Optique non-linéaire

1 Introduction

Que signifie le terme "non-linéaire" ? Il qualifie la nature de la relation entre l'excitation d'un milieu / matériau et la réponse de ce milieu à cette excitation.
En optique, le milieu est celui dans lequel se propage la lumière et l'excitation est l'onde électromagnétique qui constitue la lumière. En pratique, seul compte le champ électrique de cette onde. Quelle est la réponse du milieu au champ électrique de l'onde lumineuse ?
Le milieu est constitué d'atomes, dont le noyau positif et les électrons négatifs sont déplacés en sens contraires par le champ électrique. Le noyau ne se trouve plus au centre des électrons. Il se forme alors deux pôles : un pôle négatif qui est le centre des électrons; et un centre positif qui est le noyau. Ce phénomène s'appelle polarisation du milieu (à ne pas confondre avec la polarisation de la lumière) et est la réponse du milieu au champ électrique et est représentée par un vecteur $\overrightarrow{P} = f(\overrightarrow{E})$ qui est proportionnel au vecteur joignant les deux pôles. La fonction f permet entre autres de déterminer l'indice du milieu (ou les indices pour un milieu anisotrope) par $n^2 = 1 + \|f(E)\|/(\epsilon_0 E)$.
Si $\overrightarrow{E}$ est faible, on peut effectuer un développement limité de f autour de $\overrightarrow{0}$. Lorsque le développement limité au premier ordre est suffisant pour rendre compte des phénomènes observés, $\overrightarrow{P}$ dépend linéairement des composantes de $\overrightarrow{E}$ et on se trouve dans le cas de l'optique linéaire. C'est la situation que nous avons rencontrée jusqu'à présent, sauf la biréfringence artificielle (nous y reviendrons plus tard).
Lorsque l'intensité de $\overrightarrow{E}$ devient suffisamment importante (comparable à celle du champ électrique entre le noyau et les électrons d'un atome), il faut utiliser les termes d'ordre 2 ou 3 du développement limité. De telles intensités sont rarement atteintes par des sources classiques, mais accessibles avec des lasers. Dans ce cas, on parle d'optique non-linéaire.
Une des caractéristiques de l'optique non-linéaire est que la réponse à la somme de deux champs électriques n'est pas la somme des réponses à chaque champ pris individuellement. Un autre aspect remarquable des systèmes non-linéaires est leur capacité de changer la couleur d'un faisceau lumineux.

2 Effets non-linéaires du second ordre

2.1 Description succinte

Ces effets permettent de décrire le doublement de fréquence de la lumière, ou encore l'effet Pockels. On se rappelle que l'effet Pockels n'a lieu que dans des milieux anisotropes. En fait, tous les effets non-linéaires du second ordre ne peuvent se produire que dans des milieux anisotropes, plus précisément dans des milieux ne présentant pas de symétrie centrale (non centro-symétriques).
En effet, si le milieu est centro-symétrique, les composantes de $\overrightarrow{E}$ et $\overrightarrow{P}$ changent de signe sous une symétrie centrale. Or le terme du second ordre de la composante i de $\overrightarrow{P}$ est la somme de termes de la forme $\beta_{ijk}E_jE_k$. Ce terme doit changer de signe sous la symétrie centrale en tant que composante de $\overrightarrow{P}$. Mais si les composantes de $\overrightarrow{E}$ changent de signe, le produit de deux d'entre elles est invariant. Ainsi, le terme du second ordre doit à la fois changer de signe et être invariant. La seule possibilité est qu'il soit nul. L'effet du second ordre n'existe donc pas dans les milieux centro-symétriques. Comme les milieux isotropes le sont, ils ne présentent pas cet effet.

2.2 Doublement de fréquence

2.2.1 Présentation

Supposons que l'onde lumineuse incidente soit sinusoïdale monochromatique, avec un champ électrique de la forme $\vec{E} = \vec{E}_0 \cos(\omega t)$ où $\vec{E}_0$ est constant et désigne la direction de polarisation de la lumière.
Le terme d'ordre un de la réponse à cette onde lumineuse est aussi proportionnel à $\cos(\omega t)$, et donc à une onde de pulsation $\omega = 2\pi\nu$. C'est la réponse linéaire : les atomes du milieu créent une onde de même fréquence que l'onde incidente.
Par contre, le terme d'ordre deux est proportionnel à $\cos^2(\omega t) = 1/2 + 1/2\cos(2\omega t)$. On voit apparaitre un terme constant (de fréquence nulle) et un terme de fréquence 2ν. A l'ordre deux, la réponse du milieu à l'onde incidente contient donc une onde de fréquence double de celle de l'onde incidente.
C'est ce phénomène qui est utilisé pour transformer la lumière infrarouge d'un laser YAG (longueur d'onde dans le vide $\lambda_1 = 1064$ nm) en la lumière verte d'un laser YAG doublé (longueur d'onde dans le vide $\lambda_2 = 532$ nm). Notons que le cristal doubleur laisse aussi passer le rayonnement infrarouge (réponse linéaire). Dans un laser YAG doublé, le cristal doubleur se trouve dans la cavité du laser YAG. Le miroir de sortie de cette cavité est transparent pour le vert et fortement réfléchissant pour l'infrarouge. Certains lasers YAG doublés à bas coût laissent passer l'IR (laser YAG simple + sa pompe) et peuvent atteindre des puissances élevées toutes fréquences confondues, même si la puissance dans le vert est faible (certains pointeurs laser).

2.2.2 Condition d'adaptation de phase

L'onde incidente de pulsation ω se propage dans le milieu avec la vitesse de phase $v_\omega = c/n(\omega)$. Elle génère sur son passage une onde réponse de pulsation ω, qui se propage elle aussi à la vitesse de phase v_ω, et avec laquelle elle est en phase et interfère constructivement. Cela donne l'onde totale de pulsation ω se propageant dans le milieu.
Sur son passage, l'onde incidente génère aussi une onde de pulsation 2ω se propageant avec la vitesse de phase $v_{2\omega} = c/n(2\omega)$. A cause du phénomène de dispersion, on a généralement $n(2\omega) \neq n(\omega)$ et donc des vitesses différentes pour l'onde incidente et pour l'onde de fréquence double. Cela signifie que l'onde de fréquence double est en avance ou en retard par rapport à l'onde qui lui donne naissance : il y a un désaccord de phase entre ces deux ondes, qui empêche l'interférence constructive entre l'onde de pulsation 2ω créée en un point et celle arrivant en ce point après avoir été créée un peu plus en amont. Plus exactement, à partir de l'entrée le déphasage entre ces deux ondes augmente jusqu'à atteindre π où l'interférence est destructive (en ce point, l'intensité de l'onde de fréquence double est nulle), puis continue d'augmenter jusqu'à atteindre 2π où l'interférence est constructive (en ce point, l'onde de fréquence double a une intensité maximale). Puis les interférences diminuent jusqu'à ce que le déphasage atteigne 3π, puis réaugmentent alors jusqu'à un déphasage de 4π etc...
On peut interpréter cela comme le fait qu'au début l'onde incidente cède de l'énergie pour créer l'onde de fréquence double, qui une fois créée, cède à son tour de l'énergie à l'onde incidente et ainsi de suite.
On voit que l'intensité de l'onde de fréquence double à la sortie du milieu dépend de manière critique de la longueur de celui-ci. Pour y remédier, il faudrait que la vitesse de phase des ondes incidente et doublée soit la même. On aurait alors un accord de phase. Cela peut se faire de diverses manières. La plus répandue consiste à exploiter la biréfringence du milieu doubleur de fréquence. Comme celui-ci est anisotrope, il possède deux indices ordinaire n_O et extraordinaire n_E. Le rayon ordinaire voit toujours le même n_O; et le rayon extraordinaire voit un indice n_e compris entre n_O et n_E et qui dépend de la direction de propagation. Si on choisit l'onde incidente comme rayon ordinaire de pulsation ω, on peut s'arranger pour que l'onde de pulsation 2ω soit extraordinaire, en choisissant une direction de propagation telle

que $n_O(\omega) = n_e(2\omega)$. On a alors réalisé l'accord de phase et l'onde de fréquence double se propage de manière optimale avec une intensité maximale tout le long du cristal. Voir BTS 2000 en exercice pour une version plus mathématique.

2.2.3 Interprétation en termes de photons

On peut voir l'apparition de lumière à la fréquence 2ν comme la transformation de deux photons de fréquence ν en un photon de fréquence 2ν. Pourquoi *deux* photons ? Car il faut assurer la conservation de l'énergie, et en utilsant la relation de Planck on a bien $h\nu + h\nu = h(2\nu)$. Cette transformation est effectuée par les électrons des atomes du cristal doubleur. On peut concevoir qu'une grande intensité du faisceau incident est nécessaire, car il faut que deux photons se trouvent au même endroit en même temps pour que la transformation soit possible, et que cette coïncidence se reproduise souvent pour que les photons de fréquence 2ν soient nombreux. Il faut donc un grand nombre de photons dans un petit espace sur une courte durée, c'est à dire une grande intensité lumineuse.
On remarque que la transformation inverse est également possible : un photon de fréquence 2ν donnant deux photons de fréquence ν.
De manière générale, les phénomènes optiques non-linéaires s'interprètent en terme de processus faisant intervenir plusieurs photons (multiphotoniques).

2.3 Création de fréquences somme et différence

Si l'onde lumineuse incidente contient deux fréquences :

$$\overrightarrow{E} = \overrightarrow{E}_1 \cos(\omega_1 t) + \overrightarrow{E}_2 \cos(\omega_2 t)$$

le terme d'ordre deux de la réponse contient les fréquences 0, $2\omega_1$, $2\omega_2$, $\omega_1 + \omega_2$ et $\omega_1 - \omega_2$ car

$$\begin{aligned}(\cos(\omega_1 t) + \cos(\omega_2 t))^2 &= \cos^2(\omega_1 t) + \cos^2(\omega_2 t) + 2\cos(\omega_1 t)\cos(\omega_2 t) \\ &= 1 + \frac{1}{2}(\cos(2\omega_1 t) + \cos(2\omega_2 t)) + \cos((\omega_1 + \omega_2)t) + \cos((\omega_1 - \omega_2)t)\end{aligned}$$

Cet effet est utilisé pour tripler la fréquence d'un laser YAG infrarouge. On commence par faire passer le faisceau infrarouge dans un cristal doubleur, d'où sortent deux faisceaux de pulsations $\omega_1 = \omega$ et $\omega_2 = 2\omega$. On fait ensuite la somme de ces deux pulsations dans un autre cristal. La pulsation $\omega_1 + \omega_2 = 3\omega$ est sélectionnée par accord de phase.

2.4 Effet Pockels

Nous avons vu que l'effet Pockels se produit dans des milieux anisotropes, et qu'il consiste à faire varier les indices ordinaire et extraordinaire en fonction d'un champ électrique statique appliqué. Cela est en fait un effet d'optique non-linéaire : on superpose un champ électrique statique $\overrightarrow{E}_0$ ($\omega_1 = 0$) et un champ électrique optique $\overrightarrow{E_\omega}$ ($\omega_2 = \omega$) comme onde incidente. La réponse non-linéaire d'ordre deux contient un terme de pulsation ω proportionnel au produit des amplitudes des deux champs $E_0 E_\omega$.
Les indices ordinaire et extraordinaire vérifient $n^2 = n_{lin}^2 + \alpha(E_0 E_\omega)/(\epsilon_0 E_\omega)$, ce qui donne

$$n = n_{lin} + \frac{\alpha}{2 n_{lin} \epsilon_0} E_0$$

où n_{lin} est la contribution à l'indice de la réponse linéaire.

3 Effets non-linéaires d'ordre trois

Ces effets peuvent se produire dans les milieux isotropes. Nous allons en voir deux : l'effet Kerr que nous avons déjà rencontré à propos de la biréfringence artificielle, et l'effet Kerr optique dont nous montrerons qu'il peut-être intéressant ou gênant selon les cas.

3.1 Forme du terme d'ordre trois

Le terme d'ordre trois est la somme de produits de trois champs électriques. Si leurs pulsations sont ω_1, ω_2 et ω_3, un terme d'ordre trois vaut le produit

$$\cos(\omega_1 t)\cos(\omega_2 t)\cos(\omega_3 t) = \frac{1}{8}(e^{i\omega_1 t} + e^{-i\omega_1 t})(e^{i\omega_2 t} + e^{-i\omega_2 t})(e^{i\omega_3 t} + e^{-i\omega_3 t})$$

et toutes les fréquences $\pm\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3$ sont possibles.
Si l'onde incidente contient une seule pulsation ω, la réponse d'ordre trois contiendra les fréquences $3\omega = \omega + \omega + \omega$, $\omega = \omega + \omega - \omega$ et leurs opposées $-\omega = \omega - \omega - \omega$ et -3ω. Cela sera utilisé pour l'effet Kerr optique.
Si l'onde incidente contient deux pulsations ω_1 et ω_2, la réponse d'ordre trois contiendra les fréquences $3\omega_1$, $2\omega_1 + \omega_2$, $2\omega_1 - \omega_2$, $\omega_1 + 2\omega_2$, $\omega_1 - 2\omega_2$, $3\omega_2$, ω_1, ω_2, et leurs opposées.

3.2 Effet Kerr statique

On applique un champ électrique statique $\overrightarrow{E}_0$ de pulsation $\omega_1 = 0$ à un milieu isotrope traversé par une onde lumineuse de champ électrique $\overrightarrow{E}_\omega$ de pulsation $\omega_2 = \omega$. Comme le milieu est isotrope, il n'y a pas d'effet non-linéaire d'ordre deux.
La propagation de l'onde de pulsation ω est affectée par un effet non-linéaire d'ordre trois : la réponse contient un terme $\alpha E_0^2 E_\omega e^{i\omega t}$ qui contribue à l'indice cette onde :

$$n^2 = n_{lin}^2 + \frac{\alpha E_0^2 E_\omega}{\epsilon_0 E\omega} = n_{lin}^2 + \frac{\alpha}{\epsilon_0} E_0^2$$

et donc l'indice

$$n = n_{lin} + \frac{\alpha}{2 n_{lin} \epsilon_0} E_0^2$$

dépend du carré du champ statique. On retrouve partiellement ce qui a été vu pour la biréfringence artificielle, mais on n'a pas expliqué comment le milieu devient biréfringent. Pour cela, il faudrait regarder en détail ce qui se passe avec la direction de $\overrightarrow{E}_\omega$ qui définit la polarisation de l'onde incidente. Ici, nous avons supposé implicitement qu'elle est parallèle à $\overrightarrow{E}_0$ qui définit l'axe optique.

3.3 Effet Kerr optique

On éclaire un milieu isotrope avec une onde lumineuse $\overrightarrow{E}_\omega$ de pulsation ω et d'intensité élevée. L'effet Kerr est provoqué non pas par un champ statique, mais par le champ électrique de l'onde elle-même.

3.3.1 Description

La réponse d'ordre trois à l'onde lumineuse contient des termes de la forme $E_\omega^3 e^{i\omega t} e^{i\omega t} e^{-i\omega t} = I E_\omega e^{i\omega t}$, où I est l'intensité de l'onde, qui décrivent une modification de l'onde de pulsation ω. Ils contribuent à l'indice du milieu par un terme $\frac{\alpha}{2 n_{lin} \epsilon_0} I = n_{NL} I$. Et l'onde lumineuse voit un indice

$$n = n_{lin} + n_{NL} I$$

qui dépend de son intensité.
Une description plus détaillée montrerait qu'il y a aussi une biréfringence induite par l'onde incidente.

3.3.2 Auto-focalisation de la lumière

Supposons que n_{NL} soit positif, et que l'onde lumineuse ait un profil tel que son intensité soit maximale au centre du faisceau et décroisse en allant vers les bords. L'indice du milieu est alors plus élevé au centre que sur les bords du faisceau. Or les rayons lumineux sont déviés vers les zones d'indice élevé. Donc le faisceau lumineux va converger vers son centre : il se focalise sous l'effet de sa propre intensité et on parle d'auto-focalisation. Cet effet s'entretient tout seul, car le faisceau convergeant vers son centre, l'intensité y devient plus élevée, augmentant l'indice et accentuant la focalisation.
Cependant, la diffraction empêche le faisceau d'atteindre un rayon trop petit.
Cet effet est généralememt considéré comme une gêne pour la propagation du faisceau. La raison en est que la moindre fluctuation d'intensité dans une direction du faisceau conduit à l'autofocalisation dans cette direction, en plus de celle au centre. Le faisceau se décompose alors en une multitude de petits filaments lumineux, et perd sa forme initiale.

3.3.3 Laser blanc

On fait se propager une impulsion picoseconde dans un verre ou une fibre optique. Cette impulsion est intense et modifie l'indice du milieu traversé, c'est à dire la vitesse de phase et donc la phase de l'onde qui se propage. De plus, cette variation de phase dépend du temps, car l'intensité de l'impulsion varie dans le temps (à l'échelle de la durée de l'impulsion).
Or la variation de la phase dans le temps correspond à la pulsation de l'onde (dépendance en ωt). L'effet Kerr optique et la forme de l'impulsion impliquent une variation supplémentaire de phase dans le temps, et donc une variation de pulsation. Une variation de phase de 6π rad pendant une durée d'impulsion de 1 ps corrspond à un élargissement en pulsation de $2 \cdot 10^{13}$ rad/s, soit un élargissement en longueur d'onde de 10 nm.
En choisissant bien le matériau et l'impulsion laser, on arrive à créer des élargissements couvrant tout le visible, allant du proche IR au proche UV, avec un spectre pratiquement plat. On obtient ainsi de la lumière ayant certaines caractéristiques du laser (cohérence spatiale, directivité) et un spectre blanc.

3.3.4 Bistabilité optique

Si on place un matériau présentant l'effet Kerr optique dans une cavité Fabry-Pérot, l'intensité transmise par cette cavité dépend de l'intensité incidente de manière non-unique : il y a de l'hystérésis (comme pour le déplacement du piézo en fonction de la tension dans le TP de mise en oeuvre).
L'intensité transmise peut être soit faible, soit élevée, pour une même valeur de l'intensité incidente, en fonction de la manière dont cette intensité incidente a été atteinte. On a donc l'équivalent d'un état haut et d'un état bas, ou d'un 1 et un 0 logiques. Ce système constitue un composant optique pouvant intervenir dans la construction de portes logiques optiques, ouvrant des perspectives pour un ordinateur optique.