E(\mathbf{r},t)\vec{\boldsymbol{\varepsilon}} = \operatorname{Re}\left[u(x,y,z)\exp\,i\frac{k(x^2+y^2)}{2R(z)}\exp\,i(kz-\omega t-\varphi(z))\right]\vec{\boldsymbol{\varepsilon}} \quad (6\mathrm{E}.14)$$

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Cette composante  $E_z$  n'est pas en toute rigueur nulle. En effet, l'équation de Maxwell  $\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$ entraîne  $\partial E_z/\partial z = -\partial E_x/\partial x$  pour un champ dont la composante sur Oy est nulle. Pour un champ de la forme (6E.1.b),  $E_z$  est environ  $\lambda/w_0$  fois plus petit que  $E_x$ .

où  $\vec{\epsilon}$  est la polarisation dans le plan xOy. Pour toute polarisation  $\vec{\epsilon}$ , on se ramène ainsi à la même équation *scalaire* pour E. L'expression (6E.14) prend en compte la variation rapide de la phase due à la propagation le long de l'axe Oz, et le fait que les surfaces d'onde sont tangentes à des sphères centrées sur l'axe Oz (à cause de la symétrie du problème). Les facteurs de phase dépendant de x et y d'une part et de z d'autre part étant intégrés dans les deux exponentielles de (6E.14), la fonction u est réelle. Comme nous le montrons ci-dessous, les lois de variations de R(z) et  $\varphi(z)$  sont données par les équations (6E.3) et (6E.21) et les fonctions u(x, y, z) sont de la forme :

$$u_{nm}(x,y,z) = \frac{C}{w(z)} \exp\left\{-\frac{[x^2+y^2]}{[w(z)]^2}\right\} H_n\left(\frac{x\sqrt{2}}{w(z)}\right) H_m\left(\frac{y\sqrt{2}}{w(z)}\right)$$
(6E.15)

Dans cette expression w(z) est donnée par l'équation (6E.2.a), C est une constante de normalisation,  $H_n$  et  $H_m$  sont les *polynômes d'Hermite* de degrés n et m respectivement (n et m sont des entiers positifs ou nuls).

Pour obtenir la solution (6E.15), nous utilisons l'analogie mathématique avec le problème de l'oscillateur harmonique en Mécanique Quantique. Portons l'expression de **E** donnée en (6E.14) dans l'équation scalaire déduite de (6E.13). Nous négligeons dans l'expression du laplacien les termes du type  $d^2u/dz^2$ ,  $d^2\varphi/dz^2$ ,  $(d\varphi/ds)(\partial u/\partial z)$  ou  $(dR/dz)^2$  devant ceux en  $ik \, d\varphi/dz$  puisque les fonctions u, R et  $\varphi$  doivent varier lentement à l'échelle de la longueur d'onde (cette simplification est connue sous le nom de l'approximation de l'enveloppe lentement variable). Nous obtenons alors les deux équations suivantes relatives aux composantes en phase et en quadrature de E (ou encore aux parties réelle et imaginaire de l'amplitude complexe) :

$$-\frac{1}{2}\left[\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right]u + \frac{k^2\left(1 - \frac{dR}{dz}\right)}{R^2}\frac{(x^2 + y^2)}{2}u = k\left(\frac{d\varphi}{dz}\right)u \tag{6E.16}$$

$$\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{1}{R} \left( x \frac{\partial u}{\partial x} + y \frac{\partial u}{\partial y} \right) + \frac{u}{R} = 0$$
 (6E.17)

L'équation (6E.16) est, en chaque point z, une équation aux valeurs propres analogue à une équation de Schrödinger indépendante du temps pour un oscillateur harmonique isotrope à deux dimensions (rappelons que u doit être une fonction décroissante de x et de y). Le rôle de la fonction d'onde est tenu par u et l'« énergie » est proportionnelle à  $kd\varphi/dz$ . En appliquant les résultats bien connus de Mécanique Quantique<sup>3</sup>, nous trouvons que les solutions de (6E.16) sont données par des fonctions de la forme (6E.15 où w(z) est défini par la relation :

$$\frac{1}{w^4} = \frac{k^2 \left(1 - \frac{dR}{dz}\right)}{4R^2} \tag{6E.18}$$

De manière analogue au résultat quantique, la valeur propre de l'équation de Schrödinger associée à  $u_{nm}$  est proportionnelle à (n + 1/2) + (m + 1/2). On en déduit que la phase  $\varphi_{nm}$  associée à  $u_{nm}$  vérifie l'équation :

$$\frac{kw^2}{2}\frac{d\varphi_{nm}}{dz} = n + m + 1 \tag{6E.19}$$

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Voir CDL Complément Bv ou A. Messiah Chapitre XII (Dunod, Paris).

En utilisant 6E.18 ainsi que l'équation 6E.17 appliquée à la solution 6E.15, on peut retrouver les équations 6E.2 et 6E.3 donnant respectivement la taille et le rayon de courbure du faisceau et montrer de surcroît que les fonctions w(z) et R(z) sont *indépendantes* de n et m.

Nous savons (notamment par le cours de Mécanique Quantique) que l'ensemble des solutions  $u_{nm}$  de « l'équation de Schrödinger »<sup>4</sup> forme une base de l'espace des états. De la même façon pour le problème de la distribution transverse du champ, nous venons de montrer que, pour des ondes transverses écrites sous la forme 6E.14, une base naturelle est donnée par les fonctions  $u_{nm}$ .

À chaque vecteur de base  $u_{nm}$  est associée une phase  $\varphi_{nm}$  de la même façon qu'une énergie quantifiée est associée à chaque état propre de l'oscillateur harmonique en Mécanique Quantique. Cette phase  $\varphi_{nm}$  est, d'après les équations 6E.2 et 6E.3, solution de l'équation

$$\frac{d\varphi_{nm}}{dz} = \frac{n+m+1}{z_R + \frac{z^2}{z_R}} \tag{6E.20}$$

La solution de l'équation 6E.20 est :

$$\varphi_{nm}(z) = (n+m+1)\tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right) \tag{6E.21}$$

formule qui généralise à un mode transverse quelconque l'équation 6E.4 valable pour le mode gaussien fondamental.

En résumé, nous avons trouvé les solutions, données par l'équation 6E.15, de l'équation d'onde à l'approximation paraxiale. Ces solutions sont appelées modes gaussiens et notées  $\text{TEM}_{nm}$ . Les quantités R(z) et w(z) évoluent en fonction de z comme le mode fondamental (qui n'est autre que le mode  $\text{TEM}_{00}$ ). La différence essentielle avec le mode fondamental est donc la dépendance transversale de l'amplitude des modes qui est le produit d'une gaussienne par des polynômes d'Hermite. La conséquence physique est que l'éclairement dans un plan orthogonal au faisceau, au lieu d'être uniformément décroissant du centre vers les bords, possède ici des lignes nodales et qu'il décroît en moyenne moins vite. En utilisant les expressions<sup>5</sup> des polynômes d'Hermite, il est possible de tracer les variations transverses d'intensité pour les modes TEM<sub>nm</sub>. Par exemple, partant de :

$$H_0(x) = 1$$
$$H_1(x) = 2x$$
$$H_2(x) = 4x^2 - 2$$

nous avons schématisé sur la figure 6E.3 l'allure du profil d'intensité d'un faisceau laser dans quelques modes gaussiens d'ordre peu élevé.

 $<sup>^{4}</sup>$ Le champ électromagnétique dans cette partie est classique et non quantique. L'analogie avec l'équation de Schrödinger est, rappelons le, purement mathématique.

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>Voir A. Messiah Appendice B (Dunod, Paris) ou CDL Complément Bv.



FIG. 6E.3: Distribution transversale d'intensité pour quelques modes gaussiens. On représente l'intensité du faisceau en fonction de x et de y pour -w < x < w et -w < y < w. Alors que le mode  $TEM_{00}$  est pratiquement entièrement contenu dans cette portion du plan, le mode  $TEM_{11}$  est bien plus étalé comme le montre la section du profil d'intensité dans les plans  $x = \pm w$  et  $y = \pm w$ .

#### Remarque

En Mécanique Quantique, il est bien connu que les états propres de l'oscillateur harmonique à deux dimensions peuvent s'exprimer simplement aussi bien en coordonnées cartésiennes qu'en coordonnées cylindriques<sup>6</sup> (à cause de la dégénérescence en n + m des niveaux d'énergie). De la même façon, il est possible de résoudre l'équation 6E.16 en coordonnées cylindriques  $(r, \theta)$ . On obtient alors des solutions  $u_{\{pl\}}$  (p entier positif et l entier relatif) de la

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup>Voir CDL Complément D VI.

 $\mathrm{forme}^7$ 

$$u_{\{pl\}}(r,\theta,z) = \left(\frac{r\sqrt{2}}{w(z)}\right)^{|l|} L_p^{|l|} \left\{\frac{2r^2}{[w(z)]^2}\right\} \exp\left\{-\frac{r^2}{[w(z)]^2}\right\} \exp(-il\theta)$$
(6E.22)

où  $L_p^{|l|}$  est un polynôme de Laguerre généralisé. L'évolution de la phase  $\varphi_{\{pl\}}$  est donnée par la formule suivante remplaçant 6E.21

$$\varphi_{\{pl\}}(z) = (2p + |l| + 1) \tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right)$$
 (6E.23)

## 6E.4 Modes longitudinaux et transverses d'un laser

Considérons une cavité linéaire stable, par exemple la cavité plan-concave de la figure 6E.2. Nous avons vu dans le chapitre III du cours Lasers (§ A.2) que le laser est susceptible d'osciller sur toute fréquence propre de la cavité située dans la partie de la courbe de gain où l'amplification l'emporte sur les pertes. Nous étendons à présent aux modes transverses la discussion faite dans le chapitre pour le cas de modes spécifiquement longitudinaux. Le mode oscillant est à priori caractérisé par trois entiers : m et n sont relatifs à la détermination du mode transverse  $u_{nm}$ , et p est associé à la condition de bouclage sur la longueur de la cavité. Plus précisément, la phase devant se reproduire identiquement à elle-même après un aller-retour on en déduit la condition suivante qui généralise l'équation (A.14) du chapitre III du cours Lasers :

$$\omega_{mnp} \frac{L}{c} - 1 \Big[ \varphi_{mn}(L_0) - \varphi_{mn}(0) \Big] = 2p\pi \tag{6E.24}$$

avec  $L = 2L_0$ . Au terme  $\omega_{mnp}L/c$  se rajoute en plus le déphasage de l'onde transverse entre les extrémités de la cavité de la figure 6E.2, ce déphasage étant multiplié par deux puisque la lumière effectue un aller-retour.

En utilisant l'équation (6E.21) adaptée au cas de la cavité plan-concave (la section du faisceau est minimum au niveau du miroir plan), nous pouvons récrire l'équation (6E.24) sous la forme :

$$\omega_{mnp} = \frac{c}{L} \left[ 2p\pi + 2(n+m+1) \tan^{-1} \left( \frac{L_0}{z_R} \right) \right]$$
(6E.25)

soit en utilisant la valeur de  $z_R$  donnée par l'équation (6E.10) :

$$\frac{\omega_{mnp}}{2\pi} = \frac{c}{L} \left[ p + \frac{1}{2\pi} (n+m+1) \cos^{-1} \left( 1 - \frac{L}{R_2} \right) \right]$$
(6E.26)

qui ne dépend que de la longueur de la cavité  $L_0 = L/2$  et du rayon de courbure  $R_2$  du miroir concave. L'équation (6E.26) montre que les *modes transverses* correspondant à des valeurs différentes de (m + n) oscillant en général à des fréquences différentes.

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup>Pour plus de détails voir par exemple A.E. Siegman, Lasers (University Science Books) ou H. Kogelnik et T. Li, Applied Optics **5**, 1550 (1966).

À priori, divers modes transverses correspondant à des valeurs différentes de n et m peuvent osciller simultanément. Cette oscillation simultanée est gênante, d'abord parce que le laser n'est pas monofréquence, mais aussi parce que la répartition transversale d'éclairement est accidentée, à cause des phénomènes d'interférence entre plusieurs modes transverses alors qu'un éclairement aussi uniforme que possible, est souvent souhaitable. En pratique, le mode TEM<sub>00</sub> est automatiquement privilégié (à condition que le laser soit bien aligné). Il est en effet clair sur la figure 6E.3 que ce mode est le plus concentré transversalement. Or la cavité laser est toujours *diaphragmée* (ne serait-ce que par le diamètre limité des miroirs ou du milieu amplificateur), ce qui provoque *des pertes, d'autant plus importantes que le mode est plus étalé*. Pour un gain faible, seul le mode TEM<sub>00</sub> pourra osciller. Si le gain est plus fort, plusieurs modes transverses vont osciller. Lorsqu'un fonctionnement monomode transverse est difficile à obtenir, il faut ajouter un diaphragme à l'intérieur de la cavité. Celui-ci introduit alors des pertes supplémentaires favorisant le mode fondamental mais fait baisser la puissance de sortie. Le compromis entre qualité de faisceau et puissance dépend de l'application envisagée.

#### Remarque

Les solutions décrite ci-dessus (modes gaussiens) sont celles qui sont généralement rencontrées. Ces formes de faisceau sont associées aux modes d'une cavité *vide* fermée par des miroirs sphériques. La présence du milieu amplificateur (qui par ses propriétés non linéaires peut coupler des modes gaussiens différents), ou l'addition de masques dans la cavité, peuvent permettre l'oscillation de modes ayant une structure spatiale très différente des modes gaussiens<sup>8</sup>.

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup>Voir B. Colombeau, M. Vampouille, V. Kermene, A. Desfarges et C. Froehly, Pure Appli. Opt. 3, 757, 1994.



# ÉDITION 2006

Achevé d'imprimer le 23 janvier 2006 sur les presses du Centre Poly-Média de l'École Polytechnique.

#### ۲

Dépôt légal : 1<sup>er</sup> trimestre 2006  $N^{\circ}$  ISBN 2 – 7302 – 1323 – 6

Tome 2

IMPRIMÉ EN FRANCE