

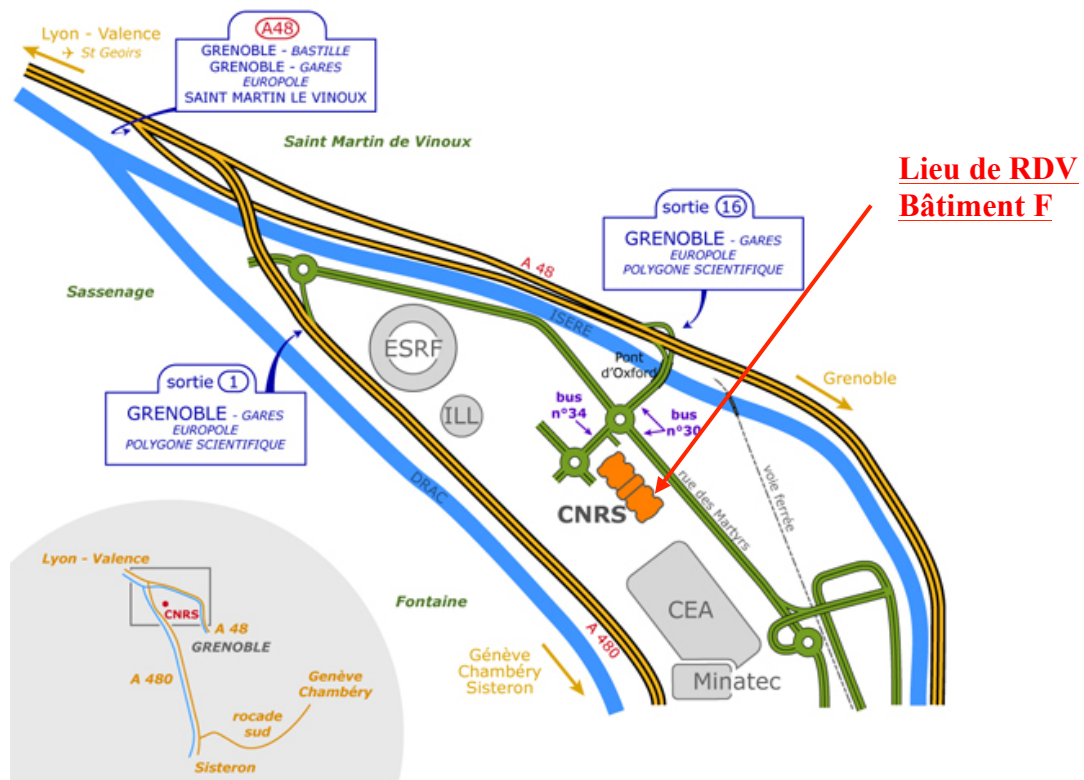
TP 3^{ème} année PHELMA PNS 3A (Physique Appliquée)

TP Optique Non linéaire

Institut Néel Salle C3 (RdC) du Bâtiment F – 25, avenue des Martyrs – Grenoble

- version septembre 2014 -

L'accès à l'Institut est ouvert au public de 8h à 18H. Le rendez-vous est fixé avec l'enseignant **5 minutes avant l'heure de la séance**, devant au RDC du Bâtiment F, devant l'accès aux étages par escalier (faces aux boîtes aux lettres). Si Pb appeler P.Segonds au 04 76 88 78 07.



Ce TP se divise en deux parties :

☞ PARTIE I : OPTIQUE CRISTALLINE LINEAIRE (8H30 A 12H30)

Elle occupe les pages 2 à 9. Elle contient un résumé sur la propagation dans les milieux anisotropes qui sera commenté par l'enseignant. La rédaction des questions préparatoires et des résultats des mesures seront consignés dans le compte-rendu remis en fin de TP.

☞ PARTIE II : OPTIQUE NON LINEAIRE – CONVERSION DE FREQUENCE (13H30 à 17H30)

Elle occupe les pages 10 à 16. Elle contient un résumé d'optique non linéaire de conversion de fréquence par processus quadratique de somme ou de différence de fréquence qui sera commenté par l'enseignant. Le cas particulier de génération de second harmonique (SHG) sera étudié à partir de questions préparatoires et de mesures.

Tous les résultats seront consignés dans le compte-rendu rendu ultérieurement.

Pour toute question, n'hésitez pas à me contacter à patricia.segonds@neel.cnrs.fr

PARTIE I: OPTIQUE CRISTALLINE LINEAIRE –MILIEU TRANSPARENT

La classe optique

On rappelle que la majorité des milieux matériels transparents homogènes et non conducteurs sont isotropes. Dans ce cas leurs propriétés optiques par exemple ne dépendent pas de la direction de propagation dans le matériau. Ces milieux appartiennent à la classe optique isotrope. Leurs propriétés optiques linéaires sont décrites par la permittivité diélectrique relative ϵ_r qui est un réel.

Dans certains milieux matériels transparents homogènes et non conducteurs, comme les cristaux par exemple, les propriétés optiques ne sont pas les mêmes dans toutes les directions de l'espace. Ceci définit les milieux ou matériaux optiquement anisotropes et ils appartiennent à la classe optique anisotrope uniaxe ou anisotrope biaxe. Leurs propriétés optiques linéaires sont toujours décrites par la permittivité diélectrique relative ϵ_r qui devient un tenseur polaire de rang deux (*i.e.* une matrice).

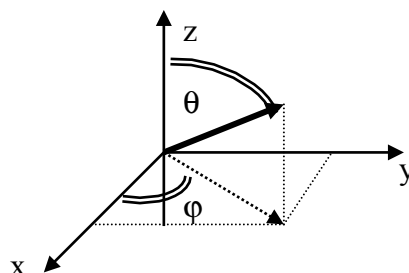
Classe optique et système cristallin

L'appartenance d'un cristal à une classe optique dépend de la classe de symétrie d'orientation de sa maille cristalline. Le tableau ci-dessous donne la correspondance entre le système cristallin, la classe de symétrie d'orientation et la classe optique.

Système cristallin	Classe de symétrie d'orientation	Classe optique
Cubique	$23, m\bar{3}, \bar{4}3m, 432, m\bar{3}m$	Isotrope
Hexagonal	$6, \bar{6}, \frac{6}{m}, 6mm, 62m, \bar{6}22, \frac{6}{m}mm$	Anisotrope Uniaxe
Trigonal	$3, \bar{3}, 3m, 32, \bar{3}m$	
Tétragonal	$4, \bar{4}, \frac{4}{m}, 4mm, \bar{4}2m, 422, \frac{4}{m}mm$	
Orthorhombique	$mm2, 222, mmm$	Anisotrope Biaxe
Monoclinique	$m, 2, \frac{2}{m}$	
Triclinique	$1, \bar{1}$	

Le repère optique ou diélectrique/ repère cristallographique

Quel que soit la classe de symétrie d'orientation du cristal étudié, on décrit ses propriétés optiques dans le repère optique ou diélectrique $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$. C'est un repère orthonormé et pour un milieu anisotrope c'est le repère qui diagonalise le tenseur polaire qui décrit la permittivité relative. Dans ce repère, une direction de propagation est repérée en coordonnées sphériques par les angles θ, φ . Le repère diélectrique est généralement différent du repère cristallographique $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$ qui, lui, est lié à la maille cristalline, et n'est pas toujours orthogonal.



Le cristal étudié dans ce TP

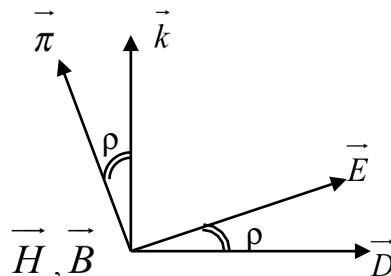
Dans ce TP nous étudierons un cristal de RbTiOPO_4 (RTP), qui cristallise dans le système orthorhombique dans la classe de symétrie d'orientation $mm2$. Il appartient donc à la classe optique anisotrope biaxe. Pour le cristal RTP, le repère cristallographique $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$ est orthogonal il est donc entièrement lié au repère diélectrique $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$: on a donc $x \parallel a$, $y \parallel b$ et $z \parallel c$.

Equations constitutives

Dans un milieu optiquement anisotrope, la susceptibilité électrique linéaire $\chi^{(1)}$ qui relie le vecteur polarisation \vec{P} au vecteur champ électrique \vec{E} , $\vec{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot \vec{E}$, n'est plus un scalaire devient un tenseur de rang 2 (i.e. une matrice), fonction de la direction de propagation de l'onde électromagnétique. Dans le repère optique la matrice de susceptibilité électrique linéaire $\chi^{(1)}$ est diagonale et s'écrit :

Pour les milieux uniaxes, deux valeurs propres de la matrice $\chi^{(1)}$ sont égales, soit (par convention) $\chi_{xx}^{(1)} = \chi_{yy}^{(1)} \neq \chi_{zz}^{(1)}$;
 Pour les milieux biaxes, les trois valeurs propres de la matrice $\chi^{(1)}$ sont différentes.
 Les milieux isotropes sont quant à eux caractérisés par l'égalité des trois valeurs propres de la matrice $\chi^{(1)}$.

Rappelons que la permittivité diélectrique relative est donnée par $\epsilon_r = 1 + \chi^{(1)}$ (c'est donc également un tenseur polaire de rang deux (i.e. une matrice) et que le vecteur déplacement électrique \vec{D} est relié au champ \vec{E} par la relation $\vec{D} = \epsilon_0 \epsilon_r \cdot \vec{E}$. Dans un milieu optiquement anisotrope, les deux vecteurs \vec{E} et \vec{D} ne sont donc pas colinéaires en général ; l'angle entre les deux vecteurs, noté ρ , est appelé angle de double réfraction. Dans le cas majoritaire des milieux isotropes pour leurs propriétés magnétiques, μ_r est scalaire. Ainsi les vecteurs champ magnétique \vec{H} et induction magnétique \vec{B} sont colinéaires, et ρ représente alors également l'angle entre le vecteur d'onde \vec{k} (direction de propagation de l'onde électromagnétique) et le vecteur de Poynting $\vec{\pi}$ (direction de propagation de l'énergie lumineuse). Les quatre vecteurs \vec{E} , \vec{D} , \vec{k} et $\vec{\pi}$ appartiennent au même plan, perpendiculaire au champ magnétique :



La surface des indices – équation de Fresnel

La surface des indices représente dans le repère optique ou diélectrique l'indice de réfraction en fonction de la direction de propagation de l'onde.

Dans un milieu isotrope, l'indice de réfraction ne dépend pas de la direction de propagation. La surface des indices est donc une sphère de rayon n , avec $n = \sqrt{\epsilon_r} = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}$.

Pour les milieux anisotropes, les équations de Maxwell permettent d'établir l'équation de Fresnel, qui donne dans le repère optique la dépendance de l'indice de réfraction en fonction de la direction de propagation repérée par les angles θ et φ . Cette équation s'écrit :

$$\frac{\frac{\sin^2(\theta) \cdot \cos^2(\varphi)}{1} - \frac{1}{n_x^2(\lambda)}}{\frac{\sin^2(\theta) \cdot \sin^2(\varphi)}{1} - \frac{1}{n_y^2(\lambda)}} + \frac{\frac{\cos^2(\theta)}{1} - \frac{1}{n_z^2(\lambda)}}{\frac{\sin^2(\theta) \cdot \sin^2(\varphi)}{1} - \frac{1}{n_y^2(\lambda)}} = 0$$

où les n_i , avec $i=x, y$ ou z , représentent les indices de réfraction principaux, qui sont liés aux valeurs propres de la matrice $\chi^{(1)}$ par la relation $n_i = \sqrt{1 + \chi_{ii}^{(1)}}$.

L'équation de Fresnel est quadratique par rapport à l'indice de réfraction n . Elle admet donc en général deux solutions distinctes qui dépendent de la direction de propagation : $n^+(\theta, \varphi, \lambda)$ et $n^-(\theta, \varphi, \lambda)$ et qui s'écrivent respectivement :

$$n^+(\theta, \varphi, \lambda) = \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{-B_1 - \sqrt{B_1^2 - 4C_1}}} \quad \text{et} \quad n^-(\theta, \varphi, \lambda) = \frac{\sqrt{2}}{\sqrt{-B_1 + \sqrt{B_1^2 - 4C_1}}}$$

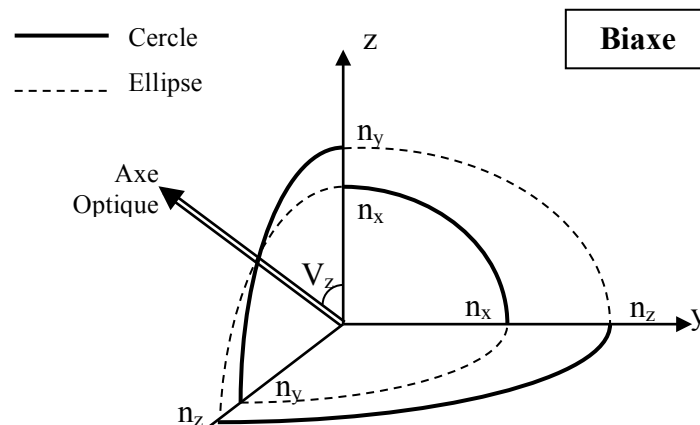
où

$$B_1 = -\sin^2(\theta)\cos^2(\varphi)\left[\frac{1}{n_y^2(\lambda)} + \frac{1}{n_z^2(\lambda)}\right] - \sin^2(\theta)\sin^2(\varphi)\left[\frac{1}{n_x^2(\lambda)} + \frac{1}{n_z^2(\lambda)}\right] - \cos^2(\theta)\left[\frac{1}{n_x^2(\lambda)} + \frac{1}{n_y^2(\lambda)}\right]$$

$$\text{et } C_1 = \sin^2(\theta)\cos^2(\varphi)\frac{1}{n_y^2(\lambda)n_z^2(\lambda)} + \sin^2(\theta)\sin^2(\varphi)\frac{1}{n_x^2(\lambda)n_z^2(\lambda)} + \cos^2(\theta)\frac{1}{n_x^2(\lambda)n_y^2(\lambda)}.$$

La relation d'ordre $n^+(\theta, \varphi, \lambda) \geq n^-(\theta, \varphi, \lambda)$ reste toujours vérifiée. La surface des indices est donc généralement composée de deux nappes : la nappe interne qui correspond à l'indice $n^-(\theta, \varphi, \lambda)$, et la nappe externe liée à l'indice $n^+(\theta, \varphi, \lambda)$. La forme de ces nappes est spécifique à chaque type de milieu (uniaxe ou biaxe). Enfin la surface des indices est une fonction des indices principaux, qui dépendent chacun de la longueur d'onde λ .

Dans un milieu biaxe, la convention usuelle impose $n_x < n_y < n_z$. Les deux nappes ne présentent pas de symétrie de révolution. Dans les plans principaux, la trace de la surface des indices est toujours composée d'un cercle et d'une ellipse comme montré dans la figure suivante pour un quart de l'espace. Il existe aussi deux axes de propagation particuliers, nommés axes optiques, pour lesquels l'équation de Fresnel admet une solution double. Ces deux axes et l'ombilic correspondant sont situés dans le plan (\vec{x}, \vec{z}) et sont symétriques par rapport à l'axe (Oz). Ils sont caractérisés par l'angle V_z , qui dépend de la longueur d'onde.



Les équations de Sellmeiers – cas du cristal RTP

Nous avons évoqué que la surface des indices est une fonction des indices principaux, qui dépendent chacun de la longueur d'onde λ . Cette dépendance, appelée dispersion, est bien modélisée par des équations dites « de Sellmeier ». Elle est liée à la composition chimique du cristal étudié.

Comme nous étudierons dans ce TP un cristal de RbTiOPO_4 (RTP), qui fait partie des matériaux biaxes anisotropes, nous décrirons dans ce document uniquement la surface des indices pour la classe anisotrope biaxe. De plus, pour RbTiOPO_4 (RTP), les équations de dispersion des indices principaux s'écrivent sous la forme générale suivante :

$$n_i^2(\lambda) = A_i + \frac{B_i}{1 - \left(\frac{C_i}{\lambda}\right)^{p_i}} + \frac{D_i}{1 - \left(\frac{E_i}{\lambda}\right)^{q_i}}, \text{ avec } i=x, y \text{ ou } z.$$

Attention : λ doit être exprimé en μm .

Les constantes $A_i, B_i, C_i, D_i, E_i, p_i$ et q_i sont données dans le tableau 3 pour RTP :

Paramètre	n_x	n_y	n_z
A_i	2.1982	2.2804	2.3412
B_i	0.89948	0.84585	1.0609
C_i	0.21520	0.22963	0.26461
D_i	1.5433	1.1009	0.97140
E_i	11.585	9.6602	8.1490
p_i	1.9727	1.9696	2.0585
q_i	1.9505	1.9369	2.0038

Dans ce TP on utilisera un laser He-Ne dont la longueur d'onde est $\lambda = 632.8 \text{ nm}$.

Propagation dans les milieux anisotropes : modes de polarisation – double réfraction

Dans tous les types de milieux anisotropes (uniaxes ou biaxes), deux ondes de polarisation $\vec{E}^+(\theta, \varphi)$ et $\vec{E}^-(\theta, \varphi)$ sont associées aux deux solutions de l'équation de Fresnel. Elles sont polarisées rectilignement, mais chacune dans un état de polarisation différent. Il est possible de montrer simplement que dans les plans principaux, l'onde associée à la nappe circulaire est polarisée perpendiculairement au plan considéré, alors que l'onde associée à la nappe elliptique est polarisée tangentiellement à cette ellipse (ce raisonnement peut être prolongé par continuité au cas du plan (\vec{x}, \vec{y}) d'un milieu uniaxe, pour lequel les deux traces sont circulaires). Dans les plans principaux, les deux états de polarisation sont donc toujours orthogonaux. Hors des plans principaux, les équations de Maxwell permettent d'établir une expression des composantes du champ en fonction de la direction de propagation, pour chacune des solutions de l'équation de Fresnel. Chacune des deux ondes susceptibles de se propager dans le milieu reste polarisée rectilignement, mais les deux états de polarisation ne sont en général plus orthogonaux.

Enfin, rappelons que les deux ondes voient des indices de réfraction $n^+(\theta, \varphi, \lambda)$ et $n^-(\theta, \varphi, \lambda)$ différents, elles ne se propagent donc pas à la même vitesse ! Les deux vecteurs de Poynting $\vec{\pi}^+(\theta, \varphi, \lambda)$ et $\vec{\pi}^-(\theta, \varphi, \lambda)$ matérialisent les directions de propagation de l'énergie lumineuse,

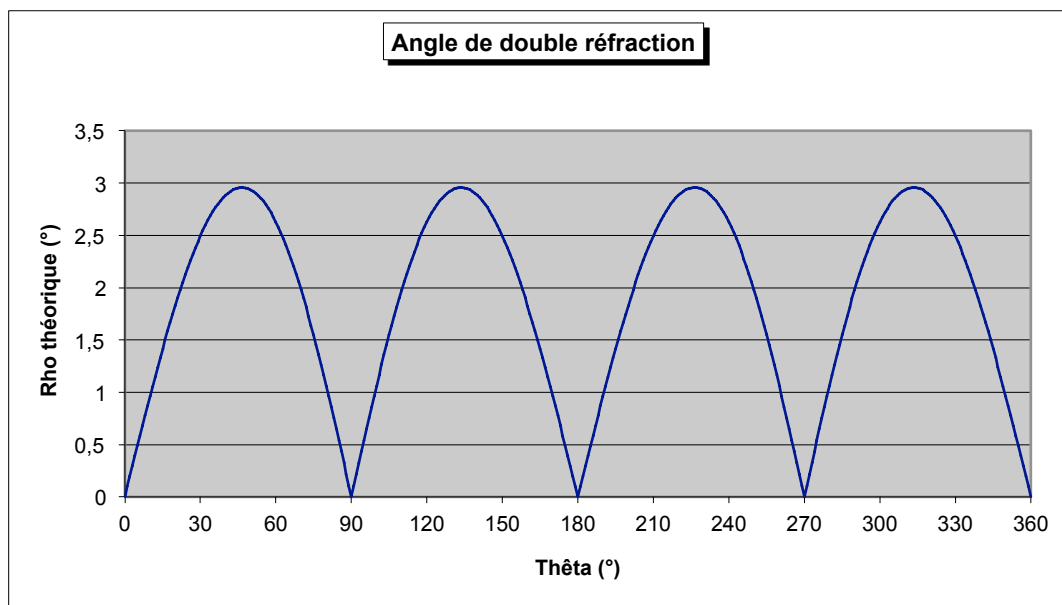
donc du rayon lumineux ; ils sont quant à eux toujours normaux à la nappe de la surface des indices considérée. Ainsi, dans les plans principaux, la direction de propagation de l'onde électromagnétique et celle de l'énergie lumineuse sont colinéaires lorsque la trace de la nappe considérée est un cercle. Au contraire, elles sont séparées par l'angle de double réfraction ρ lorsque la trace de la nappe considérée est une ellipse. Dans les plans principaux, il y a toujours une nappe dont la trace est un cercle. Ainsi, l'angle qui sépare les deux rayons, et qui est défini par : $\rho_i(\theta) = \arccos(\vec{\pi}^+ \cdot \vec{\pi}^-)$, vaut selon les cas :

Expression de ρ_i	Onde correspondant à la nappe de trace circulaire	Situation correspondante
$\rho_i(\theta, \lambda) = \rho^+(\theta, \lambda)$	onde « - »	Biaxes : plan (\vec{x}, \vec{z}) avec $\theta > V_z$, et plan yz Uniaxes positifs : plans (\vec{x}, \vec{z}) et (\vec{y}, \vec{z})
$\rho_i(\theta, \lambda) = \rho^-(\theta, \lambda)$	onde « + »	Biaxes : plan xz avec $\theta < V_z$, et plan (\vec{x}, \vec{y}) Uniaxes négatifs : plans (\vec{x}, \vec{z}) et (\vec{y}, \vec{z})
$\rho_i(\theta, \lambda) = 0$	ondes « + » et « - »	Uniaxes positifs et négatifs : plan (\vec{x}, \vec{y})

Dans le plan (\vec{y}, \vec{z}) d'un matériau biaxe, plan caractérisé par $\varphi = \pi/2$, l'angle de double réfraction ρ_i entre les deux rayons lumineux correspond à ρ^+ , et il est donné par :

$$\rho_{yz}^+(\theta, \lambda) = \arccos\left(\frac{n_y^2 \cdot \sin^2(\theta) + n_z^2 \cdot \cos^2(\theta)}{\sqrt{n_y^4 \cdot \sin^2(\theta) + n_z^4 \cdot \cos^2(\theta)}}\right)$$

L'angle de double réfraction est une fonction des indices principaux, il dépend donc aussi de la longueur d'onde λ . Un objectif de cette première partie est de se familiariser avec le phénomène de double réfraction. Cette étude se fera sur le cristal de RbTiOPO₄ (RTP) pour la longueur d'onde $\lambda = 632.8$ nm. La courbe suivante représente à partir de la formule précédente l'angle de double réfraction $\rho_{yz}^+(\theta, \lambda)$. Il a été calculé dans un quart de plan $0 \leq \theta \leq 90^\circ$ à $\lambda = 632.8$ nm :



L'angle de double réfraction dans un quart de plan décrit successivement quatre arches. $\rho_{yz}^+(\theta, \lambda) = 0$ quand la direction de propagation correspond à l'axe y ou z, que l'on appelle les axes principaux du repère optique.

CALCULS THEORIQUES

Question 1 :

Retrouver à partir des équations de Fresnel ou de la figure de la surface des indices d'un cristal biaxe, l'expression analytique dans un quart du plan (\vec{x}, \vec{z}) des deux nappes de la surface des indices du cristal RTP. En déduire l'expression analytique de l'angle V_z qui dépend de λ . Faire le même calcul dans un quart du plan (\vec{x}, \vec{y}) puis du plan (\vec{y}, \vec{z}) .

Question 2 :

Tracer en vue de dessus pour un quart du plan (\vec{y}, \vec{z}) la surface des indices du cristal RTP et faire apparaître dans ce schéma pour une direction de propagation repérée par l'angle θ les états de polarisation relatifs à chaque onde ainsi que les vecteurs de Poynting, et les angles de double réfraction.

Question 3 :

On rappelle que D et E ne sont pas parallèles en général dans un milieu anisotrope, tout comme Π et k. On a donc $D \cdot E = DE \cos(\rho)$. Démontrer dans le plan (\vec{y}, \vec{z}) l'expression précédente de $\rho_{xz}(\theta, \lambda)$ pour un milieu anisotrope biaxe.

Question 4 :

Tracer, en vue de dessus dans le plan (\vec{y}, \vec{z}) la structure des rayons lumineux (direction de propagation de l'onde de l'énergie et états de polarisation) à l'intérieur de l'échantillon de RTP taillé sous la forme d'un parallélépipède. Que deviennent les deux rayons à la sortie du cristal parallélépipédique?

Question 5 :

Réaliser le même tracé que celui de la question précédente si l'échantillon a maintenant la forme d'un cylindrique. Que deviennent les deux rayons à la sortie du cristal selon si celui-ci est parallélépipédique ou cylindrique ? Y-a-t-il un avantage à utiliser un cristal usiné en cylindre plutôt qu'en parallélépipède ?

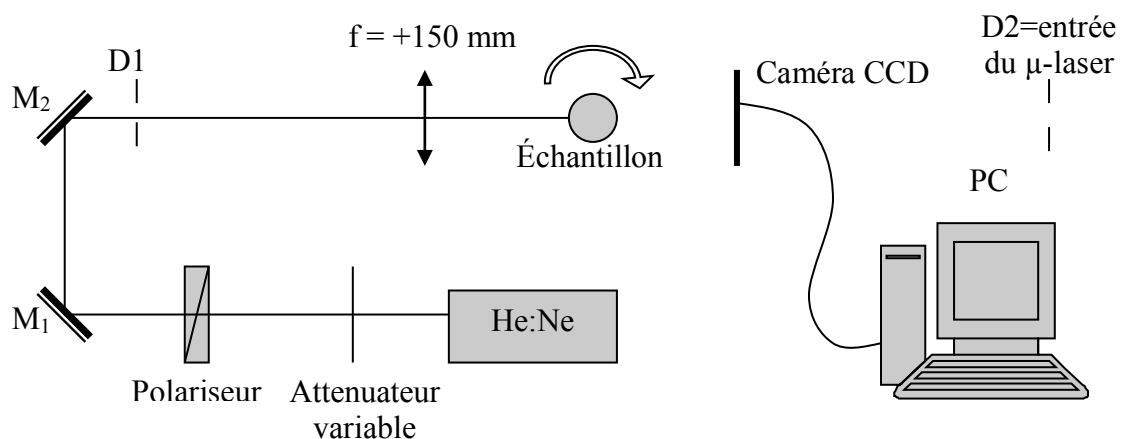
MANIPULATION :

L'objectif de cette première partie est de vous familiariser avec le phénomène de double réfraction. Cette étude se fera sur un cristal de RbTiOPO_4 (RTP). On rappelle qu'il fait partie des matériaux biaxes anisotropes de classe de symétrie d'orientation orthorhombique ($mm2$). Dans ce cas, le repère optique $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ est confondu avec le repère cristallographique $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$.

La source est constituée par un laser He:Ne de longueur d'onde $\lambda=632.8 \text{ nm}$ et qui est polarisé rectilignement à 45° .

Nous allons utiliser dans ce TP la méthode de la sphère que nous utilisons en recherche pour la caractérisation de nouveaux cristaux anisotropes. L'intérêt de la méthode de la sphère, et de sa version cylindrique simplifiée que nous allons utiliser ici, réside dans la géométrie du cristal à l'étude, qui est usiné en forme de cylindre. Ainsi, avec un unique échantillon, toutes les directions de propagation dans le plan du cylindre sont accessibles avec un faisceau laser qui reste en incidence normale.

Le schéma de principe de l'expérience est donné sur la figure suivante.



Un laser He:Ne ($\lambda=632.8 \text{ nm}$) polarisé rectilignement à 45° sert de source ; un polariseur permet d'isoler la composante verticale de celle horizontale de la polarisation rectiligne du faisceau laser. Une lentille de focale $+150 \text{ mm}$ focalise le faisceau à l'entrée de l'échantillon cylindrique qui peut être animé d'une rotation selon son axe. Un écran ou une caméra CCD permettent de visualiser les faisceaux émergents et le phénomène de double réfraction. Deux diaphragmes qui définissent le plan de l'expérience assurent un réalignement rapide du laser en incidence normale sur le cylindre en cas de fausse manœuvre.

La procédure de réglage à respecter est décrite ci-dessous.

ATTENTION :

A chaque action sur le porte échantillons, **le faisceau laser doit être masqué** (écran).

- 1 - S'assurer que le faisceau issu du laser est bien plan (à la même côte), même après les réflexions sur les deux miroirs (utiliser un écran ou un trou comme mire).
- 2 - Centrer le faisceau sur les deux diaphragmes en jouant sur M_1 et M_2 .

- 3 - Repérer sur un écran mobile la position précise du spot après le porte échantillon.
- 4 - Mettre en place la lentille dans son support : le spot doit garder la même position. Faire l'autocollimation de la lentille ainsi centrée (on pourra utiliser une pointe).
- 5 - Régler le polariseur de manière à solliciter de manière équivalente les deux modes de polarisation (voir calculs théoriques).
- 6 - **Avec l'enseignant**, placer l'échantillon cylindrique sur le porte échantillon. Le faire tourner pour bien voir les deux spots, correspondant aux deux vecteurs de Poynting. Jouer sur l'orientation du polariseur pour séparer l'onde « + » de l'onde « - ».
- 7 - Ajuster la focalisation pour que les deux spots soient le plus net possible.
- 8 - Régler le polariseur de manière à ne visualiser que le spot correspondant à l'onde associée à la surface des indices de trace circulaire. Cette onde doit se propager sans double réfraction. Ajuster ainsi (avec l'encadrant) les translations de la tête goniométrique pour centrer le cylindre dans le faisceau. Tourner le polariseur pour voir à nouveau les 2 spots. Le dispositif est désormais réglé.

Question 6 :

Identifier les angles du repère goniométrique qui correspondent aux axes principaux du repère optique (utiliser les schémas des questions 1 et 2). En déduire la position θ_0 de l'axe \vec{z} pour identifier quel axe principal est \vec{y} , et lequel est \vec{z} .

Question 7 :

Trouver la relation entre la distance d séparant les deux spots observés sur l'écran et l'angle ρ_i séparant les deux faisceaux dans le cristal, qui correspond à l'angle de double réfraction ρ^+ (les approximations éventuelles seront à justifier). Cette relation pourra faire intervenir la distance cylindre-écran D (à mesurer avec l'enseignant), le rayon du cylindre r ($=2.725$ mm), et les indices de réfraction du cristal n_x , n_y et n_z (qui sont à calculer pour la longueur d'onde concernée).

La mesure de la distance d s'effectue très précisément par l'intermédiaire d'une barrette CCD reliée à un PC. Cette barrette possède 2048 pixels de $14 \mu\text{m}$ de dimension horizontale. L'image obtenue sur la barrette permet une mesure directe la distance en microns entre les deux maxima d'intensité correspondant aux deux spots.

Question 8 :

Expliquer la forme des spots observés sur la barrette CCD avec ou sans lentille sur le trajet du faisceau. Relever dans un tableau les points $d(\theta)$ pour un quart du plan (\vec{y}, \vec{z}) . θ sera compté par pas de 10° à partir de θ_0 qui pourra être initialisé à zéro si l'axe y a été discerné de l'axe z . Proposer une méthode pour y arriver.

Un programme Excel permet de faire facilement la transposition entre d et ρ_i . Ce même programme trace simultanément la courbe théorique déduite de la formule donnée page 9. Dans le programme il faut introduire θ_0 qui donne l'orientation relative entre le repère optique et le repère goniométrique. Un raccourci du programme est situé dans le bureau du PC et se nomme « TP-ISTG-SCIGMA3.xls ».

Question 9 :

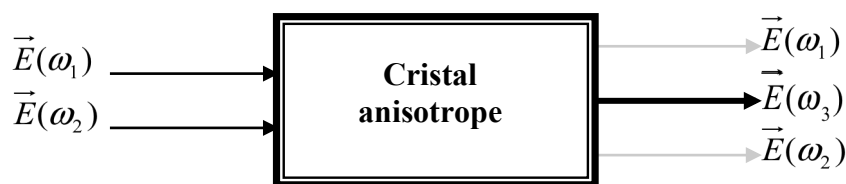
En jouant sur le paramètre θ_0 , vérifiez si vous obtenez un meilleur ajustement entre vos points et la courbe théorique. Critiquer les résultats obtenus.

PARTIE II : OPTIQUE NON LINEAIRE - CONVERSION DE FREQUENCE

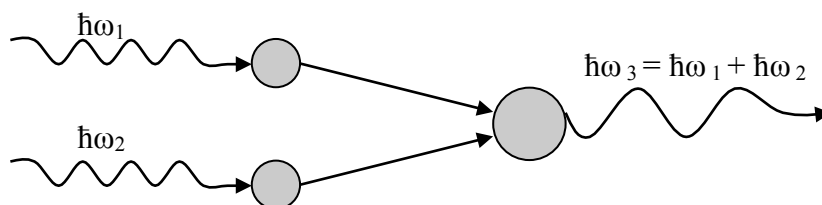
Les sources laser actuelles ne permettent pas de générer toute la gamme spectrale des ondes électromagnétiques. Il est donc nécessaire de réaliser de nouvelles sources laser émettant en particulier dans un domaine allant de l'ultraviolet ($0,2 \mu\text{m}$) à l'infrarouge moyen ($20 \mu\text{m}$). Les applications visées sont très variées : le contrôle de l'atmosphère, la médecine ou la télémétrie par exemple.

Il est possible de convertir la fréquence optique des sources laser actuelles, et ainsi d'étendre leur gamme spectrale, en les associant à des cristaux qui permettent un effet optique non linéaire. Ce phénomène a été découvert en 1961 ; parmi les différents effets possibles, l'effet paramétrique optique s'est distingué en permettant de créer un nouveau type de source laser tout solide appelée Oscillateur Paramétrique Optique (OPO), dont l'intérêt majeur de permettre la génération d'un rayonnement laser accordable en longueur d'onde à partir d'un seul rayonnement laser monochromatique.

Les couplages paramétriques optiques sont des interactions de somme ou différence de fréquences dans un cristal anisotrope qui impliquent le plus souvent trois ondes, les couplages à quatre ondes étant beaucoup moins efficaces. Ainsi, deux ondes incidentes de pulsation ω_1 et ω_2 et de vecteur d'onde \vec{k}_1 et \vec{k}_2 interagissent dans le cristal en induisant une polarisation $\vec{P}(\omega_3)$ à la pulsation $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$, qui rayonne à son tour une troisième onde à la même pulsation ω_3 , de vecteur d'onde \vec{k}_3 . Il y a donc trois champs $\vec{E}(\omega_1)$, $\vec{E}(\omega_2)$ et $\vec{E}(\omega_3)$ qui se propagent simultanément dans le cristal, ce qui peut être schématisé de la façon suivante :



Du point de vue corpusculaire, il ne faut pas craindre de parler de *fusion de photons*. La conservation de l'énergie est naturellement vérifiée, puisque $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$.



La modélisation de ce phénomène est aisée lorsque la densité de puissance du champ électrique excitateur est faible devant celle du champ électrique interne de l'atome ou de la molécule ; la polarisation peut alors être développée en puissances du champ électrique excitateur. Dans nos conditions expérimentales, la densité de puissance des ondes laser est de l'ordre 10^{12} Watt/m^2 . A titre de comparaison, la densité de puissance du champ intra-atomique assurant le lien entre électrons et noyaux est de l'ordre de 10^{17} Watt/m^2 .

La polarisation s'écrit donc : $\vec{P} = \vec{P}^{(1)} + \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \dots$

où $\vec{P}^{(1)}$ représente la polarisation linéaire impliquée dans la première partie de ce TP, et les termes d'ordres supérieurs représentent la polarisation non linéaire $\vec{P}^{(NL)} = \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \dots$. Dans les cristaux non centrosymétriques, la polarisation d'ordre 2 (qui correspond au terme non linéaire d'ordre le plus bas) est non nulle, et les autres ordres du développement seront négligés devant cette contribution. La polarisation à la pulsation ω_3 s'écrit donc :

$$\vec{P}(\omega_3) = \epsilon_0 \cdot \left\{ \chi^{(1)}(\omega_3) \cdot \vec{E}(\omega_3) + \chi^{(2)}(\omega_3) \bullet \vec{E}(\omega_1) \otimes \vec{E}(\omega_2) \right\}$$

où \bullet représente le produit contracté et \otimes le produit tensoriel.

$\chi^{(1)}$ est le tenseur de susceptibilité électrique linéaire introduit dans la première partie de ce TP. $\chi^{(2)}$ est le tenseur de susceptibilité électrique d'ordre 2, qui est un tenseur de rang 3 (contenant 27 éléments). La génération du second harmonique correspond au cas où $\omega_1 = \omega_2 (= \omega)$, soit $\omega_3 = 2\omega$. C'est ce qui fera l'objet de l'étude réalisée dans ce TP.

Le champ d'approximation que nous utiliserons pour modéliser la propagation en régime non linéaire est le suivant : les trois ondes en interaction ont leurs vecteurs d'onde colinéaires, l'absorption est négligée, de même que la diffraction, la double réfraction et la dispersion des vitesses de groupe. Dans ce cadre, le système d'équations différentielles couplées régissant l'évolution de l'amplitude complexe des champs électriques des ondes en interaction s'écrit :

$$\begin{cases} \frac{\partial E_1}{\partial Z} = j \frac{\pi \cdot \chi_{eff}}{n_1 \cdot \lambda_1} E_3 E_2^* e^{j \Delta k \cdot Z} \\ \frac{\partial E_2}{\partial Z} = j \frac{\pi \cdot \chi_{eff}}{n_2 \cdot \lambda_2} E_3 E_1^* e^{j \Delta k \cdot Z} \\ \frac{\partial E_3}{\partial Z} = j \frac{\pi \cdot \chi_{eff}}{n_3 \cdot \lambda_3} E_1 E_2 e^{-j \Delta k \cdot Z} \end{cases}$$

- Les indices $i = \{1, 2, 3\}$ sont relatifs aux pulsations ω_1, ω_2 et ω_3 , avec $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$; la pulsation est reliée à la longueur d'onde par : $\omega_i = \frac{2\pi c}{\lambda_i}$.
- (X,Y,Z) est le repère du laboratoire où Z est selon la direction de propagation des 3 ondes. ATTENTION : ce repère n'est en général pas confondu avec le repère optique (x,y,z) donné précédemment.
- E_i est l'amplitude complexe du champ électrique de pulsation ω_i .
- $\Delta k \cdot Z$ est le déphasage entre la polarisation non linéaire et le champ rayonné : $\Delta k = k_3 - (k_1 + k_2)$ où k_i est le vecteur d'onde relatif à l'onde i : $k_i = (\omega_i/c)n_i$.
- χ_{eff} est appelé le coefficient effectif.

Ce coefficient χ_{eff} peut être défini comme le produit scalaire normé aux amplitudes des champs de la polarisation non linéaire à ω_3 et du champ rayonné à ω_3 :

$$\chi_{eff} = \frac{\vec{P}^{NL}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2) \cdot \vec{E}(\omega_3)}{E_1 E_2 E_3} \text{ où } E_i \text{ représente l'amplitude du champ à } \omega_i.$$

Dans le champ d'approximation qui a été choisi, les deux seules grandeurs qui gouvernent le couplage non linéaire sont donc Δk et χ_{eff} : Δk dépend uniquement des propriétés optiques linéaires *via* les indices de réfraction ; χ_{eff} est fonction non seulement des propriétés optiques linéaires mais également des propriétés optiques non linéaires de second ordre.

Dans le cas général, l'établissement d'une formule analytique pour la puissance générée par un processus de conversion de fréquence est complexe, et fait notamment appel à des fonctions elliptiques de Jacobi. Mais le contexte expérimental qui nous occupe ici autorise un certain nombre d'approximations. Le rendement de conversion étant très faible, l'effet de l'interaction sur le faisceau incident est négligé : c'est l'approximation dite « de la pompe non dépeuplée ». En tenant compte des autres hypothèses retenues, l'intégration du système d'équations couplées peut se faire analytiquement, et la puissance générée par une interaction de type somme de fréquences se met sous la forme :

$$P(\omega_3, Z=L) \propto P(\omega_1, 0) \cdot P(\omega_2, 0) \chi_{\text{eff}}^2 \cdot L^2 \cdot \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k \cdot L}{2}\right)$$

où $P(\omega_1, 0)$ et $P(\omega_2, 0)$ sont les puissances incidentes à ω_1 et ω_2 ,
 L est la longueur d'interaction considérée,
 χ_{eff} est le coefficient effectif,
 sinc représente la fonction sinus cardinal,
 $\Delta k \cdot L$ est le terme de phase : $\Delta k = k_3 - (k_1 + k_2)$, avec k_i vecteur d'onde à ω_i .

Notons que l'intégration du système d'équations couplées est indépendante du temps car la dispersion des vitesses de groupe a été négligée. Ainsi l'expression ci-dessus correspond à la puissance instantanée $P(\omega_3, L, t)$ dans le cas de faisceaux impulsionnels.

Le paramètre Δk conditionne donc la dépendance longitudinale de la puissance générée à ω_3 comme le montre l'équation ci-dessus et les courbes de la figure 11.

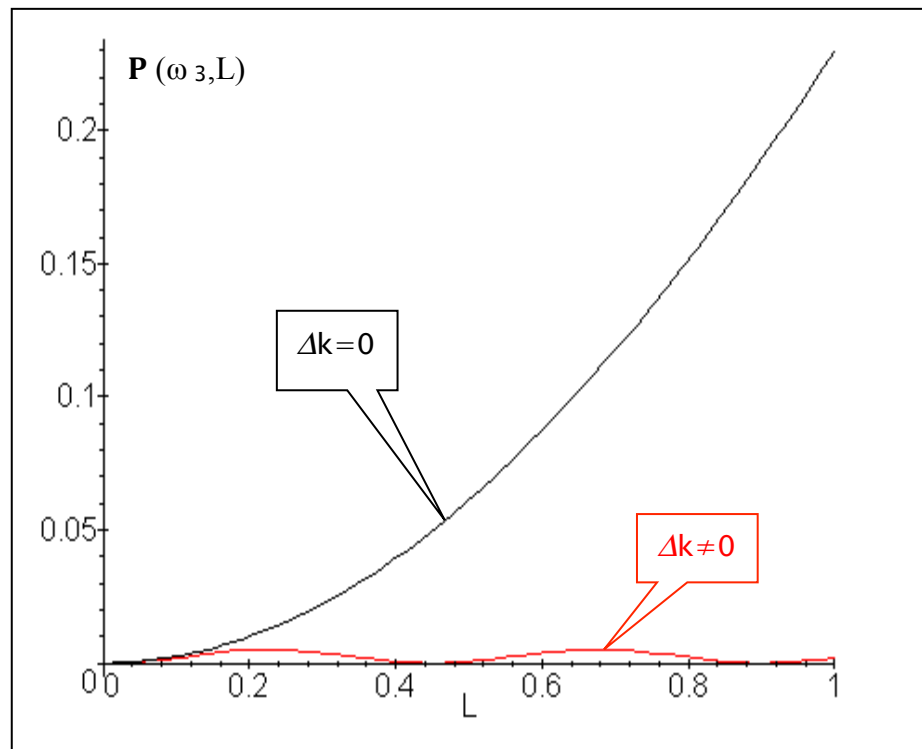


FIGURE 11

- Pour $\Delta k \neq 0$, la dépendance en L de la puissance à ω_3 varie en $\sin^2(\Delta k.L/2)$: ainsi l'interférence entre la polarisation non linéaire $\vec{P}^{NL}(\omega_3, Z)$ et le champ rayonné $\vec{E}(\omega_3, Z)$ est alternativement constructive puis destructive avec une période égale à $2L_c$, où $L_c = \pi/\Delta k$. Compte tenu de la dispersion en longueur d'onde des indices de réfraction des milieux isotropes classiquement utilisés, L_c a des valeurs maximales comprises entre 1 μm , dans l'ultraviolet, et 100 μm , dans l'infrarouge moyen. Cette situation, appelée « hors accord de phase », conduit à des rendements de conversion périodiques et qui restent extrêmement faibles. Ce cas n'est donc absolument pas intéressant pour les applications.
- Pour $\Delta k = 0$, la polarisation non linéaire et le champ rayonné restent en phase tout au long de la propagation dans le cristal : l'interférence est alors constructive et la puissance de l'onde générée varie en L^2 . Ainsi dans le cadre de l'approximation choisie, il y a transfert d'énergie de la polarisation non linéaire au champ rayonné tout au long de la propagation. Dans ce cas, appelé « en accord de phase », le rendement de conversion peut atteindre des valeurs importantes ; l'approximation de la pompe non dépeuplée (stipulée pour les calculs précédents) devient caduque lorsque $\frac{P(\omega_3, Z=L)}{P(\omega_3, Z=0)} \geq 5\%$. Cette approximation restera cependant valide dans le cadre du TP, pour lequel le rendement attendu est de l'ordre de quelques 10^{-6} ...

L'efficacité de l'interaction sera donc maximale (à coefficient effectif donné) pour une interaction en accord de phase. Au niveau corpusculaire, cela correspond à la conservation de la quantité de mouvement des photons mis en jeu, qui s'écrit pour une interaction colinéaire à trois ondes : $\Delta k=0$ i.e. $k_3 = k_1 + k_2$ ou $\frac{n_3}{\lambda_3} = \frac{n_1}{\lambda_1} + \frac{n_2}{\lambda_2}$. La conservation de l'énergie, qui s'écrit $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ ou $\frac{1}{\lambda_3} = \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2}$, est naturellement vérifiée lors de l'interaction.

Les deux relations de conservation précédentes, combinées à la dispersion naturelle de tous les matériaux, conduisent au système suivant (on pose par convention $\omega_2 > \omega_1$) :

$$\begin{cases} \omega_3 > \omega_2 > \omega_1 \\ n_3 > n_2 > n_1 \\ n_3 \cdot \omega_3 = n_1 \cdot \omega_1 + n_2 \cdot \omega_2 \\ \omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \end{cases}$$

Compte tenu de la dispersion $n(\lambda)$, inéluctable dans tous les matériaux, les matériaux isotropes ne peuvent satisfaire à ce système. Pour vérifier simultanément ces quatre relations, l'alternative classique consiste à utiliser les propriétés des matériaux anisotropes, avec une onde générée correspondant à l'indice $n^-(\omega_3)$ (nappe **interne**) : la biréfringence peut alors compenser la dispersion, l'une des ondes incidentes (voire les deux) devant correspondre à l'indice n^+ (nappe **externe**).

Il est possible de montrer que, pour un triplet fixé de pulsations ($\omega_3, \omega_1, \omega_2$), l'accord de phase n'est vérifiée dans un milieu anisotrope que pour certaines directions de propagation particulières. Ces directions associent à chacune des trois ondes l'état de polarisation correspondant à la nappe de la surface des indices sollicitée. Le tableau 4 ci-dessous résume les différentes possibilités :

Configuration	Polarisation $\omega_1/\omega_2/\omega_3$	Appellation
$n_3^-. \omega_3 = n_1^+. \omega_1 + n_2^+. \omega_2$	- / + / +	Type I
$n_3^-. \omega_3 = n_1^-. \omega_1 + n_2^+. \omega_2$	- / - / +	Type II
$n_3^-. \omega_3 = n_1^+. \omega_1 + n_2^-. \omega_2$	- / + / -	Type III

TABLEAU 4

Nous considérerons dans ce TP uniquement la génération de second harmonique (SHG) qui correspond à $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ et $\omega_3 = 2\omega$. Dans ce cas les types II et III sont équivalents. Nous utiliserons un laser Nd:YAG qui émet à 1064 nm. Cela correspond à la longueur d'onde des deux ondes incidentes (longueur d'onde fondamentale), la longueur d'onde du signal généré est donc attendue à 532 nm (longueur d'onde du second harmonique). Les directions d'accord de phase calculées pour le plan (\vec{y}, \vec{z}) du matériau RTP sont données dans la figure 12 en fonction de la longueur d'onde fondamentale.

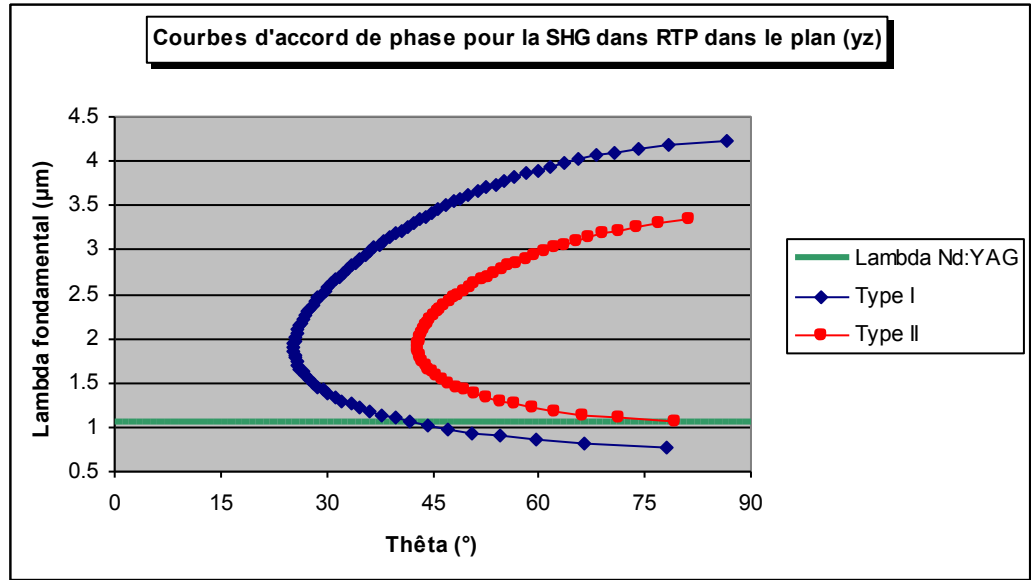


FIGURE 12

L'accord de phase semble donc possible pour les deux types I et II. Cependant, lorsque l'accord de phase est vérifié, il faut encore que le coefficient effectif χ_{eff} ne soit pas nul pour que la génération puisse être réalisée. Or, le coefficient effectif dépend de la direction de propagation, de la configuration de polarisation des ondes et des coefficients du tenseur de susceptibilité diélectrique non linéaire d'ordre 2. Pour le cas du plan (\vec{y}, \vec{z}) de RTP, les calculs donnent les valeurs suivantes :

$$\chi_{\text{eff}}^{\text{Type I}} = 0 ;$$

$$\chi_{\text{eff}}^{\text{Type II}} = \sin(\theta) \cdot \chi_{15}^{(2)}, \text{ où } \chi_{15}^{(2)} \text{ est un des éléments non nuls du tenseur } \chi^{(2)}.$$

Ainsi, nous ne pourrions réaliser dans ce TP que de la SHG de type II dans le plan (\vec{y}, \vec{z}) pour le cristal RTP. Cette interaction combine l'accord de phase avec un coefficient effectif associé non nul dans la direction considérée ; elle promet donc d'être efficace.

Dans cette deuxième partie, nous vous proposons de retrouver les dépendances de la puissance générée en fonction de la puissance incidente d'une part, et du terme de phase Δk d'autre part.

ÉTUDE PRELIMINAIRE

L'objectif de cette seconde partie est de vous faire étudier la génération du second harmonique. Nous réaliserons pour cela une interaction de type II dans le plan (\vec{y}, \vec{z}) de RTP, avec le même échantillon que pour la première partie. Là encore, la géométrie cylindrique est très utile. Elle permet de solliciter en incidence normale toutes les directions de propagation dans le plan du cylindre.

Le schéma de l'expérience est donné sur la figure 13.

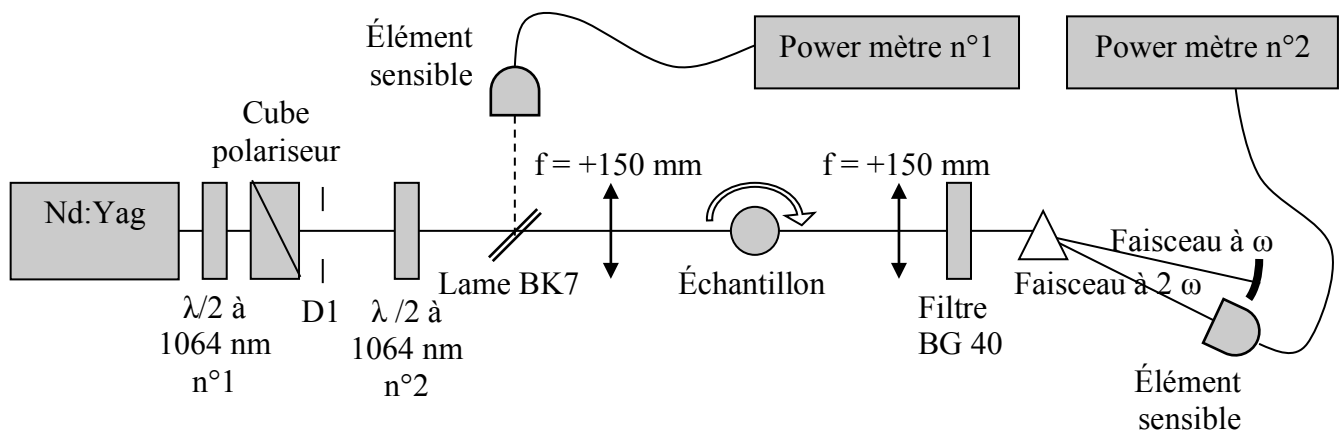


FIGURE 13

Un laser Nd:Yag ($\lambda=1064$ nm) impulsionnel polarisé verticalement sert de source, dont la puissance est modulable par l'ensemble {lame $\lambda/2$ n°1 - cube polariseur} et mesurée par le power mètre n°1 ; une seconde lame $\lambda/2$ permet de faire tourner la direction de polarisation incidente qui reste rectiligne. Une lentille de focale +150 mm focalise le faisceau à l'entrée de l'échantillon cylindrique qui peut être animé d'une rotation. Un filtre puis un prisme séparent les deux composantes chromatiques en sortie d'échantillon. Le faisceau correspondant au second harmonique est capté par un élément sensible qui permet une mesure de la puissance générée.

Dans ce TP, la relation d'accord de phase correspondant à l'interaction étudiée est :

$$2\omega \cdot \vec{n}_{(2\omega, \theta)} = \omega \cdot \vec{n}_{(\omega, \theta)} + \omega \cdot \vec{n}_{(\omega, \theta)}, \quad \text{soit} \quad \vec{n}_{(2\omega, \theta)} = \frac{\vec{n}_{(\omega, \theta)} + \vec{n}_{(\omega, \theta)}}{2}. \quad \text{La pulsation } \omega \text{ correspond ici à la pulsation fondamentale du laser Nd:Yag : } \omega_1 = \omega_2 = \omega \text{ et } \omega_3 = 2\omega.$$

Question 7 :

En reprenant le graphe de la question 1, déterminer quelles sont les polarisations associées à chaque onde (1, 2 et 3). Tracer le schéma de l'expérience. Calculer la direction (angle θ) pour laquelle on a une SHG de type II.

MANIPULATION :

Rappelons qu'une lame $\lambda/2$, ou demi-onde, est un milieu uniaxe dans lequel la propagation a lieu dans le plan (\vec{x}, \vec{y}) (selon l'axe (Ox) par exemple). La lame peut tourner autour de l'axe de propagation, ce qui modifie la position de la polarisation incidente par rapport aux vecteurs des champs ordinaire et extraordinaire pouvant se propager dans le milieu. Une ligne neutre correspond à une position de la lame pour laquelle la polarisation incidente n'est pas modifiée par la traversée. L'épaisseur de la lame $\lambda/2$ est telle que le déphasage introduit entre les ondes ordinaire et extraordinaire entre l'entrée et la sortie soit un multiple impair de π , soit $(n_e - n_o) \cdot \text{épaisseur} = (2k + \frac{1}{2}) \cdot \lambda$. Il est clair que la lame classique n'est demi-onde que pour une longueur d'onde donnée !

Question 8 :

On a ajusté la lame $\lambda/2$ n°2. On donne la ligne neutre de la lame $\lambda/2$ n°2 sur la monture. Vérifier qu'elle est bien réglée pour réaliser une SHG de type II.

Le faisceau fondamental correspond à une longueur d'onde de 1064 nm, donc invisible à l'œil. De plus, la puissance crête de l'émission laser Nd:YAG est très importante (environ 12 kW). Il est donc **impératif de porter des lunettes protectrices adaptées pendant toute la durée de la manipulation.**

La procédure de réglage à respecter est décrite ci-dessous.

- 1 - Sans échantillon, vérifier le bon recouvrement des faisceaux Nd:YAG et He:Ne. Couper ensuite le faisceau Nd:YAG.
- 2 - Repérer sur un écran la position précise du spot He:Ne au niveau de la lame de verre.
- 3 - Mettre en place la seconde lentille dans son support : le spot doit garder la même position. Faire l'autocollimation de la lentille ainsi centrée. Couper le faisceau He:Ne.
- 4 - **Avec l'encadrant**, placer l'échantillon cylindrique sur le porte échantillons. Rechercher approximativement la direction d'accord de phase.
- 5 - Ajuster l'alignement : le faisceau généré doit se propager en ligne droite.
- 6 - Mettre en place le prisme et le filtre. Voir avec l'encadrant quel est le réglage optimal.
- 7 - Placer l'élément sensible du power mètre n°2 pour assurer de bonnes mesures.
- 8 - Ajuster la focalisation pour obtenir le maximum de génération. Le dispositif est désormais réglé.

Question 9 :

Rechercher précisément l'angle du repère goniométrique qui correspond à l'accord de phase. Connaissant l'angle entre les repères optique et goniométrique (question 6), comparer cette valeur à celle donnée par les courbes de la figure 12 et par le calcul théorique.

Question 10 :

En se plaçant à un accord de phase, relever la courbe qui donne la puissance générée à 532 nm en fonction de la puissance totale incidente à 1064 nm, dont la variation est obtenue à l'aide de la lame n°1. Vérifier la forme quadratique attendue.