

THESE DE DOCTORAT

présentée à
L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNIQUES DE LILLE FLANDRES ARTOIS

pour obtenir le titre de
DOCTEUR EN PHYSIQUE

par
Olivier FAUCHER

GENERATION DE RAYONNEMENT COHERENT DANS L'ULTRA-VIOLET DU VIDE PAR TRIPLEMENT DE FREQUENCE EN JET LIBRE SUPERSONIQUE CONTINU D'AZOTE : ETUDE QUANTITATIVE DES PHENOMENES DE RESONANCE



Soutenu le 21 Janvier 1991 devant la Commission d'Examen

Membres du Jury :

M.	B. MACKE	Professeur - Lille I	<i>Président</i>
Mme	S. LE BOITEUX	Chargée de Recherche CNRS - Paris IX	<i>Rapporteurs</i>
M.	F. AGUILLON	Maître de Conférences- Paris VI	
M.	P. GLORIEUX	Professeur - Lille I	
M.	R. CAMPARGUE	Directeur de Laboratoire - CEA Saclay	<i>Examineurs</i>
M.	P. HERZBERGER	Administrateur Principal à la CEE - Luxembourg	
M.	F. ROSTAS	Directeur de Recherche CNRS - Observatoire de Paris	
M.	J. SCHAMPS	Professeur - Lille I	

A mes parents

A ma soeur

Ce travail est le fruit d'une collaboration entre le Laboratoire de Spectroscopie Moléculaire de l'Université de Lille I et le Laboratoire des Jets Moléculaires du C.E.A. Saclay. Les expériences décrites dans ce mémoire de thèse ont été réalisées au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay.

J'éprouve une profonde reconnaissance envers *François AGUILLON*, chercheur dans l'âme, pédagogue à l'extrême et ami de surcroît, qui s'est toujours montré disponible, sans qui ce travail n'aurait pu voir le jour. Il a su jouer avec talent et opportunité le rôle du critique amical, insatisfait, voire décourageant, dans mes meilleures périodes et comblé, réconfortant, dans mes plus mauvais moments.

Roger CAMPARGUE, Chef du Laboratoire des Jets Moléculaires, a fait montre d'un intérêt constant à l'égard de mes travaux. Il a su faire en sorte que ce sujet de recherche se déroule dans les meilleures conditions de moyens, de confort et d'efficacité. Qu'il soit assuré de ma profonde gratitude.

J'adresse mes plus vifs remerciements à *Joël SCHAMPS*, Directeur du Laboratoire de Spectroscopie Moléculaire, pour avoir su me faire profiter de ses multiples compétences lors de nos nombreuses discussions scientifiques où humour et envolées littéraires étaient de rigueur.

Je suis très honoré que le Professeur *Bruno MACKÉ* ait accepté la présidence du jury de Thèse. Qu'il en soit remercié sincèrement.

Merci à *Sylvie LE BOITEUX* et *Pierre GLORIEUX* du vif intérêt qu'ils m'ont manifesté tout au long de la rédaction de ce manuscrit. Je suis très flatté qu'ils aient accepté de rapporter sur ce travail.

Je suis très touché par la présence de *Peter HERZBERGER* et de *François ROSTAS* au sein du jury. Je les en remercie vivement.

Je voudrais également remercier tout particulièrement *Alain LEBEHOT* de l'aide très précieuse qu'il m'a apportée durant ces trois années, aussi bien lors de la réalisation des expériences que durant la phase de rédaction.

Je ne peux oublier dans mes remerciements *Sylvie LE BOITEUX*, déjà citée, *Yannick LEFEBVRE* et *Marc DOUAY* qui m'ont apporté leur collaboration pour réaliser une expérience ayant pour but de générer un rayonnement cohérent et continu, accordable en fréquence dans le domaine de l'ultra-violet du vide, par génération de troisième harmonique. Malgré le concours expert de *Sylvie LE BOITEUX*, la qualité et l'efficacité du travail réalisé par *Marc DOUAY* et les nombreux efforts

que *Yannick LEFEBVRE* a consacré à la mise en oeuvre de cette expérience très délicate, le projet a dû être interrompu en cours de réalisation.

Je suis ravi des relations très amicales que j'ai entretenues avec bon nombre des membres du Laboratoire de Spectroscopie Moléculaire. Je sais qu'ils se reconnaîtront dans ces quelques lignes. Je tiens tout particulièrement à remercier *Brigitte POUILLY* qui, bien que travaillant sur des sujets en dehors des miens, a toujours oeuvré dans le sens d'une amélioration de mon travail avec toute la gentillesse et le dévouement qui la caractérisent.

Un grand merci à *Stefan DRAWIN*, *Pierre ASSELIN* et *Constantin MEIS*, anciens membres du Laboratoire des Jets Moléculaires, pour les rapports de sympathie et les discussions fructueuses que nous avons eus ensemble.

J'exprime ma sincère gratitude à *Marie Thérèse LEDEE* pour avoir largement contribué à la dactylographie de ce manuscrit et supporté avec grande patience mon perfectionnisme capricieux.

Enfin, j'adresse toute ma sympathie à l'équipe du Laboratoire d'Optique Atmosphérique qui m'a si généreusement permis d'utiliser son matériel micro-informatique.

TABLE DES MATIERES

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION	p. 13
<u>CHAPITRE I</u> : Notions générales sur l'optique non-linéaire	p. 19
I 1 EQUATIONS DE MAXWELL	p. 23
I 2 RELATIONS CONSTITUTIVES DU MILIEU	p. 26
I 2.1 Cas général	p. 26
I 2.2 Réponse stationnaire	p. 29
I 2.3 Composantes spectrales de la polarisation	p. 30
I 3 EQUATIONS DE PROPAGATION DANS UN MILIEU NON LINEAIRE	p. 32
I 4 PROCESSUS CARACTERISTIQUES DE L'OPTIQUE NON LINEAIRE	p. 37
I 4.1 Facteur de dégénérescence et amplitude de polarisation	p. 38
I 4.2 Optique linéaire	p. 39
I 4.3 Optique non linéaire d'ordre deux	p. 40
I 4.4 Optique non linéaire d'ordre trois	p. 41
I 5 PROPRIETES DU TENSEUR DES SUSCEPTIBILITES	p. 42
I 5.1 Relations de symétrie	p. 42
I 5.2 Tenseur des susceptibilités en milieu centosymétrique	p. 46
I 5.3 Influence de la polarisation du laser	p. 47
I 6 CONCLUSION	p. 48

<u>CHAPITRE II</u> : Susceptibilités électroniques	p. 49
II 1 DESCRIPTION SEMI-QUANTIQUE	p. 53
II 2 EQUATION DE LIOUVILLE	p. 55
II 3 SOLUTIONS STATIONNAIRES	p. 57
II 3.1 Perturbation limitée à l'ordre 3	p. 58
II 3.2 Susceptibilité linéaire	p. 62
II 3.3 Susceptibilité harmonique d'ordre 3	p. 64
II 3.4 Interprétation qualitative	p. 66
II 4 AMPLIFICATION PAR RESONANCE	p. 71
II 4.1 Résonance à un photon	p. 72
II 4.2 Résonance à deux photons	p. 73
II 4.3 Résonance à trois photons	p. 73
II 4.4 Discussion	p. 74
II 4.5 Domaine de validité de l'approximation stationnaire	p. 76
II 5 EFFETS LIES A LA LARGEUR SPECTRALE DU LASER	p. 78
II 5.1 Résonance à deux photons	p. 79
II 5.1.1 La molécule et ses moments de transition	p. 79
II 5.1.2 L'opérateur densité dépendant du temps	p. 80
II 5.1.3 Equations de Bloch	p. 81
II 5.1.4 Polarisation induite	p. 88
II 5.1.5 Retour vers l'approximation stationnaire	p. 89
II 5.1.6 Susceptibilité équivalente	p. 91
II 5.1.7 Etude aux cas limites	p. 98
II 5.1.7.1 Conversion non-résonnante	p. 98
II 5.1.7.2 Conversion en milieu à élargissement inhomogène	p. 99
II 5.1.7.3 Conversion en milieu à élargissement homogène	p. 100
II 5.2 Résonance à trois photons	p. 101

II 6 LA SUSCEPTIBILITE EN JET SUPERSONIQUE	p. 103
II 7 CONCLUSION	p. 107
<u>CHAPITRE III</u> : Les jets supersoniques	p. 109
III 1 LE PRINCIPE DES JETS	p. 113
III 1.1 La source effusive	p. 114
III 1.2 Les jet libre supersonique	p. 116
III 1.2.1 Les générateurs "basse pression"	p. 118
III 1.2.1.1 Le jet continu	p. 118
III 1.2.1.2 Le jet pulsé	p. 119
III 1.2.2 Le générateur "haute pression"	p. 120
III 2 STRUCTURE ET GRANDEURS CARACTERISTIQUES DU JET LIBRE	p. 123
III 2.1 Détente isentropique d'un gaz parfait	p. 124
III 2.1.1 Equations régissant l'écoulement	p. 124
III 2.1.2 Nombre de Mach et grandeurs caractéristiques	p. 126
III 2.2 Ecoulement en jet libre supersonique	p. 130
III 3 LE JET IDEAL ET LE JET REEL	p. 132
III 3.1 Echanges d'énergie entre le jet et la tuyère	p. 133
III 3.2 Interactions entre le jet et le gaz résiduel	p. 133
III 3.3 Ecart à l'équilibre thermodynamique	p. 135
III 4 LE JET SUPERSONIQUE DE NOTRE EXPERIENCE	p. 137

CHAPITRE IV : Adaptation de phase	p. 139
IV 1 ADAPTATION DE PHASE EN MILIEU HOMOGENE ET ISOTROPE	p. 143
IV 1.1 Modèle de l'onde plane	p. 144
IV 1.1.1 Description des champs	p. 144
IV 1.1.2 Equation de propagation	p. 145
IV 1.1.3 Faibles taux de conversion	p. 146
IV 1.1.4 Forts taux de conversion	p. 149
IV 1.2 Triplement de fréquence en faisceau gaussien TEM_{00}	p. 151
IV 1.2.1 Expression de l'onde harmonique	p. 151
IV 1.2.2 Expression de la puissance harmonique	p. 164
IV 1.2.3 Facteur d'adaptation de phase : faisceau faiblement focalisé	p. 164
IV 1.2.4 Facteur d'adaptation de phase : faisceau fortement focalisé	p. 167
IV 1.2.5 Facteur d'adaptation de phase : cas général	p. 169
IV 1.3 Triplement de fréquence en faisceau gaussien de mode d'ordre élevé	p. 170
IV 1.3.1 Expression du champ harmonique	p. 171
IV 1.3.2 Puissance harmonique et facteur d'adaptation de phase	p. 173
IV 1.3.3 Régime de faible focalisation	p. 175
IV 1.3.4 Régime de forte focalisation	p. 177
IV 1.3.5 Cas général	p. 178
IV 1.4 Le facteur d'adaptation de phase dans le cas d'un laser hautement multimode	p. 179
IV 2 ADAPTATION DE PHASE EN MILIEU INHOMOGENE	p. 182
IV 2.1 Etudes antérieures	p. 184
IV 2.2 Triplement de fréquence dans la "zone de silence" d'un jet supersonique continu	p. 186
IV 3 CONCLUSION	p. 194

<u>CHAPITRE V : Dispositif expérimental</u>	p. 197
V 1 LA CHAINE LASER	p. 201
V 1.1 Laser pulsé ND:YAG	p. 203
V 1.2 Laser à colorant	p. 205
V 1.3 Asservissement du doubleur de fréquence	p. 209
V 1.4 Séparation et focalisation du faisceau UV	p. 210
V 2 LE JET SUPERSONIQUE	p. 211
V 2.1 Générateur "haute pression"	p. 211
V 2.2 Système de pompage	p. 213
V 3 LA DETECTION ET LE TRAITEMENT DU SIGNAL	p. 214
<u>CHAPITRE VI : Etude expérimentale</u>	p. 219
VI 1 ETALONNAGE DES ENREGISTREMENTS	p. 223
VI 1.1 Principe	p. 223
VI 1.2 Discussion	p. 225
VI 2 RENDEMENT DE CONVERSION ET FACTEUR DE MERITE	p. 225
VI 3 ATLAS DE SPECTRES DE TRIPLEMENT DE FREQUENCE	p. 226
VI 4 LES QUALITES ET LES AVANTAGES DU JET SUPERSONIQUE DANS LES EXPERIENCES DE CONVERSION DE FREQUENCES	p. 245

<u>CHAPITRE VII</u> : Diagnostic sur la détente du jet libre	
Supersonique	p. 249
VII 1 MESURE DE LA DENSITE D'ETAT	p. 253
VII 1.1 Choix et nature de la transition résonnante	p. 253
VII 1.2 Spectre de resonance à deux photons	p. 255
VII 1.3 Mesure de la densité d'état du niveau rotationnel $J=0$	p. 259
VII 1.3.1 Facteur d'adaptation de phase	p. 263
VII 1.3.2 Résultats	p. 265
VII 2 MESURE DE LA DENSITE TOTALE	p. 265
VII 3 DISTRIBUTION ROTATIONNELLE	p. 268
VII 3.1 Principe de la mesure	p. 268
VII 3.2 Dépendance rotationnelle de la susceptibilité non-linéaire	p. 270
VII 3.3 Facteur d'adaptation de phase	p. 271
VII 4 RESULTATS ET DISCUSSION	p. 273
VII 4.1 Ecart à l'équilibre - résultats antérieurs	p. 273
VII 4.2 Modèle de la détente isentropique	p. 274
VII 4.3 Distribution rotationnelle mesurée	p. 275
VII 4.4 Densités mesurées	p. 281
VII 5 CONCLUSION	p. 283
<u>CHAPITRE VIII</u> : Etude de la résonance à trois photons et de	
la saturation par autoabsorption	p. 285
VIII 1 INTERPRETATION QUALITATIVE	p. 291
VIII 1.1 Facteur régissant la conversion	p. 291

VIII 1.1.1	Facteur de création	p. 291
VIII 1.1.2	Facteur d'adaptation de phase	p. 292
VIII 1.1.3	Facteur de transmission	p. 295
VIII 1.2	Système à deux niveaux	p. 296
VIII 1.2.1	Cas d'un milieu peu absorbant	p. 297
VIII 1.2.2	Cas d'un milieu fortement absorbant	p. 297
VIII 1.3	Système moléculaire	p. 300
VIII 1.3.1	Etude à ΔK non-résonnant nul	p. 301
VIII 1.3.1.1	Milieu faiblement absorbant	p. 301
VIII 1.3.1.2	Milieu fortement absorbant	p. 301
VIII 1.3.2	Etude à ΔK non-résonnant non-nul	p. 305
VIII 1.3.2.1	Milieu faiblement absorbant	p. 305
VIII 1.3.2.2	Milieu fortement absorbant	p. 305
VIII 1.3.3	Conditions d'amplification et de saturation	p. 306
VIII 2	INTERPRETATION QUANTITATIVE	p. 307
VIII 2.1	Construction du modèle théorique	p. 307
VIII 2.1.1	Approximations adoptées	p. 307
VIII 2.1.2	Equation de propagation en milieu absorbant	p. 309
VIII 2.1.3	Description du calcul	p. 311
VIII 2.1.3.1	Expression des termes α_h et ΔK	p. 311
VIII 2.1.3.2	Expression du terme $\chi^{(3)}(3\omega)$	p. 313
VIII 2.1.3.3	Expression des quantités N_{j_f} et L	p. 315
VIII 2.2	Résultats	p. 315
VIII 3	CONCLUSION	p. 326
	CONCLUSION	p. 327
	REFERENCES	p. 331

INTRODUCTION

INTRODUCTION

RAPPEL HISTORIQUE

L'apparition des effets non-linéaires en optique date de bien avant la mise au point des premiers lasers en 1960. Ainsi, dès 1931, Goeppert-Mayer /1931/ réalise l'étude théorique de l'absorption à deux photons. Un peu plus tard, on assiste à la première expérience de saturation d'une transition atomique. Cependant, l'observation de phénomènes non-linéaires reste alors exceptionnelle en raison du manque de cohérence et de la faible densité spectrale des sources traditionnelles; il faut attendre l'apparition des lasers pour assister à un développement intense de l'optique non-linéaire.

En 1961, Franken et al /1961/ observent que la propagation, dans un cristal de quartz, d'un rayonnement émis par un laser rubis (6943 Å) crée un rayonnement cohérent à une fréquence harmonique double; ils réalisent à cette occasion la première expérience de doublage de fréquence. La même année, Kaiser et Garrett /1961/ découvrent des effets non-linéaires d'ordre trois produits par l'absorption simultanée de deux photons laser.

Les expériences de conversion de fréquence sont tout d'abord réalisées dans des cristaux. Cependant, la nécessité d'utiliser des sources laser toujours plus intenses afin d'accroître les rendements de conversion et le désir de générer des rayonnements dans des domaines spectraux de plus en plus étendus, favorisent l'emploi des gaz comme milieux non-linéaires. Ainsi, Ward et New /1969/ effectuent les premières expériences de conversion de fréquences en générant la troisième harmonique dans des gaz rares.

Les années 70 voient la naissance /Harris et Miles 1971/ de toute une série d'expériences destinées à améliorer les taux de conversion jusqu'alors médiocres en raison de la faible densité des milieux gazeux. Dans ces techniques, l'accent est mis sur la réalisation de meilleures conditions d'adaptation de phase ainsi que sur l'exploitation des résonances du milieu non-linéaire.

MOTIVATION ET BUT

Au cours des vingt dernières années, sont apparues de nombreuses expériences de conversion de fréquences dans les gaz, et plus récemment, dans les gaz moléculaires (cf références dans /Jamroz et Stoicheff 1983, Reintjes 1984, Vidal 1986, Hilbig et al 1986, Rostas 1990/). Il nous a donc paru important de mener une **étude quantitative** du triplement de fréquence dans les milieux moléculaires. Dans ce cadre, notre principale motivation a été de mettre l'accent sur la **caractérisation précise** des effets d'adaptation de phase et des phénomènes de résonance à un, deux et trois photons.

Pour cela, il était nécessaire de choisir un milieu non linéaire constitué de petites molécules diatomiques (H_2 , N_2 , CO , $NO...$) dont la spectroscopie est relativement claire et bien connue. Il est apparu qu'un tel choix avait une double conséquence : d'une part, la résonance à un photon ne pouvait être réalisée étant donné que les premiers niveaux d'énergie des états excités de ces molécules sont trop élevés pour être directement accessibles par laser et, d'autre part, les conditions de résonance à deux et trois photons nécessitaient que l'onde harmonique soit émise dans l'extrême ultra-violet (XUV), un domaine de fréquence où, malheureusement, il n'existe aucun matériau transparent.

Une fois définie la nature microscopique du milieu, il nous a fallu choisir une source gazeuse adaptée à la propagation des rayonnements XUV. Nous en avons utilisé deux : la demi-cellule (cellule sans fenêtre de sortie) et le jet supersonique. La possibilité de faire varier à volonté et de façon précise la température, la densité et la longueur du milieu non-linéaire a constitué un grand avantage du jet supersonique continu sur la demi-cellule.

En conséquence, notre expérience a été conçue pour étudier le triplement de fréquence dans l'extrême ultra-violet par conversion non résonnante, résonnante à deux photons, ou résonnante à trois photons dans un milieu non-linéaire constitué par un jet libre supersonique continu d'azote.

PLAN DU MEMOIRE

Ce mémoire s'articule en deux parties : les quatre premiers chapitres présentent la théorie nécessaire à l'interprétation des expériences présentées dans les quatre derniers chapitres.

Le chapitre I contient des rappels très généraux d'optique non-linéaire. Y seront établis principalement l'équation de propagation dans un milieu non-linéaire et le développement limité de la polarisation sur les puissances du champ. Ainsi, il apparaîtra que la conversion de fréquence est régie par la susceptibilité non-linéaire du milieu d'une part, et par les effets d'interférences survenant au cours de la propagation, d'autre part.

Le calcul de la **susceptibilité non-linéaire** d'ordre trois fait l'objet du deuxième chapitre. En dehors des cas standards abondamment traités dans la littérature, on s'intéressera aux résonances dans un milieu moléculaire et aux effets d'élargissement dûs au laser et au milieu. Ceci nous permettra de déterminer l'évolution de la susceptibilité non-linéaire au cours de la détente supersonique.

Les effets d'interférences, connus sous le nom d'effets d'**adaptation de phase**, sont présentés au quatrième chapitre. Allant du plus simple au plus compliqué, on modélisera successivement le laser par une onde plane, un faisceau gaussien fondamental, un faisceau gaussien d'ordre supérieur et enfin un faisceau multimode. Pour terminer, on déterminera le comportement du facteur d'adaptation de phase dans le milieu inhomogène que constitue une détente supersonique.

Ce dernier point fait appel à une description du **jet libre supersonique** qui sera abordée dans le chapitre trois: après une rapide présentation des différents types de jet, on rappellera la théorie de la détente isentropique utilisée comme modèle de référence pour caractériser le jet. Le chapitre s'achèvera sur une discussion critique de ce modèle et de sa validité.

L'essentiel des résultats originaux de ce travail fondamentalement expérimental tient dans les quatre derniers chapitres. Après description du dispositif utilisé (chapitre V) on décrira dans le chapitre VI un spectre de conversion harmonique obtenu en demi-cellule d'azote et couvrant 2800 cm^{-1} dans le domaine des fréquences XUV. Sur ce spectre peuvent être localisées des zones de conversion non résonnante, résonnante à deux photons et résonnante à trois photons. On montrera que l'interprétation quantitative est très difficile à mener en demi-cellule; c'est pourquoi, pour aller plus loin qu'une simple présentation de spectres, il sera nécessaire d'aborder les expériences en jet.

Ainsi le chapitre VII est dévolu à l'étude du triplement de fréquence **sans résonance** et avec **résonance à deux photons**. Dans ces deux cas, on montrera que nos conditions expérimentales sont telles que les spectres de génération d'harmonique contiennent suffisamment d'information pour établir un diagnostic sur l'état interne du milieu non-linéaire (densité, distribution rotationnelle).

Le cas de la conversion avec résonance à trois photons, traité dans le chapitre VIII, est beaucoup plus ardu : en effet, celle-ci s'accompagne inévitablement de phénomènes de saturation liés à l'absorption résonnante de l'onde harmonique d'une part et aux variations amples et brutales des conditions d'adaptation de phase d'autre part. Les spectres obtenus en début de détente présentent une allure inhabituelle. Ils permettront d'illustrer la compétition entre différents aspects de la saturation; on les interprétera dans le cadre d'un modèle où le nombre de paramètres ajustés est très réduit malgré le peu de données disponibles dans cette zone de longueur d'onde.

CHAPITRE I

Notions générales
sur l'optique non linéaire

I 1 EQUATIONS DE MAXWELL

I 2 RELATIONS CONSTITUTIVES DU MILIEU

I 2.1 Cas général

I 2.2 Réponse stationnaire

I 2.3 Composantes spectrales de la polarisation

I 3 EQUATIONS DE PROPAGATION DANS UN MILIEU NON LINEAIRE

I 4 PROCESSUS CARACTERISTIQUES DE L'OPTIQUE NON LINEAIRE

I 4.1 Facteur de dégénérescence et amplitude de polarisation

I 4.2 Optique linéaire

I 4.3 Optique non linéaire d'ordre deux

I 4.4 Optique non linéaire d'ordre trois

I 5 PROPRIETES DU TENSEUR DES SUSCEPTIBILITES

I 5.1 Relations de symétrie

I 5.2 Tenseur des susceptibilités en milieu centrosymétrique

I 5.3 Influence de la polarisation du laser

I 6 CONCLUSION

CHAPITRE I

I 1 EQUATIONS DE MAXWELL

Tout phénomène lié à la propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu quelconque est entièrement décrit par les équations de Maxwell complétées par les relations constitutives du milieu.

Dans leur expression la plus courante, les équations de Maxwell décrivent la propagation, dans le vide, d'une onde caractérisée par un champ électrique \vec{E} et un champ magnétique \vec{B} . Dans leur forme générale, elles traduisent un couplage entre l'onde électromagnétique et le milieu matériel.

Dans le vide, elles s'écrivent :

$$\begin{aligned} \vec{\nabla} \wedge \vec{E} &= - \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} & \vec{\nabla} \cdot \vec{E} &= \rho / \epsilon_0 \\ \vec{\nabla} \wedge \vec{B} &= \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \mu_0 \vec{j} & \vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0 \end{aligned} \tag{1.1}$$

Les densités de courant \vec{j} et de charge ρ vérifient la loi de conservation des charges :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{j} + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0 \tag{1.2}$$

Aux grandes longueurs d'onde, les quantités ρ et \vec{j} peuvent être définies par un développement en série de termes multipolaires /Shen 1984/ :

$$\vec{j} = \vec{j}_0 + \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} + c \vec{\nabla} \wedge \vec{M} + \frac{\partial (\vec{\nabla} \cdot \vec{Q})}{\partial t} + \dots \quad (1.3)$$

$$\rho = \rho_0 - \vec{\nabla} \cdot \vec{P} - \nabla (\vec{\nabla} \cdot \vec{Q}) + \dots$$

où \vec{j}_0 et ρ_0 sont les densités permanentes de courant et de champ.

\vec{P} , \vec{M} et \vec{Q} représentent respectivement la polarisation dipolaire électrique, dipolaire magnétique et quadripolaire électrique; c est la vitesse de la lumière.

L'approximation dipolaire, qui revient à considérer l'atome placé dans le champ du rayonnement comme un dipôle électrique, consiste à limiter la définition de \vec{j} et ρ au terme de polarisation dipolaire électrique \vec{P} (à ρ_0 et \vec{j}_0 près). L'approximation est justifiée dans la mesure où la longueur d'onde du rayonnement électromagnétique est grande devant la taille du rayon d'influence de l'atome /Agranovich et al 1966/. Concrètement, si on assimile cette dernière quantité à la dimension de l'atome ($a \simeq 1 \text{ \AA}$), le paramètre caractéristique $\frac{a}{\lambda}$ est alors de l'ordre de 10^{-4} pour une longueur d'onde $\lambda = 4000 \text{ \AA}$. On en conclut ainsi que la condition $\frac{a}{\lambda} \ll 1$ sera toujours satisfaite dans le domaine des longueurs d'onde optiques.

Par conséquent, \vec{j} et ρ s'expriment par :

$$\vec{j} = \vec{j}_0 + \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \quad (1.4)$$

$$\rho = \rho_0 - \vec{\nabla} \cdot \vec{P}$$

Dans le cas d'un milieu non-conducteur et non-chargé, on peut réécrire, à l'aide des expressions (1.2) et (1.4), les équations de Maxwell sous la forme :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = - \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad \vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0 \quad (1.5)$$

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{B} = \mu_0 \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad \vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0$$

où l'excitation électrique \vec{D} est reliée au champ électrique \vec{E} par la relation :

$$\vec{D} = \epsilon_0 \cdot \vec{E} + \vec{P} \quad (1.6)$$

Partant de (1.5) et (1.6), on écrit l'équation de propagation qui régit l'évolution du champ électrique \vec{E} dans un milieu de polarisation \vec{P} :

$$c^2 \vec{\nabla} \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{E}) - \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0} \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (1.7)$$

Le principe du calcul d'un phénomène d'interaction non-linéaire réside dans la détermination de la polarisation induite. Connaissant la valeur du champ, on peut déterminer la réponse du milieu par l'intermédiaire de la relation constitutive du milieu.

I 2 RELATION CONSTITUTIVE DU MILIEU

I 2.1 Cas général

De manière générale, la polarisation du milieu est une fonction non-locale des champs électriques \vec{E} /Schubert 1986/.

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = f\left(\vec{E}(\vec{r}_1, t_1), \vec{E}(\vec{r}_2, t_2), \dots, \vec{E}(\vec{r}_n, t_n) \right) \quad (1.8)$$

où les \vec{r}_n, t_n représentent les coordonnées d'espace et de temps.

La complexité de cette expression réside dans le fait qu'en chaque point (\vec{r}_n, t_n) le champ \vec{E} est la résultante de plusieurs effets dûs :

- au champ interne qui assure la cohésion atomique
- au champ extérieur appliqué au milieu
- au champ créé par les différents dipôles réagissant au champ extérieur

Toutefois, on montre que, dans la mesure où l'on se place en milieu dilué, le champ vu par chaque atome n'est pas influencé par la présence des dipôles voisins /Reintjes 1984/. Autrement dit, la correction sur le champ local ne sera pas prise en compte dans notre développement.

Dans le cadre de l'approximation dipolaire, la polarisation linéaire induite dans le milieu s'écrit :

$$\begin{aligned}\vec{P}_L^{(1)} &= \int_{-\infty}^t \epsilon_0 \chi^{(1)}(\vec{r}, t-t_1) \cdot \vec{E}(\vec{r}, t_1) dt_1 \\ &= \chi^{(1)}(\vec{r}, t) \otimes \vec{E}(\vec{r}, t)\end{aligned}\tag{1.9}$$

où le symbole \otimes représente un produit de convolution.

$\chi^{(1)}$, la susceptibilité d'ordre 1, représente la réponse linéaire du milieu au champ électrique \vec{E} . Elle est responsable des phénomènes bien connus de l'optique classique, tels que l'indice de réfraction n et l'indice d'extinction κ :

$$\begin{aligned}n^2 - 1 &= \Re(\chi^{(1)}) \\ \kappa &= \Im(\chi^{(1)})\end{aligned}\tag{1.10}$$

L'état du milieu ne doit pas dépendre explicitement de la variable temps (homogénéité temporelle); c'est la raison pour laquelle la susceptibilité ne dépend pas du temps t absolu mais seulement de l'intervalle de temps $t - t_1$. Bien entendu, le principe de causalité impose la restriction $t_1 - t \leq 0$ d'où l'on déduit la relation entre $\Re(\chi^{(1)})$ et $\Im(\chi^{(1)})$ /Kronig 1926, Kramers 1929, Bloembergen 1965/.

En ce qui concerne la polarisation non-linéaire, elle s'exprime par un développement limité sur les puissances du champ \vec{E} . Par cela, on sous-entend que \vec{E} reste faible devant le champ créé par le noyau; on peut ainsi le considérer comme perturbateur de l'atome isolé.

Pour donner un ordre de grandeur, l'amplitude du champ électrique à l'intérieur de l'atome est typiquement de l'ordre de $3 \cdot 10^{10}$ V/m, à comparer au champ de 10^8 V/m créé par un laser délivrant une densité de puissance de 10^{10} W/cm².

Bien entendu le développement limité n'est plus valable pour ce qui concerne les puissances phénoménales délivrées actuellement par les lasers "terawatt" (le record du monde est détenu par le CEA-Limeil avec un système laser délivrant une puissance 20 TW /Sauteret et al 1990¹/ pour lequel il est prévu d'atteindre des densités de puissance de l'ordre de 10^{19} W/cm²) et dans le proche avenir par les lasers "petawatt" /Sauteret et al 1990²/.

A l'ordre n de perturbation, on a :

$$\vec{P}_{NL}^{(n)}(\vec{r}, t) = \int_{-\infty}^t \epsilon_0 \chi^{(n)}(\vec{r}, t-t_1, t-t_2, \dots, t-t_n) \cdot \vec{E}(\vec{r}, t_1) \vec{E}(\vec{r}, t_2) \dots \vec{E}(\vec{r}, t_n) dt_1 dt_2 \dots dt_n \quad (1.11)$$

Dans notre notation, \cdot symbolise un produit contracté n fois.

$\chi^{(n)}$ est la susceptibilité non-linéaire d'ordre n. Etant donné la nature vectorielle de l'expression (1.11), celle-ci est un tenseur d'ordre n+1.

L'expression totale de la polarisation est obtenue en sommant les contributions linéaire et non-linéaire de la réponse :

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \vec{P}_L^{(1)}(\vec{r}, t) + \sum_{n=2}^{+\infty} \vec{P}_{NL}^{(n)}(\vec{r}, t) \quad (1.12)$$

I 2.2 Réponse stationnaire

On a vu en (1.9) et (1.11) que la réponse \vec{P} du milieu ne s'établit pas de manière instantanée mais dépend de l'histoire antérieure du milieu. Néanmoins, si l'on considère que le temps de réponse du milieu est petit vis-à-vis de la période durant laquelle l'amplitude du champ varie, on peut supposer que la réponse du milieu, à l'excitation électromagnétique, est instantanée. Dans cette hypothèse, le calcul de la polarisation se traite en régime stationnaire. Nous verrons, dans le chapitre suivant, que cette approximation peut s'avérer non vérifiée lorsqu'intervient, au cours de l'interaction non-linéaire, une résonance entre le rayonnement et le milieu.

En régime stationnaire, les expressions (1.9) et (1.11) se transforment en :

$$\vec{P}_L(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}(\vec{r}, t) \quad (1.13)$$

$$\vec{P}_{NL}^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi^{(n)}(\vec{r}, t) \cdot \vec{E}(\vec{r}, t) \vec{E}(\vec{r}, t) \dots \vec{E}(\vec{r}, t)$$

Etant donné que nous nous intéresserons par la suite aux composantes spectrales des champs, nous allons exprimer la polarisation dans l'espace des vecteurs d'onde \vec{k} et des pulsations ω .

I 2.3 Composantes spectrales de la polarisation

La transformée de Fourier de l'expression (1.12) conduit à écrire :

$$\vec{P}(\vec{K}, \omega) = \vec{P}_L(\vec{K}, \omega) + \sum_{n=2}^{\infty} \vec{P}_{NL}^{(n)}(\vec{K}, \omega) \quad (1.14)$$

avec

$$\vec{P}_L(\vec{K}, \omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}(\vec{K}, \omega)$$

et

$$\vec{P}_{NL}^{(n)}(\vec{K}, \omega) \approx$$

(1.15)

$$\sum_{\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n} \epsilon_0 \chi^{(n)}(\vec{K}=\vec{K}_1+\vec{K}_2+\dots+\vec{K}_n, \omega=\omega_1+\omega_2+\dots+\omega_n)$$

$$\cdot \vec{E}(\vec{K}_1, \omega_1) \vec{E}(\vec{K}_2, \omega_2) \dots \vec{E}(\vec{K}_n, \omega_n)$$

où le champ \vec{E} est exprimé sur ses différentes composantes de Fourier $\vec{E}(\vec{K}_i, \omega_i)$:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_i \vec{E}(\vec{K}_i, \omega_i) \quad (1.16)$$

On constate ainsi que \vec{K} est une combinaison linéaire des \vec{K}_i , il en est de même pour les pulsations ω_i .

Pour fixer les idées, prenons l'exemple d'un champ \vec{E} comportant quatre composantes spectrales $\vec{E}(\vec{K}_1, \omega_1)$, $\vec{E}(\vec{K}_2, \omega_2)$, $\vec{E}(\vec{K}_3, \omega_3)$, $\vec{E}(\vec{K}_4, \omega_4)$ vérifiant les relations :

$$\begin{aligned} \omega_1 + \omega_2 &= \omega_3 + \omega_4 = \omega \\ \vec{K}_1 + \vec{K}_2 &= \vec{K}_3 + \vec{K}_4 = \vec{K} \end{aligned} \tag{1.17}$$

Dans ce cas de figure, la polarisation non-linéaire d'ordre 2 à la pulsation ω fera intervenir les quatre termes :

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(\vec{K}_1 + \vec{K}_2, \omega_1 + \omega_2) \vec{E}(\vec{K}_1, \omega_1) \vec{E}(\vec{K}_2, \omega_2) \\ \chi^{(2)}(\vec{K}_2 + \vec{K}_1, \omega_2 + \omega_1) \vec{E}(\vec{K}_2, \omega_2) \vec{E}(\vec{K}_1, \omega_1) \\ \chi^{(2)}(\vec{K}_3 + \vec{K}_4, \omega_3 + \omega_4) \vec{E}(\vec{K}_3, \omega_3) \vec{E}(\vec{K}_4, \omega_4) \\ \chi^{(2)}(\vec{K}_4 + \vec{K}_3, \omega_4 + \omega_3) \vec{E}(\vec{K}_4, \omega_4) \vec{E}(\vec{K}_3, \omega_3) \end{aligned} \tag{1.18}$$

L'association de l'équation de propagation (1.7) et des relations constitutives du milieu (1.15) établit un système d'équations couplées qui, sous réserve de connaître les conditions aux limites, a le mérite de décrire tous les phénomènes de l'optique.

Ainsi, si les composantes $\vec{E}(\vec{K}_n, \omega_n)$ représentent des ondes injectées dans le milieu, la résolution de ces équations nous fournira de nouvelles ondes possédant des vecteurs d'onde et des pulsations s'exprimant comme des combinaisons linéaires de \vec{K}_n et ω_n respectivement.

Notons que, dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique, la dispersion spatiale du milieu n'est pas prise en compte; la susceptibilité χ est donc indépendante du vecteur d'onde \vec{K} .

Afin d'alléger les équations, nous omettrons \vec{K} dans l'expression des χ .

I 3 EQUATIONS DE PROPAGATION DANS UN MILIEU NON LINEAIRE HOMOGENE

Nous choisissons le champ \vec{E} sous forme d'une série discrète d'ondes quasi-monochromatiques se propageant suivant l'axe \vec{z} , chacune d'entre elles étant associée, soit à une onde injectée dans le milieu, soit à une onde générée par ce dernier.

Dans la mesure où l'on ne s'intéresse pas aux sources laser de type ultra-rapide (laser picoseconde ou femtoseconde), on considère que les termes d'amplitude varient lentement devant les termes qui oscillent aux pulsations optiques ω ; ceci constitue l'approximation de l'enveloppe à variation lente. Par conséquent, le champ total \vec{E} s'écrit :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} \sum_i \vec{E}_i(\vec{r}, t) e^{-i(\omega_i t - K_i z)} + cc \quad (1.19)$$

où cc représente le terme complexe conjugué de l'expression qui précède.

L'amplitude complexe \vec{E}_i représente l'enveloppe de l'onde quasi-monochromatique; elle décrit son degré de cohérence par l'intermédiaire du produit d'autoconvolution.

De même pour la polarisation totale \vec{P} , on a :

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} \sum_j \vec{P}_j(\vec{r}, t) e^{-i(\omega_j t - K_j^p z)} + cc \quad (1.20)$$

où l'on prend soin de noter K_j^p le vecteur d'onde de la polarisation évoluant à la pulsation ω_j .

Sur ce point, il est nécessaire de faire la distinction entre K_j^p et K_j ; K_j est le vecteur d'onde associé à une onde électromagnétique qui se propage dans le milieu à la pulsation ω_j , tandis que le terme K_j^p n'est que le reflet mathématique du fait que la polarisation à la pulsation ω_j - qui ne se propage pas - est créée par des champs électriques - qui se propagent -.

En substituant dans (1.7) les expressions (1.19) et (1.20), on obtient pour chaque terme de l'équation (1.7) :

*** à gauche de l'égalité**

$$\vec{\nabla} \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{E}(\vec{r}, t)) = \frac{1}{2} \sum_i \left\{ \left(-K_i^2 \vec{E}_i(\vec{r}, t) + 2iK_i \frac{\partial \vec{E}_i(\vec{r}, t)}{\partial z} + \nabla_1^2 \vec{E}_i(\vec{r}, t) \right) e^{-i(\omega_i t - K_i z)} + cc \right\} \quad (1.21)$$

$$\frac{\partial^2 \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{2} \sum_j \left\{ \left(-\omega_j^2 \vec{E}_j(\vec{r}, t) - 2i\omega_j \frac{\partial \vec{E}_j(\vec{r}, t)}{\partial t} \right) e^{-i(\omega_j t - K_j z)} + cc \right\} \quad (1.22)$$

$$\text{avec } \nabla_1^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$$

* à droite de l'égalité

A l'aide de (1.12) et (1.13), on fait apparaître la partie non-linéaire de la polarisation.

$$\frac{\partial^2 \vec{P}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{2} \sum_m \left\{ \left(\begin{aligned} & -\omega_m^2 \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}_m(\vec{r}, t) \\ & - 2i\omega_m \epsilon_0 \chi^{(1)} \frac{\partial \vec{E}_m(\vec{r}, t)}{\partial t} - \omega_m^2 \vec{P}_{NL}_m(\vec{r}, t) \\ & - 2i\omega_m \frac{\partial \vec{P}_{NL}_m(\vec{r}, t)}{\partial t} \end{aligned} \right) e^{-i(\omega_m t - K_m^p z)} + cc \right\} \quad (1.23)$$

On a considéré ici que le milieu ne possédait aucune dispersion temporelle, c'est-à-dire :

$$\frac{\partial \chi^{(1)}}{\partial t} = 0 \quad (1.24)$$

Les expressions (1.22) et (1.23) ont été obtenues en utilisant une conséquence de l'approximation de l'enveloppe à variation lente, à savoir :

$$\frac{\partial^2 \mathcal{E}_n}{\partial z^2} \ll K_n \frac{\partial \mathcal{E}_n}{\partial z} \quad (1.25)$$

$$\frac{\partial^2 \mathcal{E}_n}{\partial t^2} \ll \omega_n \frac{\partial \mathcal{E}_n}{\partial t}$$

La dernière étape du calcul consiste à réunir les expressions (1.21), (1.22) et (1.23). Compte tenu des relations (1.10) on aboutit, après simplification, aux équations de propagation dans un milieu non-linéaire de polarisation \vec{P}_{NL} :

$$\sum_j \left\{ \nabla_{\perp}^2 \vec{E}_j(\vec{r}, t) + 2i \left(K_j \frac{\partial \vec{E}_j(\vec{r}, t)}{\partial z} + \frac{\omega_j}{c^2} (n_j^2 + i\kappa_j) \frac{\partial \vec{E}_j(\vec{r}, t)}{\partial t} \right) + \frac{i\omega_j^2 \kappa_j}{c^2} \vec{E}(\vec{r}, t) \right\} = \sum_j - \omega_j^2 \mu_0 \vec{\mathcal{P}}_{NL_j}(\vec{r}, t) e^{-i\Delta K_j z} \quad (1.26)$$

où n_j et κ_j sont les indices de réfraction et d'extinction du milieu à la pulsation ω_j et ΔK_j est le désaccord des vecteurs d'onde à la pulsation ω_j entre l'onde de champ \vec{E}_j et l'onde de polarisation $\vec{\mathcal{P}}_{NL_j}$:

$$\Delta K_j = K_j - K_j^p \quad (1.27)$$

Dans l'expression (1.26), la sommation porte sur toutes les fréquences ω_j autorisées par la relation de combinaison exprimée dans (1.15). On se trouve ainsi en présence d'un système infini d'équations reliées les unes aux autres par un terme de couplage proportionnel à $\vec{\mathcal{P}}_{NL_j}$.

D'après (1.24), le système d'équations (1.26) a été établi pour un milieu non-dispersif, c'est-à-dire à indice de réfraction et d'extinction indépendant de la fréquence. Ceci

est en contradiction avec les expressions établies en (1.19) et (1.20) dans lesquelles on a attribué aux amplitudes de champ une certaine étendue spectrale. Dans la mesure où la dispersion des indices n'est pas trop importante, on peut remédier à cette contradiction en remplaçant, dans l'expression (1.26), la vitesse de phase $\frac{c}{n_j}$ par la vitesse de groupe v_{g_j} (vitesse du paquet d'onde).

De manière à représenter l'évolution de l'onde dans un référentiel attaché à celle-ci, on fera le changement de variable suivant :

$$v' = v \qquad t' = t - \frac{z}{v_g} \qquad (1.28)$$

où l'on sous-entend ici que le décalage entre les différentes ondes se propageant dans le milieu est négligeable.

Le système (1.26) s'exprime finalement sous la forme :

$$\sum_j \left\{ \nabla_{\perp}^2 \vec{\varepsilon}_j(\vec{r}', t') + 2iK_j \frac{\partial \vec{\varepsilon}_j(\vec{r}', t')}{\partial z'} - \frac{2\omega_j \kappa_j}{c^2} \frac{\partial \vec{\varepsilon}_j(\vec{r}', t')}{\partial t'} - \frac{2\omega_j^2 \kappa_j}{c^2} \vec{\varepsilon}_j(\vec{r}', t') \right\} = \sum_j - \omega_j^2 \mu_0 \vec{\mathcal{P}}_{NL_j}(\vec{r}', t') e^{-i\Delta K_j z'} \qquad (1.29)$$

Ce système d'équations différentielles peut se résoudre dans la mesure où l'on s'intéresse à une solution correspondant à un processus non-linéaire particulier.

Il existe, à ce jour, une grande variété de phénomènes d'interaction non-linéaire mis en évidence de façon expérimentale. A titre d'exemple, nous nous proposons d'en décrire les plus courants.

I 4 PROCESSUS CARACTERISTIQUES DE L'OPTIQUE NON-LINEAIRE

On peut classer les différents phénomènes de l'optique non-linéaire en deux catégories.

La première d'entre elles concerne les phénomènes d'interaction élastique. Dans ces mécanismes, l'état quantique du milieu, après interaction avec le rayonnement, est identique à son état initial. Globalement, il n'intervient pas d'échange d'énergie entre le milieu et le flux lumineux. On trouve dans cette catégorie toute la famille des processus de mélange de fréquences, la génération harmonique, les effets d'auto-action tels que l'auto-focalisation ou l'auto-défocalisation /Reintjes 1984/, la conjugaison de phase /Klein 1989, Le Boiteux 1990/, etc...

La deuxième catégorie s'intéresse, contrairement à la première, aux processus qui modifient l'état du milieu par transfert d'énergie entre celui-ci et le rayonnement électromagnétique. Les phénomènes de diffusion stimulée (Raman, Brillouin) /Laud 1985/, d'absorption et d'émission multiphotonique, pour ne citer qu'eux, font partie de ce type de processus.

Dans le but d'entreprendre la description de divers phénomènes caractéristiques de l'optique non-linéaire, il est utile d'exprimer l'amplitude de polarisation à travers ses composantes spatiales.

I 4.1 Amplitude de polarisation et facteur de dégénérescence

La polarisation exprimée en (1.11) ou (1.13) est développée sur les puissances du champ \vec{E} . Si l'on considère ce dernier composé d'une somme discrète de champs \vec{E}_i , il nous faut prendre en compte l'ordre dans lequel le produit de ces champs doit se calculer. Il est clair que deux champs identiques (champs dégénérés) contribueront au calcul de la polarisation par l'intermédiaire d'un unique terme.

Ceci étant, la composante spectrale de la polarisation non-linéaire d'ordre n à la pulsation ω , pour un processus $\omega = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n$ donné, s'écrira :

$$\vec{\Phi}_{NL}^{(n)}(\vec{K}, \omega) = g \epsilon_0 \chi^{(n)}(-\omega, \omega_1, \omega_2 \dots \omega_n) \cdot \vec{\mathcal{E}}_1(\vec{K}_1, \omega_1) \vec{\mathcal{E}}_2(\vec{K}_2, \omega_2) \dots \vec{\mathcal{E}}_n(\vec{K}_n, \omega_n) \quad (1.30)$$

De même pour la composante $\vec{\Phi}_{NL}^{(n)}(-\vec{K}, -\omega)$, on aura :

$$\vec{\Phi}_{NL}^{(n)}(-\vec{K}, -\omega) = g \epsilon_0 \chi^{(n)}(\omega, -\omega_1, -\omega_2 \dots -\omega_n) \cdot \vec{\mathcal{E}}_1^*(-\vec{K}_1, -\omega_1) \vec{\mathcal{E}}_2^*(-\vec{K}_2, -\omega_2) \dots \vec{\mathcal{E}}_n^*(-\vec{K}_n, -\omega_n) \quad (1.31)$$

où $\vec{\mathcal{E}}_1, \vec{\mathcal{E}}_2 \dots \vec{\mathcal{E}}_n$, exprimés sous la forme (1.19), représentent les champs injectés ou générés dans le milieu.

Le facteur de dégénérescence g , représente le nombre possible de permutations entre les composantes distinctes du champ.

On a introduit ici la notation couramment utilisée pour exprimer la susceptibilité non-linéaire qui consiste à contracter le coefficient $\chi^{(n)}$ sur les différentes composantes de Fourier du champ et de noter en négatif la pulsation relative à la polarisation exprimée. Dans cette convention d'écriture, un terme $\vec{\mathcal{E}}_i(K_i, \omega_i)$ est associé à l'absorption d'un photon à la fréquence ω_i , tandis que son complexe conjugué $\vec{\mathcal{E}}_i^*(-K_i, -\omega_i)$ représente l'émission d'un photon par le milieu.

A l'aide de (1.19) et (1.20) on écrit les composantes scalaires de l'amplitude de polarisation $\varphi_\omega^{(n)}$:

$$\varphi_\omega^{(n)} \Big|_\alpha = \frac{g \epsilon_0}{2^{n-1}} \sum_{\beta, \gamma, \dots, \zeta} \chi_{\alpha, \beta, \gamma, \dots, \zeta}^{(n)} \mathcal{E}_{\omega_1} \Big|_\beta \mathcal{E}_{\omega_2} \Big|_\gamma \dots \mathcal{E}_{\omega_n} \Big|_\zeta \quad (1.32)$$

où la sommation s'entend ici sur les coordonnées cartésiennes $\alpha, \beta, \gamma \dots \zeta$.

I 4.2 Optique linéaire

Ce sont tous les phénomènes familiers de l'optique classique.

- absorption d'un photon :

$$\varphi_\omega^{(1)} = \epsilon_0 \chi^{(1)}(-\omega, \omega) \mathcal{E}_\omega \quad (1.33)$$

- émission d'un photon :

$$\varphi_\omega^{(1)} = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega, -\omega) \mathcal{E}_\omega^* \quad (1.34)$$

La propagation de l'onde s'accompagne de la modification des indices de réfraction et d'extinction.

I 4.3 Optique non-linéaire d'ordre 2

On trouve dans cette catégorie les phénomènes non-linéaires faisant intervenir le produit de deux champs dans l'expression de la polarisation /Butcher 1964, Shen 1984/.

- génération de la seconde harmonique :

$$\mathcal{P}_{\omega=2\omega_a}^{(2)} \Big|_i = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega, \omega_a, \omega_a) \mathcal{E}_{\omega_a} \Big|_j \mathcal{E}_{\omega_a} \Big|_k \quad (1.35)$$

- somme de fréquences :

$$\mathcal{P}_{\omega=\omega_a+\omega_b}^{(2)} \Big|_i = \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega, \omega_a, \omega_b) \mathcal{E}_{\omega_a} \Big|_j \mathcal{E}_{\omega_b} \Big|_k \quad (1.36)$$

- différence de fréquences :

$$\mathcal{P}_{\omega=\omega_a-\omega_b}^{(2)} \Big|_i = \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega, \omega_a, -\omega_b) \mathcal{E}_{\omega_a} \Big|_j \mathcal{E}_{-\omega_b}^* \Big|_k \quad (1.37)$$

- rectification optique (création d'un champ statique) :

$$\mathcal{P}_{\omega=0}^{(2)} \Big|_i = \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(0, \omega_a, -\omega_a) \mathcal{E}_{\omega_a} \Big|_j \mathcal{E}_{-\omega_a}^* \Big|_k \quad (1.38)$$

- effet Pockels (variation non-linéaire de l'indice) :

$$\mathcal{P}_{\omega}^{(2)} \Big|_i = \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega, \omega, 0) \mathcal{E}_{\omega} \Big|_j \mathcal{E}_0 \Big|_k \quad (1.39)$$

où \mathcal{E}_0 représente un champ statique.

I 4.4 Optique non-linéaire d'ordre 3

Cette catégorie englobe tous les phénomènes non-linéaires faisant intervenir trois champs dans l'expression de la polarisation /Butcher 1964, Reintjes 1984/.

De manière générale, l'amplitude de la polarisation non-linéaire d'ordre trois s'écrira :

$$\mathcal{P}_{\omega}^{(3)} \Big|_{\alpha} = \frac{g}{4} \epsilon_0 \chi_{\alpha, \beta, \gamma, \delta}^{(3)}(-\omega, \omega_1, \omega_2, \omega_3) \mathcal{E}_{\omega_1} \Big|_{\beta} \mathcal{E}_{\omega_2} \Big|_{\gamma} \mathcal{E}_{\omega_3} \Big|_{\delta} \quad (1.40)$$

Les processus les plus typiques sont représentés dans le tableau suivant :

ω_1	ω_2	ω_3	g	ω	Processus NL d'ordre 3
ω_a	ω_a	ω_a	1	$3\omega_a$	Génération de 3ème harmonique
ω_a	ω_a	ω_b	3	$2\omega_a + \omega_b$	Sommes et différences de fréquences
ω_a	ω_a	$-\omega_b$	3	$2\omega_a - \omega_b$	
ω_a	ω_b	ω_c	6	$\omega_a + \omega_b + \omega_c$	
ω_a	$-\omega_b$	$-\omega_c$	6	$\omega_a - \omega_b - \omega_c$	
ω_a	ω_a	$-\omega_a$	3	ω_a	Absorption à 2 photons Auto focalisation Mélange dégénéré à 4 ondes
ω_a	ω_b	$-\omega_b$	3	ω_a	Effet Kerr
ω_S	ω_L	$-\omega_L$	6	ω_S	Raman Stokes
ω_L	ω_L	$-\omega_S$	6	ω_{AS}	Raman anti-Stokes

Dans les deux derniers cas, l'indice L fait référence au laser, tandis que S et AS concernent les fréquences Stokes et anti-Stokes du milieu /Whiffen 1966/.

I 5 PROPRIETES DU TENSEUR DES SUSCEPTIBILITES

Les vecteurs de polarisation et les vecteurs champs électriques étant représentés dans les trois coordonnées d'espace, la susceptibilité reliant ces différentes quantités s'exprime sous forme d'un tenseur de rang $n+1$ et comporte, a priori, $3^{(n+1)}$ composantes. Toutefois, nous allons voir qu'il est possible, grâce à certaines propriétés de symétrie, de réduire le nombre de composantes indépendantes, voire d'en annuler certaines.

I 5.1 Relation de symétrie

Nous énoncerons, dans ce paragraphe, un rapide récapitulatif des relations de symétrie les plus courantes. Nous nous limiterons au tenseur de susceptibilité d'ordre 2; la généralisation à l'ordre n étant immédiate. Pour une description plus approfondie, le lecteur peut se reporter au livre de P. N. Butcher /1964/.

*** Condition de réalité des champs et symétrie par rapport à l'inversion dans le temps.**

En considérant que la polarisation $\vec{\mathcal{P}}$ et le champ $\vec{\mathcal{E}}$ sont des quantités réelles, on peut démontrer que les propriétés de symétrie de χ par inversion dans le temps conduisent à des relations du type :

$$\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(-\omega, \omega_1, \omega_2) = \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(\omega, -\omega_1, -\omega_2) \quad (1.41)$$

*** Symétrie par rapport aux composantes des champs (symétrie intrinsèque)**

On a vu précédemment qu'il n'existe pas, dans l'expression de la polarisation, de notion d'ordre dans l'écriture successive des champs. On peut donc librement intervertir, dans l'expression de la susceptibilité, les indices et pulsations des champs électriques :

$$\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(-\omega, \omega_1, \omega_2) = \chi_{\alpha\gamma\beta}^{(2)}(-\omega, \omega_2, \omega_1) \quad (1.42)$$

*** Symétrie par permutation des indices et pulsations.**

Il existe une relation de symétrie, dite globale, qui nous permet d'effectuer toute permutation sur les couples (indice, pulsation), sans changer la valeur de la susceptibilité. Toutefois, on montre que cette propriété s'applique uniquement aux milieux sans pertes, autrement dit aux cas où le champ n'est pas en situation de couplage résonnant entre le milieu et les ondes.

$$\begin{aligned} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(-\omega, \omega_1, \omega_2) &= \chi_{\gamma\alpha\beta}^{(2)}(\omega_2, -\omega, \omega_1) \\ &= \chi_{\beta\gamma\alpha}^{(2)}(\omega_1, \omega_2, -\omega) \end{aligned} \quad (1.43)$$

De plus, si le milieu est peu dispersif, la permutation sur les indices se fera indépendamment des pulsations. On obtient alors les relations de Kleinman /1962/ :

$$\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)} = \chi_{\alpha\gamma\beta}^{(2)} = \chi_{\beta\gamma\alpha}^{(2)} = \chi_{\beta\alpha\gamma}^{(2)} = \chi_{\gamma\alpha\beta}^{(2)} = \chi_{\gamma\beta\alpha}^{(2)} \quad (1.44)$$

avec $\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}$ purement réel ((1.40), (1.43)).

Dans ce cas, le nombre de composantes indépendantes du tenseur $\chi^{(2)}$ est réduit de 27 à 10.

Notons qu'à moins de se trouver en présence d'un système possédant des niveaux d'énergie très éloignés des pulsations ω , ω_1 et ω_2 , les relations de Kleinman sont rarement vérifiées.

* Symétrie spatiale

La structure du milieu peut présenter, vis-à-vis de certaines opérations de l'espace, des propriétés de symétrie. L'utilisation de la théorie des groupes permet de les mettre en évidence; on peut ainsi d'une part, déterminer les composantes non-nulles du tenseur des susceptibilités et d'autre part, établir des relations entre ces différentes composantes.

Reprenons l'exemple de la susceptibilité d'ordre 2 et faisons subir à l'ensemble de l'espace une rotation \mathcal{R} autour de l'origine du trièdre de référence (par rotation, on entend soit une rotation simple ou encore une rotation conjuguée à une inversion par rapport à un plan).

Dans une telle opération, un point d'abscisse x_α se transforme selon :

$$x_i = \sum_{\alpha} \mathcal{R}_{i\alpha} x_{\alpha} \quad (1.45)$$

La transformation \mathfrak{R} laissant inchangées les distances, elle se caractérise par une matrice 3x3 orthogonale.

$$\mathfrak{R}^t = \mathfrak{R}^{-1} \quad (1.46)$$

Pour les composantes de la polarisation, on aura :

$$\varphi_{\omega}^{(2)} \Big|_{\alpha} = \frac{g}{2} \epsilon_0 \sum_{\beta, \gamma} \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(-\omega, \omega_1, \omega_2) \mathcal{E}_{\omega_1} \Big|_{\beta} \mathcal{E}_{\omega_2} \Big|_{\gamma} \quad (1.47)$$

et

$$\begin{aligned} \varphi_{\omega}^{(2)} \Big|_i &= \sum_{\alpha} \mathfrak{R}_{i\alpha} \varphi_{\omega}^{(2)} \Big|_{\alpha} \\ &= \frac{g}{2} \epsilon_0 \sum_{\alpha, \beta, \gamma} \mathfrak{R}_{i\alpha} \left[\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)}(-\omega, \omega_1, \omega_2) \mathcal{E}_{\omega_1} \Big|_{\beta} \mathcal{E}_{\omega_2} \Big|_{\gamma} \right] \\ &= \frac{g}{2} \epsilon_0 \sum_{j, k} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega, \omega_1, \omega_2) \mathcal{E}_{\omega_1} \Big|_j \mathcal{E}_{\omega_2} \Big|_k \\ &= \frac{g}{2} \epsilon_0 \sum_{j, k} \chi_{ijk}^{(2)}(-\omega, \omega_1, \omega_2) \left[\sum_{\beta} \mathfrak{R}_{j\beta} \mathcal{E}_{\omega_1} \Big|_{\beta} \right] \left[\sum_{\gamma} \mathfrak{R}_{k\gamma} \mathcal{E}_{\omega_2} \Big|_{\gamma} \right] \end{aligned} \quad (1.48)$$

Sachant que pour une matrice orthogonale, on a la relation :

$$(\mathfrak{R}^{-1})_{i\alpha} = (\mathfrak{R}^t)_{i\alpha} = \mathfrak{R}_{\alpha i} \quad (1.49)$$

La comparaison, dans (1.48), entre la première et la dernière ligne conduit à :

$$\chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)} = \sum_{ijk} \mathfrak{R}_{i\alpha} \mathfrak{R}_{j\beta} \mathfrak{R}_{k\gamma} \chi_{ijk}^{(2)} \quad (1.50)$$

Ceci se généralise facilement à l'ordre n :

$$\chi_{ijk\dots z}^{(n)} = \sum_{\alpha\beta\gamma\dots\zeta} \mathfrak{R}_i |_{\alpha} \mathfrak{R}_j |_{\beta} \mathfrak{R}_k |_{\gamma} \dots \mathfrak{R}_z |_{\zeta} \chi_{\alpha,\beta,\gamma\dots\zeta}^{(n+1)} \quad (1.51)$$

I 5.2 Tenseur des susceptibilités en milieu centro-symétrique

Pour un milieu centro-symétrique, l'opérateur \mathfrak{R} de symétrie par rapport au centre est associé à la représentation matricielle suivante :

$$\mathfrak{R} = \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (1.52)$$

Dans ce cas particulier, l'expression (1.50) se transforme en :

$$\begin{aligned} \chi_{\alpha\beta\gamma\dots\zeta}^{(n)} &= - (-1)^n \delta_{\alpha i} \delta_{\beta j} \delta_{\gamma k} \dots \delta_{\zeta z} \chi_{ijk\dots z}^{(n)} \\ &= - (-1)^n \chi_{\alpha\beta\gamma\dots\zeta}^{(n)} \end{aligned} \quad (1.53)$$

On démontre ainsi qu'un milieu centro-symétrique ne possède aucune réponse non-linéaire aux ordres pairs. C'est le cas, par exemple, des milieux homogènes tels que les gaz.

Le premier effet non-linéaire que l'on voit apparaître dans ce type de milieu correspond au processus d'ordre trois. La susceptibilité qui s'y rattache est caractérisée par un tenseur d'ordre 3 qui possède, en général, 81 composantes indépendantes. Néanmoins, dans le cas d'un milieu homogène,

on montre que l'application des transformations de symétrie \mathfrak{R} réduit le tenseur des susceptibilités à 21 éléments non-nuls. Parmi ces 21 éléments, seulement 3 sont indépendants :

$$\chi_{xxxx}^{(3)} = \chi_{yyyy}^{(3)} = \chi_{zzzz}^{(3)} \quad (1.54a)$$

$$\chi_{xxyy}^{(3)} = \chi_{xxzz}^{(3)} = \chi_{yyxx}^{(3)} = \chi_{yyzz}^{(3)} = \chi_{zzxx}^{(3)} = \chi_{zzyy}^{(3)} \quad (1.54b)$$

$$\chi_{xyxy}^{(3)} = \chi_{xzxz}^{(3)} = \chi_{yxxy}^{(3)} = \chi_{yzzy}^{(3)} = \chi_{zyzy}^{(3)} = \chi_{zxzx}^{(3)} \quad (1.54c)$$

$$\chi_{xyyx}^{(3)} = \chi_{xzzx}^{(3)} = \chi_{yxxy}^{(3)} = \chi_{yzzy}^{(3)} = \chi_{zxzx}^{(3)} = \chi_{zyyz}^{(3)} \quad (1.54d)$$

avec une relation de liaison :

$$\chi_{xxxx}^{(3)} = \chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyxy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)} \quad (1.54e)$$

I 5.3 Influence de la polarisation du laser

Nous allons montrer qu'il n'existe pas de conversion harmonique au 3ème ordre pour une polarisation circulaire des champs.

Le champ du laser sera représenté par sa composante de Fourier à la pulsation ω :

$$\vec{\mathcal{E}} \begin{pmatrix} \mathcal{E}_\omega \\ \pm i\mathcal{E}_\omega \\ 0 \end{pmatrix} \quad (1.55)$$

Calculons à l'aide de (1.32) la composante de Fourier de la polarisation créée à la pulsation 3ω :

$$\begin{aligned} \varphi_{3\omega}^{(3)} \Big|_x &= \epsilon_0 \left(\frac{1}{4} \chi_{xxxx}^{(3)} - \frac{1}{4} \chi_{xxyy}^{(3)} - \frac{1}{4} \chi_{xyxy}^{(3)} - \frac{1}{4} \chi_{xyyx}^{(3)} \right) \mathcal{E}_{3\omega}^3 \\ \varphi_{3\omega}^{(3)} \Big|_y &= \pm i \epsilon_0 \left(\frac{1}{4} \chi_{yyyy}^{(3)} - \frac{1}{4} \chi_{yyxx}^{(3)} - \frac{1}{4} \chi_{yxxy}^{(3)} - \frac{1}{4} \chi_{yxxxy}^{(3)} \right) \mathcal{E}_{3\omega}^3 \quad (1.56) \\ \varphi_{3\omega}^{(3)} \Big|_z &= 0 \end{aligned}$$

D'après les relations établies en (1.54), on trouve :

$$\varphi_{3\omega}^{(3)} \Big|_x = \varphi_{3\omega}^{(3)} \Big|_y = \varphi_{3\omega}^{(3)} \Big|_z = 0 \quad (1.57)$$

On démontre ainsi que les relations de symétrie ne permettent pas la génération de troisième harmonique pour une onde de pompe polarisée circulairement.

I 6 CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons établi le système d'équations couplées (1.26) qui régit l'évolution des ondes électromagnétiques dans un milieu non-linéaire. D'après les relations constitutives du milieu, il apparait que, sous l'action d'un champ extérieur, le milieu acquiert une polarisation qui peut évoluer à une fréquence différente de celle des champs. Cette polarisation crée à son tour une nouvelle onde dont la propagation est régie par (1.26).

La prochaine étape consiste à évaluer cette polarisation. Pour ce faire, nous développerons, dans le chapitre suivant, le calcul explicite de la susceptibilité en résolvant les équations du mouvement d'une particule chargée se déplaçant sous l'influence d'un champ électrique.

CHAPITRE II

Susceptibilités électroniques

II 1 DESCRIPTION SEMI-QUANTIQUE

II 2 EQUATION DE LIOUVILLE

II 3 SOLUTIONS STATIONNAIRES

II 3.1 Perturbation limitée à l'ordre 3

II 3.2 Susceptibilité linéaire

II 3.3 Susceptibilité harmonique d'ordre 3

II 3.4 Interprétation qualitative

II 4 AMPLIFICATION PAR RESONANCE

II 4.1 Résonance à un photon

II 4.2 Résonance à deux photons

II 4.3 Résonance à trois photons

II 4.4 Discussion

II 4.5 Domaine de validité de l'approximation stationnaire

II 5 EFFETS LIES A LA LARGEUR SPECTRALE DU LASER

II 5.1 Résonance à deux photons

II 5.1.1 La molécule et ses moments de transition

II 5.1.2 L'opérateur densité dépendant du temps

II 5.1.3 Equations de Bloch

II 5.1.4 Polarisation induite

II 5.1.5 Retour vers l'approximation stationnaire

II 5.1.6 Susceptibilité équivalente

II 5.1.7 Etude aux cas limites

II 5.1.7.1 Conversion non-résonnante

II 5.1.7.2 Conversion en milieu à élargissement inhomogène

II 5.1.7.3 Conversion en milieu à élargissement homogène

II 5.2 Résonance à trois photons

II 6 LA SUSCEPTIBILITE EN JET SUPERSONIQUE

II 7 CONCLUSION

CHAPITRE II

Nous allons mener, dans ce chapitre, le calcul de la polarisation dipolaire électrique engendrée par le milieu en réponse à une excitation électromagnétique. Connaissant la structure électronique du milieu, on établira l'expression de la susceptibilité par un calcul développé dans le cadre de la mécanique quantique.

II 1 DESCRIPTION SEMI-QUANTIQUE

Considérons un système, en l'occurrence un gaz, constitué de N sous-systèmes représentant chacun un atome (ou une molécule). Si on néglige les phénomènes d'interaction pouvant exister entre les différentes molécules du milieu, on peut considérer chacune d'entre elles comme isolée. Cette approximation est pleinement justifiée dans la mesure où le milieu non-linéaire est dilué (gaz sous faible pression).

Un sous-système isolé sera caractérisé par un hamiltonien d'énergie H_0 indépendant du temps. Dans la représentation de Dirac, l'opérateur H_0 se diagonalise dans la base des vecteurs propres d'énergie $|n\rangle$:

$$H_0 |n\rangle = \hbar \omega_n |n\rangle \quad (2.1)$$

où les valeurs propres $\hbar \omega_n$ de l'opérateur H_0 sont les états d'énergie de l'atome isolé.

On décide d'appliquer au milieu un champ électromagnétique $\vec{E}(\vec{r},t)$. Sous l'effet de ce champ, le système acquiert une polarisation globale qui résulte de toutes les polarisations microscopiques $\vec{p}(\vec{r},t)$ colinéaires entre elles, induites au niveau des N sous-systèmes :

$$\vec{P}(\vec{r},t) = N \vec{p}(\vec{r},t) \quad (2.2)$$

Ainsi qu'il a été dit au chapitre I, le champ $\vec{E}(\vec{r},t)$ est traité comme un perturbateur de la molécule isolée. Dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique, l'observable d'interaction est représentée par l'hamiltonien H_1 :

$$H_1 = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}(\vec{r},t) \quad (2.3)$$

où μ représente l'opérateur moment dipolaire électrique.

L'hamiltonien total de la molécule s'écrit :

$$H(t) = H_0 + H_1(t) \quad (2.4)$$

et les vecteurs propres de H peuvent s'exprimer comme une combinaison linéaire de vecteurs propres de H_0 :

$$|\psi_i\rangle = \sum_n C_n |n\rangle \quad (2.5)$$

Dans le but d'obtenir une description suffisante du système, il nous faut compléter notre modèle par un autre perturbateur trouvant son origine dans le fait qu'un atome ne peut, en toute rigueur, être considéré comme un système

totallement isolé. En effet, il existe inévitablement un couplage entre l'atome et son environnement. Dans le cas d'un milieu dilué, c'est la présence du réservoir thermique, entourant chaque atome, qui produira des perturbations de nature stochastique sur celui-ci. On a l'habitude de caractériser ces effets en introduisant, de façon phénoménologique, un terme de relaxation dans les équations d'évolution.

II 2 EQUATION DE LIOUVILLE

Nous allons développer le calcul de perturbation dans le cadre du formalisme de la matrice densité /Messiah 1964, Cohen-Tannoudji et al 1973/.

Du fait de la relaxation, le système se présente sous la forme d'un mélange statistique d'états. Dans ces conditions, l'opérateur densité s'exprime comme la moyenne des projecteurs de H :

$$\rho = \overline{|\psi_i\rangle\langle\psi_i|} \quad (2.6)$$

La polarisation microscopique de l'atome est donnée par la moyenne quantique de l'opérateur μ :

$$\bar{p} = \text{Tr}(\mu\rho) = \sum_{ij} \langle\mu\rangle_{ij} \langle\rho\rangle_{ji} \quad (2.7)$$

où Tr représente la trace de la matrice $(\mu\rho)$.

(nous utiliserons, pour notation, le symbole $\langle \rangle_{nn}$, afin de signifier l'élément de matrice pris entre les états n et n')

D'après (2.5) et (2.6), les éléments diagonaux $\langle \rho \rangle_{nn} = C_n C_n^*$ représentent les populations des états indicés n ; ils sont soumis à la relation de fermeture $\sum_n \langle \rho \rangle_{nn} = 1$. Les éléments non-diagonaux $\langle \rho \rangle_{nm} = C_n C_m^*$, quant à eux, reflètent la cohérence du système. Lorsqu'il n'existe pas de relation de phase entre C_n et C_m , la moyenne des termes croisés $C_n C_m^*$, pris sur tous les états possibles du mélange statistique, est nulle (mathématiquement, ceci est dû au fait que - à la différence des termes de population ρ_{nn} - les ρ_{nm} , représentent une somme de nombres complexes); on parle alors de mélange incohérent d'états. Par contre, lorsque les phases de C_n et C_m sont corrélées, le mélange est cohérent, on a alors $\langle \rho \rangle_{nm} \neq 0$.

En ce qui nous concerne, le système n'est pas initialement dans un état pur et les éléments non-diagonaux de ρ sont nuls en l'absence du champ \vec{E} .

L'état du système à un instant t donné est entièrement décrit par $\rho(t)$; son évolution au cours du temps est régie par l'équation de Liouville :

$$\frac{\partial \rho(t)}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [H_0 + H_1(t), \rho(t)] + \left(\frac{\partial \rho(t)}{\partial t} \right)_{rel.} \quad (2.8)$$

(dans la notation utilisée le symbole $[x, y]$ représente le commutateur de x et de y)

Le terme $\left(\frac{\partial \rho(t)}{\partial t} \right)_{rel.}$ est introduit de manière à prendre en considération les phénomènes de relaxation /Bloembergen 1965, Shen 1984/. Il s'exprimera différemment selon que l'on

s'intéresse aux termes diagonaux $\langle \rho(t) \rangle_{nn}$ ou non-diagonaux $\langle \rho(t) \rangle_{nn'}$.

Concernant les éléments $\langle \rho(t) \rangle_{nn'}$, on supposera que la relaxation des cohérences s'opère de manière exponentielle, c'est-à-dire :

$$\left(\frac{\partial \langle \rho(t) \rangle_{nn'}}{\partial t} \right)_{rel.} = - \Gamma_{nn'} \langle \rho(t) \rangle_{nn'} \quad (2.9)$$

Quant aux éléments $\langle \rho(t) \rangle_{nn}$, le terme de relaxation exprime la redistribution des populations entre les différents niveaux. En notant $\langle \rho^{(0)} \rangle_{nn}$ le taux de peuplement de l'état n à l'équilibre thermique, on écrira l'équation de relaxation de la façon suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\langle \rho(t) \rangle_{nn} \right)_{rel.} = - \tau_n^{-1} \left(\langle \rho(t) \rangle_{nn} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{nn} \right) \quad (2.10)$$

II 3 SOLUTIONS STATIONNAIRES

Nous décrirons, dans cette partie, l'état du système dans son régime permanent. L'étude des phénomènes transitoires sera développée dans le paragraphe suivant.

Dans le but de résoudre l'équation d'évolution, nous décomposons l'opérateur densité sous forme d'une série perturbative du champ \vec{E} (voir théorie des perturbations /Salmon et Gervat 1967/) :

$$\rho(t) = \rho^{(0)} + \rho^{(1)}(t) + \rho^{(2)}(t) + \rho^{(3)}(t) + \dots \quad (2.11)$$

Afin de faire apparaître les différentes pulsations créées par le milieu, le perturbateur H_1 et l'opérateur densité ρ sont développés sur leurs composantes de Fourier :

$$H_1(t) = \frac{1}{2} \sum_j \left(H_{1\omega_j}(t) e^{-i\omega_j t} + H_{1-\omega_j}(t) e^{i\omega_j t} \right) \quad (2.12)$$

$$\rho(t) = \frac{1}{2} \sum_i \left(\rho_{\omega_i}(t) e^{-i\omega_i t} + \rho_{-\omega_i}(t) e^{i\omega_i t} \right) \quad (2.13)$$

où les ω_j sont les pulsations de Fourier du champ électrique, tandis que les ω_i sont les pulsations susceptibles d'être acquises par le milieu; étant donné que le milieu est initialement incohérent, ces ω_i ne peuvent être que des combinaisons linéaires des ω_j .

Notre intérêt se portant plus particulièrement sur la génération de rayonnement par triplement de fréquence, nous développerons les calculs jusqu'au troisième ordre de perturbation. Les résultats obtenus seront utilisés pour établir l'expression de la susceptibilité linéaire et de la susceptibilité non-linéaire d'ordre trois à la fréquence harmonique.

II 3.1 Perturbation limitée à l'ordre trois

En portant l'expression (2.11), limitée au terme du troisième ordre, dans l'équation d'évolution (2.8), on obtient le système d'équations couplées qui régit l'évolution du milieu non-linéaire à l'ordre trois de perturbation :

$$\frac{\partial \rho^{(0)}(t)}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [H_0, \rho^{(0)}(t)] + \left(\frac{\partial \rho^{(0)}(t)}{\partial t} \right)_{rel.}$$

$$\frac{\partial \rho^{(1)}(t)}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} \left([H_0, \rho^{(1)}(t)] + [H_1(t), \rho^{(0)}(t)] \right) + \left(\frac{\partial \rho^{(1)}(t)}{\partial t} \right)_{rel.}$$

$$\frac{\partial \rho^{(2)}(t)}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} \left([H_0, \rho^{(2)}(t)] + [H_1(t), \rho^{(1)}(t)] \right) + \left(\frac{\partial \rho^{(2)}(t)}{\partial t} \right)_{rel.}$$

$$\frac{\partial \rho^{(3)}(t)}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} \left([H_0, \rho^{(3)}(t)] + [H_1(t), \rho^{(2)}(t)] \right) + \left(\frac{\partial \rho^{(3)}(t)}{\partial t} \right)_{rel.}$$

(2.14)

La première équation ne comporte pas de termes en H_1 , elle décrit donc bien l'état du système sans perturbation. Les populations $\langle \rho^{(0)} \rangle_{nn}$ sont définies à l'équilibre thermique, les termes de cohérence $\langle \rho^{(0)} \rangle_{n'n}$, sont nuls étant donné qu'il n'existe, par hypothèse, aucune cohérence de phase entre les états du système isolé.

Les trois équations suivantes représentent l'état du milieu au fur et à mesure que l'ordre de perturbation augmente.

On reporte les expressions (2.12) et (2.13) dans le système (2.14). Les solutions stationnaires $\frac{\partial \rho_{\omega_i}}{\partial t} = 0$ sont obtenues en recherchant les solutions particulières des équations différentielles.

En projetant chacune des trois équations dans la base des vecteurs d'état $|n\rangle$, on obtient :

* équation au 1^{er} ordre de perturbation :

$$\begin{aligned} \hbar(\omega_j - \omega_{\beta\alpha}) \langle \rho_{\omega_j}^{(1)} \rangle_{\beta\alpha} = \\ \left[H1_{\omega_j}, \rho^{(0)} \right]_{\beta\alpha} + i\hbar \left(\frac{\partial \langle \rho_{\omega_j}^{(1)} \rangle_{\beta\alpha}}{\partial t} \right)_{rel.} \end{aligned} \quad (2.15)$$

* équation au 2^{ème} ordre de perturbation :

$$\begin{aligned} \hbar(\omega_j + \omega_k - \omega_{\gamma\alpha}) \langle \rho_{\omega_j + \omega_k}^{(2)} \rangle_{\gamma\alpha} = \\ 2 \left[H1_{\omega_j}, \rho_{\omega_k}^{(1)} \right]_{\gamma\alpha} + i\hbar \left(\frac{\partial \langle \rho_{\omega_j + \omega_k}^{(2)} \rangle_{\gamma\alpha}}{\partial t} \right)_{rel.} \end{aligned} \quad (2.16)$$

* équation au 3^{ème} ordre de perturbation :

$$\begin{aligned} \hbar(\omega_j + \omega_k + \omega_\ell - \omega_{\delta\alpha}) \langle \rho_{\omega_j + \omega_k + \omega_\ell}^{(3)} \rangle_{\delta\alpha} = \\ 6 \left[H1_{\omega_j}, \rho_{\omega_k + \omega_\ell}^{(2)} \right]_{\delta\alpha} + i\hbar \left(\frac{\partial \langle \rho_{\omega_j + \omega_k + \omega_\ell}^{(3)} \rangle_{\delta\alpha}}{\partial t} \right)_{rel.} \end{aligned} \quad (2.17)$$

A travers ces équations sont exprimées toutes les composantes de Fourier de la matrice densité jusqu'au troisième ordre de perturbation.

On a vu précédemment que les termes de relaxation s'expriment différemment selon qu'ils sont diagonaux ou pas. Par la suite, on choisira de négliger la relaxation sur les populations dans la mesure où, dans le domaine des longueurs d'onde optiques, la pulsation des champs est bien supérieure au terme d'élargissement τ_n^{-1} .

Ceci étant, les équations (2.15) à (2.17) conduisent aux résultats suivants :

* solution au 1^{er} ordre de perturbation :

$$\langle \rho_{\omega_j}^{(1)} \rangle_{\beta\alpha} = \frac{1}{\hbar} (\omega_j - \omega_{\beta\alpha} + i\Gamma_{\beta\alpha})^{-1} \quad (2.18)$$

$$\langle H1_{\omega_j} \rangle_{\beta\alpha} \left(\langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\alpha\alpha} \right)$$

* solution au 2^{ème} ordre de perturbation :

$$\langle \rho_{\omega_j + \omega_k}^{(2)} \rangle_{\gamma\alpha} = \frac{2}{\hbar^2} (\omega_j + \omega_k - \omega_{\gamma\alpha} + i\Gamma_{\gamma\alpha})^{-1} \sum_{\beta} \langle H1_{\omega_k} \rangle_{\gamma\beta} \langle H1_{\omega_j} \rangle_{\beta\alpha} \quad (2.19)$$

$$\left(\frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\alpha\alpha} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta}}{\omega_j - \omega_{\beta\alpha} + i\Gamma_{\beta\alpha}} - \frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma}}{\omega_k - \omega_{\gamma\beta} + i\Gamma_{\gamma\beta}} \right)$$

* solution au 3^{ème} ordre de perturbation :

$$\langle \rho_{\omega_j + \omega_k + \omega_l}^{(3)} \rangle_{\delta\alpha} = \frac{6}{\hbar^3} (\omega_j + \omega_k + \omega_l - \omega_{\delta\alpha} + i\Gamma_{\delta\alpha})^{-1}$$

$$\sum_{\gamma} \sum_{\beta} \frac{\langle H1_{\omega_j} \rangle_{\delta\beta} \langle H1_{\omega_l} \rangle_{\beta\gamma} \langle H1_{\omega_k} \rangle_{\gamma\alpha}}{\omega_k + \omega_l - \omega_{\beta\alpha} + i\Gamma_{\beta\alpha}}$$

$$\left(\frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\alpha\alpha} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta}}{\omega_k - \omega_{\gamma\alpha} + i\Gamma_{\gamma\alpha}} - \frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta}}{\omega_k - \omega_{\beta\gamma} + i\Gamma_{\beta\gamma}} \right) \quad (2.20)$$

$$- \sum_{\gamma} \sum_{\beta} \frac{\langle H1_{\omega_j} \rangle_{\beta\alpha} \langle H1_{\omega_k} \rangle_{\gamma\beta} \langle H1_{\omega_l} \rangle_{\delta\gamma}}{\omega_k + \omega_l - \omega_{\delta\beta} + i\Gamma_{\delta\beta}}$$

$$\left(\frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma}}{\omega_k - \omega_{\gamma\beta} + i\Gamma_{\gamma\beta}} - \frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\delta\delta}}{\omega_k - \omega_{\delta\gamma} + i\Gamma_{\delta\gamma}} \right)$$

+ un terme identique en permutant k et l

Sachant que la relation (2.7) est vérifiée pour chaque ordre de perturbation, on aura d'après (2.11) et (2.13) :

$$\rho_{\omega}^{(n)} = N \bar{p} = N \text{Tr} (\mu \rho_{\omega}^{(n)}) \quad (2.21)$$

On peut ainsi déterminer les polarisations non-linéaires, pour les différents processus optiques énoncés dans le paragraphe 4 du chapitre I.

II 3.2 Susceptibilité linéaire

Dans la grande majorité des cas, de par la conception de leur cavité, les lasers émettent des rayonnements polarisés rectilignement. Par conséquent, nous choisirons un champ \vec{E} polarisé linéairement suivant l'axe des \vec{z} .

Dans ces conditions, l'hamiltonien H_1 s'écrira :

$$H_1 = \mu |_z E|_z \quad (2.22)$$

Dans le but de simplifier les notations, nous omettrons, dans les expressions suivantes, d'indiquer la coordonnée d'espace z.

La réponse linéaire à la pulsation ω est donnée par (1.15) :

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{\varphi_{\omega}^{(1)}}{\epsilon_0 \mathcal{E}_{\omega}} \quad (2.23)$$

La polarisation linéaire s'obtient grâce à la relation (2.21) :

$$\varphi_{\omega}^{(1)} = N \text{Tr} (\mu \rho_{\omega}^{(1)}) \quad (2.24)$$

On remplaçant $\rho_{\omega}^{(1)}$ par sa valeur calculée en (2.18), on obtient la susceptibilité linéaire à la pulsation ω :

$$\chi^{(1)}(\omega) = -\frac{1}{\epsilon_0 \hbar} \sum_a \sum_{\beta} N \rho_a^{(0)} |\langle \mu \rangle_{\beta a}|^2 \left(\frac{1}{\omega - \omega_{\beta a} + i\Gamma_{\beta a}} - \frac{1}{\omega + \omega_{\beta a} + i\Gamma_{a\beta}} \right) \quad (2.25)$$

où les états "a", de population $N \rho_a^{(0)}$, désignent les seuls niveaux peuplés du système en l'absence de perturbation.

De $\chi^{(1)}(\omega)$ on peut déduire la variation des indices de réfraction n et d'extinction κ avec la pulsation :

$$\begin{aligned} n^2(\omega) - 1 &= \Re(\chi^{(1)}(\omega)) \\ &= \frac{N}{\epsilon_0 \hbar} \sum_a \sum_{\beta} \rho_a^{(0)} |\langle \mu \rangle_{\beta a}|^2 \left(\frac{\omega_{\beta a} - \omega}{(\omega - \omega_{\beta a})^2 + \Gamma_{\beta a}^2} - \frac{\omega_{\beta a} + \omega}{(\omega + \omega_{\beta a})^2 + \Gamma_{a\beta}^2} \right) \end{aligned} \quad (2.26)$$

$$\begin{aligned} \kappa(\omega) &= \Im(\chi^{(1)}(\omega)) \\ &= \frac{N}{\epsilon_0 \hbar} \sum_a \sum_{\beta} \rho_a^{(0)} |\langle \mu \rangle_{\beta a}|^2 \left(\frac{\Gamma_{\beta a}}{(\omega - \omega_{\beta a})^2 + \Gamma_{\beta a}^2} - \frac{\Gamma_{a\beta}}{(\omega + \omega_{\beta a})^2 + \Gamma_{a\beta}^2} \right) \end{aligned}$$

II 3.3 Susceptibilité harmonique d'ordre trois

L'élément χ_{zzzz} du tenseur des susceptibilités, responsable de la génération de troisième harmonique en champ polarisé linéairement suivant l'axe \vec{z} , est donné par :

$$\chi_{zzzz}^{(3)}(3\omega) = \frac{\varphi_{3\omega}^{(3)}}{\epsilon_0 \mathcal{E}_\omega^3} \quad (2.27)$$

avec la relation :

$$\varphi_{3\omega}^{(3)} = N \text{Tr} (\mu \rho_{3\omega}^{(3)}) \quad (2.28)$$

L'expression de $\rho_{3\omega}^{(3)}$ se déduit de (2.20) en remplaçant ω_j , ω_k et ω_l par ω . On obtient :

$$\begin{aligned} (\rho_{3\omega}^{(3)})_{\delta\alpha} &= \frac{\mathcal{E}_\omega^3}{4\hbar^3} \sum_{\gamma} \sum_{\beta} \frac{\langle \mu \rangle_{\delta\beta} \langle \mu \rangle_{\beta\gamma} \langle \mu \rangle_{\gamma\alpha}}{3\omega - \omega_{\delta\gamma} + i\Gamma_{\delta\alpha}} \\ &\left\{ (2\omega - \omega_{\beta\alpha} + i\Gamma_{\beta\alpha})^{-1} \left(\frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\alpha\alpha} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma} \langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta}}{\omega - \omega_{\gamma\alpha} + i\Gamma_{\gamma\alpha}} - \frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta}}{\omega - \omega_{\beta\gamma} + i\Gamma_{\beta\gamma}} \right) \right. \\ &\left. - (2\omega - \omega_{\delta\gamma} + i\Gamma_{\delta\gamma})^{-1} \left(\frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta} \langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\delta\delta}}{\omega - \omega_{\beta\gamma} + i\Gamma_{\beta\gamma}} - \frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\delta\delta}}{\omega - \omega_{\delta\beta} + i\Gamma_{\delta\beta}} \right) \right\} \quad (2.29) \end{aligned}$$

Connaissant désormais $\rho_{3\omega}^{(3)}$, on calcule $\chi^{(3)}(3\omega)$ à l'aide des relations (2.27) et (2.28) :

$$\chi_{zzzz}^{(3)}(3\omega) = \frac{N}{\hbar^3 \epsilon_0} \sum_{\alpha} \sum_{\beta} \sum_{\gamma} \sum_{\delta} \frac{\langle \mu \rangle_{\delta\gamma} \langle \mu \rangle_{\gamma\beta} \langle \mu \rangle_{\beta\alpha} \langle \mu \rangle_{\alpha\delta}}{3\omega - \omega_{\delta\alpha} + i\Gamma_{\delta\alpha}}$$

$$\left\{ (2\omega - \omega_{\gamma\alpha} + i\Gamma_{\gamma\alpha})^{-1} \left(\frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\alpha\alpha} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta} \langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma}}{\omega - \omega_{\beta\alpha} + i\Gamma_{\beta\alpha}} - \frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma}}{\omega - \omega_{\gamma\beta} + i\Gamma_{\gamma\beta}} \right) \right. \quad (2.30)$$

$$\left. - (2\omega - \omega_{\delta\beta} + i\Gamma_{\delta\beta})^{-1} \left(\frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\beta\beta} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma} \langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\delta\delta}}{\omega - \omega_{\gamma\beta} + i\Gamma_{\gamma\beta}} - \frac{\langle \rho^{(0)} \rangle_{\gamma\gamma} - \langle \rho^{(0)} \rangle_{\delta\delta}}{\omega - \omega_{\delta\gamma} + i\Gamma_{\delta\gamma}} \right) \right\}$$

Avant de poursuivre, il est intéressant d'apporter certaines remarques à propos de l'expression (2.30).

- Chaque terme de $\chi^{(3)}$ fait apparaître le produit de quatre moments dipolaires électriques; la génération de troisième harmonique peut donc être décrite comme un processus en quatre étapes, chacune de ces étapes représentant une transition à un photon, le quatrième photon étant celui qui est émis par le milieu;

- la quadruple sommation sur les indices α, β, γ et δ doit porter sur tous les états d'énergie discrets de la molécule, ainsi que sur le continuum d'ionisation.

En se plaçant dans des conditions telles que les champs électriques ne possèdent aucune fréquence en résonance avec les fréquences de Bohr de la molécule ($n\omega - \omega_{ij} \gg \Gamma_{ij}$), on peut donner une expression simplifiée de la susceptibilité en négligeant tous les termes de relaxation Γ devant les quantités du type $\omega - \omega_{nn}, 2\omega - \omega_{nn}, 3\omega - \omega_{nn}$. En notant "a", les seuls états peuplés initialement avec un taux de

population $\rho_a^{(0)}$, on aboutit à l'expression établie par Armstrong et al /1962/ :

$$\chi_{zzzz}^{(3)}(3\omega) = \frac{N}{\hbar^3 \epsilon_0} \sum_a \sum_\beta \sum_\gamma \sum_\delta \rho_a^{(0)} \langle \mu \rangle_{a\delta} \langle \mu \rangle_{\delta\gamma} \langle \mu \rangle_{\gamma\beta} \langle \mu \rangle_{\beta a} \left(\frac{1}{(\omega_{\beta a} \pm \omega)(\omega_{\delta a} \mp \omega)(\omega_{\gamma a} \pm 2\omega)} + \frac{1}{(\omega_{\beta a} \pm \omega)(\omega_{\gamma a} \pm 2\omega)(\omega_{\delta a} \pm 3\omega)} \right) \quad (2.31)$$

II 3.4 Interprétation qualitative

On peut se poser plusieurs questions pour tenter de donner une interprétation qualitative des équations obtenues ci-dessus :

- Quels types de transitions doivent intervenir dans la conversion ?
- Quel est le temps imparti à la molécule pour emmagasiner et restituer l'énergie du champ électromagnétique ?

Afin d'y répondre, nous détaillerons un des termes de la susceptibilité en nous servant de l'expression (2.31) comme base de notre raisonnement.

Nous schématiserons la molécule sous la forme d'un système à quatre niveaux d'énergie, notés "a", "b", "c", "d". De plus, nous supposerons que $\langle \mu \rangle_{ad}$, $\langle \mu \rangle_{dc}$, $\langle \mu \rangle_{cb}$, $\langle \mu \rangle_{ba}$ sont les seuls moments de transition différents de zéro. Dans ce cas, on réécrit la susceptibilité (2.31) simplifiée de la façon suivante :

$$\chi^{(3)}(3\omega) = \frac{N\rho_a^{(0)}}{\hbar^3 \epsilon_0} \langle \mu \rangle_{ad} \langle \mu \rangle_{dc} \langle \mu \rangle_{cb} \langle \mu \rangle_{ba} \quad (2.32)$$

$$\left(\frac{1}{(\omega_{ba} \pm \omega)(\omega_{da} \mp \omega)(\omega_{ca} \pm 2\omega)} + \frac{1}{(\omega_{ba} \pm \omega)(\omega_{ca} \pm 2\omega)(\omega_{da} \pm 3\omega)} \right)$$

Le produit $N\rho_a^{(0)}\langle \mu \rangle_{ad}\langle \mu \rangle_{dc}\langle \mu \rangle_{cb}\langle \mu \rangle_{ba}$ est lié à la probabilité par unité de temps donnée au système pour absorber trois photons à la pulsation ω en passant de l'état "a" vers les états "b", "c" et "d", et réémettre un photon harmonique à la pulsation 3ω .

A la suite de l'absorption d'un photon, la molécule se trouve portée dans un niveau d'énergie E, avec un défaut d'énergie ΔE égal soit à $\hbar(\omega_{ba} - \omega)$, soit à $\hbar(\omega_{ca} - 2\omega)$, ou soit encore à $\hbar(\omega_{da} - 3\omega)$. Cette situation est possible à condition que la molécule séjourne dans l'état E pendant une durée inférieure au temps Δt donné par la relation de Heisenberg :

$$\Delta t = \frac{\hbar}{\Delta E} \quad (2.33)$$

Constatons que cette durée Δt apparaît explicitement dans l'expression (2.32) par l'intermédiaire des termes :

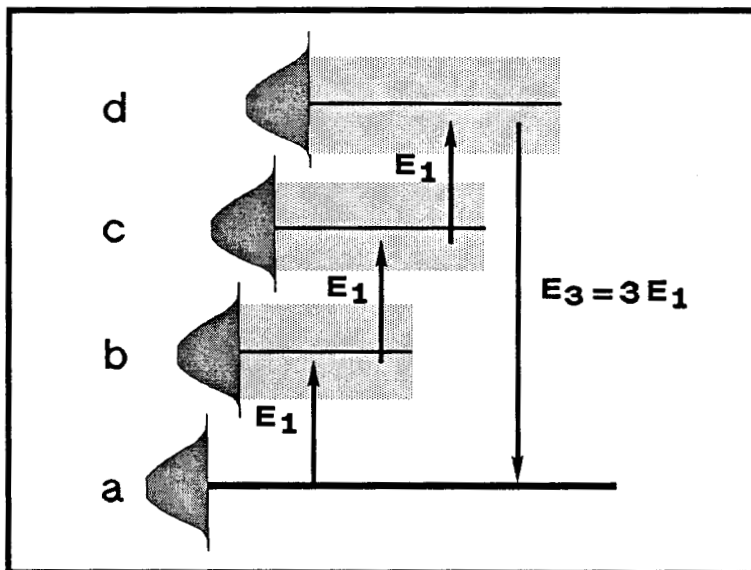
$$\frac{1}{\omega_{ba} - \omega} ; \frac{1}{\omega_{ca} - 2\omega} ; \frac{1}{\omega_{da} - 3\omega} \quad (2.34)$$

Selon la position relative de l'état peuplé par rapport aux autres niveaux d'énergie, la molécule possède quatre voies possibles pour réaliser la conversion de fréquence. On a schématisé ces quatre cas, correspondant à chaque dénominateur de (2.32), sur les figures II.1 à II.4.

Les états "b", "c" et "d" de la molécule ayant une durée de vie finie, on associe à chacun d'entre eux une énergie de largeur non-nulle représentée par une zone ombrée. La ligne pleine, qui coïncide avec le maximum de la courbe, correspond à un état stationnaire de la molécule; la molécule isolée peut rester indéfiniment dans cet état. En dehors de l'état stationnaire (zones grisées), le principe de conservation de l'énergie impose que le séjour de la molécule soit limité à la durée Δt permise par l'inégalité d'Heisenberg.

* l'état peuplé est l'état fondamental

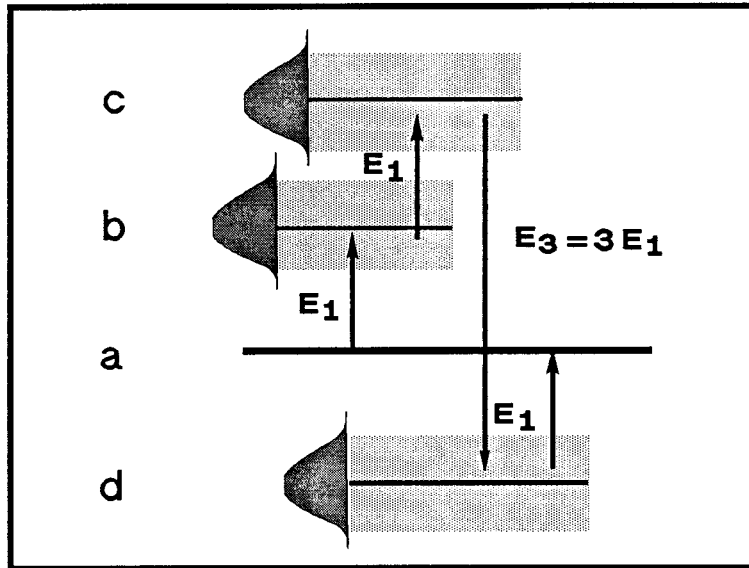
Figure II.1



$$(\omega_{ba} - \omega) (\omega_{ca} - 2\omega) (\omega_{da} - 3\omega)$$

* l'état peuplé est le premier état excité

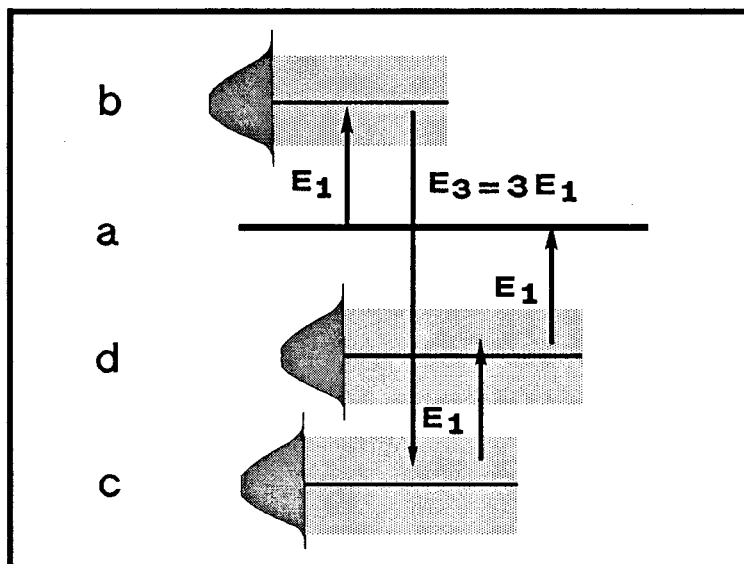
Figure II.2



$$(\omega_{b a} - \omega) (\omega_{d a} + \omega) (\omega_{c a} - 2\omega)$$

* l'état peuplé est le deuxième état excité

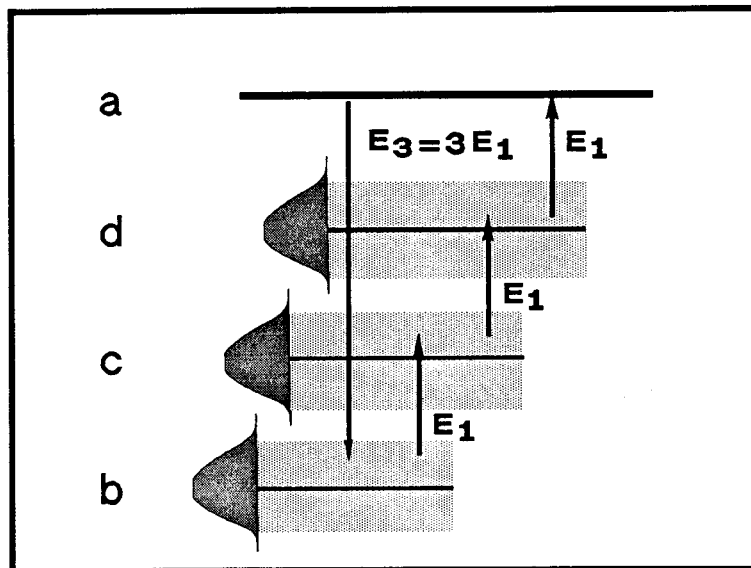
Figure II.3



$$(\omega_{b a} + \omega) (\omega_{d a} - \omega) (\omega_{c a} + 2\omega)$$

* l'état peuplé est le dernier état excité

Figure II.4



$$(\omega_{ba} + \omega) (\omega_{ca} + 2\omega) (\omega_{da} + 3\omega)$$

A la suite de l'absorption ou de l'émission de chaque photon, les niveaux "b", "c" et "d" sont utilisés par la molécule comme états relais. La durée d'une étape étant de l'ordre de 10^{-16} s dans le domaine des longueurs d'onde qui nous intéresse (ultra violet), on peut ramener la susceptibilité non-linéaire d'ordre trois à un produit de quatre probabilités de transition P .

$$\begin{aligned}
 \chi^{(3)} \propto & P \text{ a} \rightarrow \text{b} \text{ par unité de temps} \\
 & \times P \text{ b} \rightarrow \text{c} \text{ en un temps de } 10^{-16} \text{ s} \\
 & \times P \text{ c} \rightarrow \text{d} \text{ en un temps de } 10^{-16} \text{ s} \\
 & \times P \text{ d} \rightarrow \text{a} \text{ en un temps de } 10^{-16} \text{ s}
 \end{aligned}
 \tag{2.35}$$

Si l'on raisonne en terme de photon absorbé ou généré, il faut pondérer les trois premiers termes par la puissance de

l'onde incidente. Nous obtenons, ainsi, un signal harmonique évoluant comme le cube de la puissance fondamentale du laser; nous reviendrons ultérieurement sur cet aspect.

L'expression (2.31), sur laquelle nous avons basé notre interprétation, a été obtenue en négligeant les termes de relaxation. Son utilisation est justifiée lorsque les fréquences du rayonnement se trouvent suffisamment éloignées des fréquences de Bohr de la molécule; on parle alors de conversion non-résonnante.

La mise à profit d'une ou plusieurs résonances permet, a priori, de gagner plusieurs ordres de grandeur sur l'amplitude de la susceptibilité. Il est ainsi possible d'atteindre des taux de conversion satisfaisants à partir de sources laser de puissance relativement modeste.

II 4 AMPLIFICATION PAR RESONANCE

Dans le cas d'une conversion résonnante, il est avantageux de décomposer la susceptibilité non-linéaire $\chi^{(3)}(3\omega)$ de manière à faire apparaître les parties résonnante et non-résonnante.

$$\chi^{(3)}(3\omega) = \chi_R^{(3)}(3\omega) + \chi_{NR}^{(3)}(3\omega) \quad (2.36)$$

$\chi_R^{(3)}(3\omega)$ correspond aux termes de (2.30) qui ont, à Γ près, un dénominateur nul ou quasi nul.

$\chi_{NR}^{(3)}(3\omega)$ représente les termes restants, c'est-à-dire toutes les contributions non-résonnantes de la susceptibilité.

II 4.1 Résonance à un photon

La résonance à un photon intervient lorsque la fréquence du rayonnement incident coïncide avec la fréquence de Bohr d'un niveau d'énergie couplé par un moment de transition avec un état peuplé.

Si l'on note A l'état peuplé, B l'état résonnant, on obtient à partir de (2.30), où l'on a fixé les indices courants α, β aux valeurs A et B et opéré les permutations d'indices nécessaires, l'expression de $\chi_{R1}^{(3)}(3\omega)$:

$$\chi_{R1}^{(3)}(3\omega) = \frac{N \rho_A^{(0)}}{\hbar^3 \epsilon_0} \frac{1}{\Delta_{BA} - i\Gamma_{BA}} \sum_{\gamma\delta} \frac{\langle \mu \rangle_A \langle \mu \rangle_\delta \langle \mu \rangle_\gamma \langle \mu \rangle_{BA}}{(\omega_{\gamma A} - 2\omega)} \left(\frac{1}{\omega_{\delta A} + \omega} + \frac{1}{\omega_{\delta A} - \omega} + \frac{1}{\omega_{\delta A} - 3\omega} \right) \quad (2.37)$$

avec $\Delta_{BA} = \omega_{BA} - \omega$ correspondant au désaccord à résonance.

On constate que la partie résonnante de la susceptibilité ne dépend plus de la densité totale d'état, mais est uniquement reliée à la population $N\rho_A^{(0)}$ qui correspond à la proportion de molécules qui participent à la transition résonnante; on parlera alors de "densité résonnante".

La conversion en résonance à un photon est peu utilisée dans la mesure où la condition de résonance coïncide avec la condition d'absorption des photons de l'onde fondamentale. Toute absorption linéaire prive la conversion de fréquence d'un de ses photons. De plus, elle provoque un pompage optique important de l'état fondamental vers l'état résonnant qui tend, entre autres, à saturer la susceptibilité.

II 4.2 Résonance à deux photons

La condition de résonance à deux photons s'exprime par :

$$\Delta_{CA} = \omega_{CA} - 2\omega = 0 \quad (2.38)$$

où C représente l'état résonnant.

Dans ce cas, c'est le cumul de l'énergie de deux photons incidents qui correspond à un état d'énergie de la molécule.

$$\chi_{R2}^{(3)}(3\omega) = \frac{N\rho_A^{(0)}}{\hbar^3 \epsilon_0} \left(\frac{1}{\Delta_{CA} - i\Gamma_{CA}} \right) \sum_{\beta\delta} \frac{\langle \mu \rangle_{A\delta} \langle \mu \rangle_{\delta C} \langle \mu \rangle_{C\beta} \langle \mu \rangle_{\beta A}}{\omega_{\beta A} - \omega} \quad (2.39)$$

$$\left(\frac{1}{\omega_{\delta A} - 3\omega} + \frac{1}{\omega_{\delta A} + \omega} \right)$$

Ce type de conversion est très attrayant dans la mesure où l'absorption à deux photons est faible comparée à l'absorption linéaire.

II 4.3 Résonance à trois photons

Dans ce cas de figure, c'est la fréquence de l'onde harmonique qui coïncide avec la pulsation de Bohr d'un état excité.

En notant A l'état peuplé et D l'état résonnant, (2.30) conduit à :

$$\chi_{R3}^{(3)}(3\omega) = \frac{N\rho_A^{(0)}}{\hbar^3 \epsilon_0} \left(\frac{1}{\Delta_{DA} - i\Gamma_{DA}} \right) \sum_{\beta\gamma} \frac{\langle \mu \rangle_{AD} \langle \mu \rangle_{D\gamma} \langle \mu \rangle_{\gamma\beta} \langle \mu \rangle_{\beta A}}{(\omega_{\beta A} - \omega)(\omega_{\gamma A} - 2\omega)} \quad (2.40)$$

avec $\Delta_{DA} = \omega_{DA} - 3\omega$

Cette fois encore, on constate que la contribution des populations des niveaux non-résonnants disparaît pour ne laisser dans l'expression (2.40) que les densités résonnantes.

Notons que, à cause de l'existence d'un moment dipolaire $\langle \mu \rangle_{AD}$ différent de zéro, la conversion résonnante à trois photons s'accompagne inévitablement d'une auto-absorption de l'onde harmonique générée.

Dans le chapitre VII, nous montrerons que l'utilisation d'une quasi-résonance à trois photons peut se montrer bien utile lorsque l'on cherche à obtenir les meilleures conditions de propagation de l'onde harmonique.

II 4.4 Discussion

L'amplification par résonance s'interprète par le fait que l'on offre à la molécule la possibilité de séjourner plus de temps dans l'état résonnant ($\gg 10^{-16}$ s) sans pour cela violer le principe de conservation de l'énergie. Ainsi, la probabilité qu'il y ait conversion par unité de temps reste inchangée. Par contre, la durée totale de l'interaction est augmentée.

Considérons l'exemple de la résonance à deux photons décrite en II 4.2. Plaçons-nous tout d'abord dans le cas où la résonance est parfaite, c'est-à-dire lorsque la condition $\Delta_{cA} = 0$ est vérifiée.

La molécule, après avoir absorbé les deux premiers photons du laser en un temps limité à 10^{-16} s, se retrouve dans l'état d'énergie C. A ce stade, trois cas sont envisageables :

- 1er cas :

A la suite d'une relaxation (émission spontanée, collision inélastique), la molécule perd l'énergie emmagasinée avant d'absorber le troisième photon du laser et se trouve ainsi éliminée du mécanisme de conversion;

- 2ème cas :

C'est le cas favorable : l'atome absorbe le 3ème photon du laser sans avoir subi ni collision, ni relaxation d'énergie. Un rayonnement cohérent est alors émis à la fréquence triple de celle du laser;

- 3ème cas :

La molécule subit une collision avec son environnement; l'énergie du système reste inchangée mais la phase du laser est "oubliée" par la molécule.

Rappelons que deux états d'énergie couplés par un champ laser évoluent avec des phases relatives correspondant à la fréquence de Bohr de la transition. Pour une transition à deux photons, la pulsation interne du système est égale au double de la pulsation du laser; par l'intermédiaire de ce terme de phase, la molécule est capable de mémoriser la phase du laser.

Au cours du choc, la cohérence de la molécule est détruite, par conséquent celle-ci n'est plus en mesure, lors de la réception du troisième photon, de restituer un rayonnement harmonique possédant les mêmes caractéristiques spatiales et temporelles que le laser. On dit alors qu'il y a perte de cohérence par rupture de phase.

Bien entendu, la molécule ne peut conserver la mémoire du laser durant un temps infini. En fait, la phase et l'énergie de l'atome ne seront maintenues que durant le temps Δt fourni par la relation :

$$\Delta t \Gamma = 1 \quad (2.41)$$

où le terme de relaxation Γ est associé à l'élargissement homogène de l'état résonnant. Il englobe la largeur naturelle de l'état ainsi que l'élargissement collisionnel.

Si l'on introduit un désaccord à résonance Δ_{CA} , l'énergie de l'étape résonnante n'est plus définie qu'à $\hbar\Delta_{CA}$ près; il s'ensuit que la durée de cohérence de l'état C se trouve réduite de $\frac{1}{\Gamma}$ à $\frac{1}{|\Delta_{CA} + i\Gamma|}$.

On constate que ce dernier terme apparaît clairement, à un facteur de phase près, dans l'expression de la susceptibilité résonnante à 2 photons (2.39).

II 4.5 Domaine de validité de l'approximation stationnaire

Dans l'absolu, l'approximation stationnaire signifie que la réponse du milieu au champ électromagnétique s'établit de façon instantanée. Ceci est exprimé clairement dans

l'expression de la polarisation notée en (1.13). Concrètement, si l'on considère les molécules soumises au champ en tant qu'oscillateurs, l'approximation revient à supposer que le temps de montée des oscillations est nul; le régime transitoire est négligé.

Lorsque la conversion est non-résonnante, on a vu que les interactions entre le rayonnement et le milieu se déroulent de façon extrêmement rapide ($\approx 10^{-16}$ s). Pour des temps aussi courts, on peut considérer que le milieu réagit de façon quasi-instantanée aux variations du champ électrique.

Lorsqu'intervient une transition résonnante, on offre à la molécule la possibilité de "s'attarder" dans l'état résonnant; la réponse du milieu n'est plus instantanée mais différée. L'approximation stationnaire est donc mal adaptée à gérer les problèmes de résonance.

Il existe cependant une situation où l'approximation est vérifiée : c'est le cas pour lequel le système a atteint le régime stationnaire. Ceci se réalise lorsque le temps de cohérence du laser est bien supérieur au temps de relaxation du système, dès lors que la variation du champ est purement périodique et que le temps de réponse du milieu est dépassé. En terme d'élargissement spectral, ceci revient à écrire :

$$\Delta\omega \ll \Gamma \quad (2.42)$$

où $\Delta\omega$ représente la largeur de raie du laser.

Dans le cas où cette condition n'est pas réalisée, il faut entreprendre le calcul de la susceptibilité dans un cadre non-stationnaire et considérer les diverses sources d'élargissement.

II 5 EFFETS LIES A LA LARGEUR SPECTRALE DU LASER

Jusqu'à présent, nous avons supposé que le rayonnement électromagnétique était caractérisé par une onde monochromatique ou quasi monochromatique. Dans cette partie, nous établirons la réponse du milieu à une onde possédant une certaine étendue spectrale. Plus précisément, nous calculerons la susceptibilité résonnante induite par un laser de grande largeur spectrale. Le lecteur trouvera à ce sujet un certain nombre de publications portant sur la conversion harmonique de fréquence à partir de lasers multimodes; nous citerons en particulier les articles de Anikin et al /1976¹/, Stappaerts et al /1976/, Leubner et al /1981/.

Par grande largeur spectrale, nous entendons un rayonnement possédant une durée de cohérence petite vis-à-vis du temps de relaxation du milieu, c'est-à-dire :

$$\frac{1}{\Delta\omega} \ll \frac{1}{\Gamma} \quad (2.43)$$

Cette inégalité est souvent vérifiée dans les expériences de conversion de fréquence en milieu gazeux. En effet, d'une part les phénomènes non-linéaires nécessitent l'utilisation de sources de forte énergie; les lasers employés sont en général pulsés et multimodes - d'autre part, afin de limiter les pertes par absorption, le milieu gazeux se trouve sous faible pression; les temps de relaxation, liés au taux de collisions, sont longs.

II 5.1 Résonance à deux photons

II 5.1.1 La molécule et ses moments de transition

Le milieu est assimilé à un gaz dont les molécules sont en résonance à deux photons avec le champ du laser. Chaque molécule possède un état fondamental A, un état résonnant C et une série d'états non-résonnants ℓ .

Les niveaux ℓ sont les états discrets de la molécule couplés à l'état A ou C par un moment de transition différent de zéro :

$$\langle \mu \rangle_{C\ell} \neq 0 ; \langle \mu \rangle_{A\ell} \neq 0 \quad (2.44)$$

Par commodité, nous supposerons que l'élément de matrice de l'opérateur dipolaire est nul entre les états résonnants :

$$\langle \mu \rangle_{AC} = \langle \mu \rangle_{CA} = 0 \quad (2.45)$$

Notons que cette dernière égalité est tout à fait vérifiée pour une molécule homopolaire telle que l'azote. En effet, les règles de sélection sur les transitions à deux photons imposent que les états couplés aient même parité.

Par un choix de phase convenable, on s'arrangera pour que tous les éléments de matrice de μ soient réels /Hougen 1970/. Par conséquent, l'opérateur du moment dipolaire sera associé à une matrice symétrique dans la base des vecteurs d'état :

$$\begin{aligned} \langle \mu \rangle_{C \ell} &= \langle \mu \rangle_{\ell C} \\ \langle \mu \rangle_{A \ell} &= \langle \mu \rangle_{\ell A} \end{aligned} \quad (2.46)$$

II 5.1.2 L'opérateur densité dépendant du temps

Comme précédemment, nous exprimons $H_1(t)$, l'opérateur de perturbation, en fonction de ses deux composantes spectrales :

$$H_1(t) = \frac{1}{2} \left(H_{1\omega} e^{-i\omega t} + H_{1-\omega} e^{i\omega t} \right) \quad (2.47)$$

Désormais, les amplitudes $H_{1\omega_i}$ et $H_{1-\omega_i}$ sont dépendantes du temps. Elles restent toutefois lentement variables devant les termes périodiques en $e^{-i\omega_i t}$ et $e^{i\omega_i t}$ (approximation de l'enveloppe variant lentement).

De même l'opérateur densité s'écrit sous la forme :

$$\rho(t) = \frac{1}{2} \sum_j \left(\sigma_{\omega_j} e^{-i\omega_j t} + \sigma_{-\omega_j}^* e^{i\omega_j t} \right) \quad (2.48)$$

(notons que les ω_j étant des combinaisons linéaires des fréquences du seul champ ω , on peut les noter sous la forme $m\omega$ pour m valant 1, 2 ou 3).

Dans la mesure où l'on s'intéresse uniquement à la génération de troisième harmonique, on ne conservera, dans le développement de ρ , que les éléments de matrice conduisant le système dans l'état $\langle \sigma_3^{\omega} \rangle$.

Sachant que $\langle \rho(t) \rangle_{nn}$, doit vérifier la relation d'hermiticité, on a :

$$\langle \rho(t) \rangle_{nn'} = \langle \rho^*(t) \rangle_{n'n} \quad (2.49)$$

L'expression de $\langle \rho(t) \rangle$ est décrite de la manière suivante :

$$\langle \rho(t) \rangle_{nn'} = \langle \sigma_0 \rangle_{nn'} + \frac{1}{2} \sum_{m=1}^3 \left(\langle \sigma_{m\omega} \rangle_{nn'} e^{-im\omega t} + \langle \sigma_{-m\omega}^* \rangle_{n'n} e^{im\omega t} \right) \quad (2.50)$$

$$\langle \rho(t) \rangle_{nn} = \langle \sigma_0 \rangle_{nn}$$

avec σ non-hermitique.

II 5.1.3 Equations de Bloch

Afin de calculer les solutions stationnaires de l'équation d'évolution, on a utilisé un développement de ρ en série perturbative. Cette méthode est valable dans la mesure où il existe une hiérarchie entre les différents termes, telle que :

$$\rho^{(0)} \gg \rho^{(1)} \gg \rho^{(2)} \gg \rho^{(3)} \gg \dots \gg \rho^{(n)} \gg \dots \quad (2.51)$$

D'après les équations (2.18-2.20), on constate que la mise à profit d'une transition résonnante, en l'occurrence ici une résonance à deux photons, peut rendre prépondérant le terme $\rho^{(2)}$, via sa composante $\rho_{2\omega}^{(2)}$, par rapport aux termes $\rho^{(1)}$ et $\rho^{(3)}$. Ceci a pour effet de briser la validité de la relation (2.51).

Par conséquent, nous traiterons le problème en dehors de la théorie des perturbations en considérant les termes $\rho^{(2)}$ petits devant $\rho^{(0)}$ et grands vis-à-vis des autres termes.

Pour ce faire, on remplace dans l'équation de Liouville $H_1(t)$ et $\rho(t)$ par les expressions (2.47) et (2.50). Ceci nous mène au système d'équations différentielles :

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \left(\sum_j \sigma_{\omega_j} e^{-i\omega_j t} \right) &= \left[H_0, \sum_i \sigma_{\omega_i} e^{-i\omega_i t} \right] \\
 &+ \frac{1}{2} \left[H_{1\omega}, \sum_i \sigma_{\omega_i} e^{-i(\omega_i + \omega)t} \right] \\
 &+ \frac{1}{2} \left[H_{1-\omega}, \sum_i \sigma_{\omega_i} e^{-i(\omega_i - \omega)t} \right]
 \end{aligned} \quad (2.52)$$

Ce système d'équations doit être vérifié quel que soit t ; ainsi l'égalité est réalisée lorsque les termes à gauche et à droite de l'égalité évoluent à la même pulsation (en raison de l'approximation de l'enveloppe variant lentement, on parlera plutôt d'égalité entre mêmes "bandes de Fourier"). En limitant le développement au terme harmonique, on obtient :

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{\partial \sigma_0}{\partial t} &= [H_0, \sigma_0] + \frac{1}{2} [H_{1-\omega}, \sigma_\omega] \\
 i\hbar \left(\frac{\partial \sigma_\omega}{\partial t} - i\omega \sigma_\omega \right) &= [H_0, \sigma_\omega] + \frac{1}{2} [H_{1\omega}, \sigma_0] + \frac{1}{2} [H_{1-\omega}, \sigma_{2\omega}] \\
 i\hbar \left(\frac{\partial \sigma_{2\omega}}{\partial t} - 2i\omega \sigma_{2\omega} \right) &= [H_0, \sigma_{2\omega}] + \frac{1}{2} [H_{1\omega}, \sigma_\omega] + \frac{1}{2} [H_{1-\omega}, \sigma_{3\omega}] \\
 i\hbar \left(\frac{\partial \sigma_{3\omega}}{\partial t} - 3i\omega \sigma_{3\omega} \right) &= [H_0, \sigma_{3\omega}] + \frac{1}{2} [H_{1\omega}, \sigma_{2\omega}]
 \end{aligned} \quad (2.53)$$

Les opérateurs σ_ω et $\sigma_{3\omega}$ décrivent l'état du système en dehors de la résonance; ces expressions seront donc calculées en tant que solutions stationnaires des équations (2.53) en négligeant les termes de relaxation. L'équation sur le terme résonnant, quant à elle, sera résolue en dehors de l'approximation stationnaire.

En remplaçant H_1 par son expression introduite en (2.22), on exprime les équations du mouvement sur les composantes spectrales de la matrice densité dans la base des vecteurs d'état de H_0 :

*** Equations sur les termes non-résonnants :**

$$\begin{aligned}
 (\omega - \omega_{\ell A}) \langle \sigma_\omega \rangle_{\ell A} &= \frac{1}{2\hbar} \sum_{k=A, C} \left\{ \mathcal{E}_\omega \left(\langle \mu \rangle_{\ell k} \langle \sigma_0 \rangle_{kA} - \langle \sigma_0 \rangle_{\ell k} \langle \mu \rangle_{kA} \right) \right. \\
 &\quad \left. + \mathcal{E}_{-\omega}^* \left(\langle \mu \rangle_{\ell k} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{kA} - \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{\ell k} \langle \mu \rangle_{kA} \right) \right\} \quad (2.54)
 \end{aligned}$$

$$(3\omega - \omega_{\ell A}) \langle \sigma_{3\omega} \rangle_{\ell A} = \frac{1}{2\hbar} \sum_{k=A, C} \mathcal{E}_\omega \left(\langle \mu \rangle_{\ell k} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{kA} - \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{\ell k} \langle \mu \rangle_{kA} \right) \quad (2.55)$$

Les expressions de $\langle \sigma_\omega \rangle_{\ell C}$ et $\langle \sigma_{3\omega} \rangle_{\ell C}$ se déduisent de ces quantités, en remplaçant simplement A par C.

Compte-tenu des relations (2.44-2.46), les solutions sont :

$$\begin{aligned} \langle \sigma_{\omega} \rangle_{\ell A} &= \frac{2\mathcal{E}_{\omega} \langle \mu \rangle_{\ell A} \langle \sigma_0 \rangle_{AA} + \mathcal{E}_{-\omega}^* \langle \mu \rangle_{\ell C} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA}}{2\hbar(\omega - \omega_{\ell A})} \\ \langle \sigma_{\omega} \rangle_{A \ell} &= - \frac{2\mathcal{E}_{\omega} \langle \mu \rangle_{A \ell} \langle \sigma_0 \rangle_{AA} + \mathcal{E}_{-\omega}^* \langle \mu \rangle_{C \ell} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{AC}}{2\hbar(\omega + \omega_{\ell A})} \\ \langle \sigma_{\omega} \rangle_{\ell C} &= \frac{2\mathcal{E}_{\omega} \langle \mu \rangle_{\ell C} \langle \sigma_0 \rangle_{CC} + \mathcal{E}_{-\omega}^* \langle \mu \rangle_{\ell A} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{AC}}{2\hbar(\omega - \omega_{\ell C})} \\ \langle \sigma_{\omega} \rangle_{C \ell} &= - \frac{2\mathcal{E}_{\omega} \langle \mu \rangle_{C \ell} \langle \sigma_0 \rangle_{CC} + \mathcal{E}_{-\omega}^* \langle \mu \rangle_{A \ell} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA}}{2\hbar(\omega + \omega_{\ell C})} \end{aligned} \quad (2.56)$$

et

$$\begin{aligned} \langle \sigma_{3\omega} \rangle_{\ell A} &= \frac{\mathcal{E}_{\omega} \langle \mu \rangle_{\ell C} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA}}{2\hbar(3\omega - \omega_{\ell A})} \\ \langle \sigma_{3\omega} \rangle_{A \ell} &= - \frac{\mathcal{E}_{\omega} \langle \mu \rangle_{C \ell} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{AC}}{2\hbar(3\omega + \omega_{\ell A})} \\ \langle \sigma_{3\omega} \rangle_{\ell C} &= \frac{\mathcal{E}_{\omega} \langle \mu \rangle_{\ell A} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{AC}}{2\hbar(3\omega - \omega_{\ell C})} \\ \langle \sigma_{3\omega} \rangle_{C \ell} &= - \frac{\mathcal{E}_{\omega} \langle \mu \rangle_{A \ell} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA}}{2\hbar(3\omega + \omega_{\ell C})} \end{aligned} \quad (2.57)$$

* Equations sur les termes résonnants et anti-résonnants :

L'équation (2.53) se met sous la forme :

$$\begin{aligned} & \left(\frac{\partial}{\partial t} + i(\Delta_{CA} + \Gamma_{CA}) \right) \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA} = \\ & \frac{1}{2i\hbar} \sum_{\ell} \left\{ \varepsilon_{\omega} \left(\langle \mu \rangle_{C\ell} \langle \sigma_{\omega} \rangle_{\ell A} - \langle \mu \rangle_{\ell A} \langle \sigma_{\omega} \rangle_{C\ell} \right) \right. \\ & \left. + \varepsilon_{-\omega}^* \left(\langle \mu \rangle_{C\ell} \langle \sigma_{3\omega} \rangle_{\ell A} - \langle \mu \rangle_{\ell A} \langle \sigma_{3\omega} \rangle_{C\ell} \right) \right\} \end{aligned} \quad (2.58)$$

(le terme anti-résonnant $\langle \sigma_{2\omega} \rangle_{AC}$ se déduit de (2.58) en échangeant A et C).

On remplace les solutions (2.56) et (2.57) aux pulsations ω et 3ω dans l'équation (2.58). En se plaçant dans les conditions de quasi-résonance ($\omega_{AC} \simeq 2\omega$), on obtient l'expression finale de l'équation d'évolution sur le terme résonnant :

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + i(\Delta_{CA} - \delta\omega_{CA}) + \Gamma_{CA} \right) \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA} = \frac{1}{2i\hbar^2} r_{CA} n \varepsilon_{\omega}^2 \quad (2.59)$$

où $n = \langle \sigma_0 \rangle_{CC} - \langle \sigma_0 \rangle_{AA}$ représente la différence de population relative, entre l'état A et l'état C, lié au pompage optique du niveau résonnant.

La quantité $\delta\omega_{CA}$ fait apparaître l'effet Stark dynamique provoqué par un couplage intense du champ avec la molécule. Celui-ci est responsable du déplacement relatif des niveaux d'énergie A et C :

$$\delta\omega_{CA} = \frac{1}{4\hbar} (\alpha_C - \alpha_A) |\varepsilon_{\omega}|^2 \quad (2.60)$$

où α_A et α_C s'écrivent :

$$\alpha_A = \sum_{\ell} \frac{\langle \mu \rangle_{\ell A}^2}{\hbar} \left(\frac{1}{\omega - \omega_{\ell A}} - \frac{1}{\omega + \omega_{\ell A}} \right) \quad (2.61)$$

$$\alpha_C = \sum_{\ell} \frac{\langle \mu \rangle_{C \ell}^2}{\hbar} \left(\frac{1}{\omega + \omega_{C \ell}} - \frac{1}{\omega - \omega_{C \ell}} \right)$$

La quantité r_{CA} est définie par :

$$r_{CA} = \sum_{\ell} \frac{\langle \mu \rangle_{C \ell} \langle \mu \rangle_{\ell A}}{\omega - \omega_{\ell A}} \quad (2.62)$$

où la sommation sur ℓ porte sur tous les états de la molécule.

Il nous reste désormais à exprimer les termes à fréquence nulle $\langle \sigma_0 \rangle_{CC}$ et $\langle \sigma_0 \rangle_{AA}$.

* Equations sur les termes de population

La redistribution des populations entre l'état fondamental A et l'état résonnant C est décrite par les éléments de matrice $\langle \sigma \rangle_{CC}$ et $\langle \sigma \rangle_{AA}$. Les composantes d'ordre 2 traduisent l'évolution du taux d'occupation des niveaux à la pulsation 2ω . Elles représentent des quantités non mesurables. Si l'on veut définir une population qui ait un sens, il nous faut considérer la moyenne des éléments diagonaux de σ sur toutes les fréquences du système. Autrement dit, il nous faut calculer les termes constants de σ , c'est-à-dire les éléments de matrice diagonaux de σ_0 .

D'après (2.53), on a :

$$\frac{\partial \langle \sigma_0 \rangle_{CC}}{\partial t} = \frac{\mathcal{E}_{-\omega}^*}{4i\hbar} \sum_{\ell} \left(\langle \mu \rangle_{C\ell} \langle \sigma_{\omega} \rangle_{\ell C} - \langle \sigma_{\omega} \rangle_{C\ell} \langle \mu \rangle_{\ell C} \right) + \left(\frac{\partial \langle \sigma_0 \rangle_{CC}}{\partial t} \right)_{rel.} \quad (2.63)$$

$$\frac{\partial \langle \sigma_0 \rangle_{AA}}{\partial t} = \frac{\mathcal{E}_{-\omega}^*}{4i\hbar} \sum_{\ell} \left(\langle \mu \rangle_{A\ell} \langle \sigma_{\omega} \rangle_{\ell A} - \langle \sigma_{\omega} \rangle_{A\ell} \langle \mu \rangle_{\ell A} \right) + \left(\frac{\partial \langle \sigma_0 \rangle_{AA}}{\partial t} \right)_{rel.}$$

On remplace $\langle \sigma_{\omega} \rangle_{\ell C}$, $\langle \sigma_{\omega} \rangle_{C\ell}$, $\langle \sigma_{\omega} \rangle_{\ell A}$ et $\langle \sigma_{\omega} \rangle_{A\ell}$ par leurs expressions données en (2.56). En négligeant le terme anti-résonnant $\langle \sigma_{2\omega} \rangle_{AC}$ vis-à-vis du terme résonnant $\langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA}$ on obtient :

$$\frac{\partial \langle \sigma_0 \rangle_{CC}}{\partial t} = - \frac{r_{CA}}{4\hbar^2} \mathcal{Jm} \left(\mathcal{E}_{-\omega}^{*2} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA} \right) + \left(\frac{\partial \langle \sigma_0 \rangle_{CC}}{\partial t} \right)_{rel.} \quad (2.64)$$

$$\frac{\partial \langle \sigma_0 \rangle_{AA}}{\partial t} = \frac{r_{CA}}{4\hbar^2} \mathcal{Jm} \left(\mathcal{E}_{-\omega}^{*2} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA} \right) + \left(\frac{\partial \langle \sigma_0 \rangle_{AA}}{\partial t} \right)_{rel.}$$

La différence des deux dernières expressions nous donne l'équation d'évolution des populations relatives entre le niveau résonnant et le niveau fondamental.

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \tau^{-1} (n - n_0) = - \frac{r_{CA}}{2\hbar^2} \mathcal{Jm} \left(\mathcal{E}_{-\omega}^{*2} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA} \right) \quad (2.65)$$

où $n_0 = \langle \sigma_0^{(0)} \rangle_{CC} - \langle \sigma_0^{(0)} \rangle_{AA}$ représente la différence relative des populations à l'équilibre thermique.

Le terme de relaxation τ^{-1} , introduit dans l'expression (2.10), est supposé identique pour les deux états A et B.

Notons que $\langle \sigma_{2\omega} \rangle$ étant relié à n , les équations (2.59) et (2.65) forment un système couplé.

Il a été vu dans cette partie que la conversion résonnante à deux photons s'accompagne de deux effets secondaires : la redistribution des populations entre les niveaux d'énergie en résonance avec le champ, ainsi que le déplacement de ces niveaux par effet Stark dynamique. Notons que, lorsque le champ laser est suffisamment intense, ces effets peuvent mener à une saturation de la susceptibilité résonnante /Stappaerts 1975, Anikin et al 1976², Georges et al 1977, Scheingraber et Vidal 1981/.

II 5.1.4 Polarisation induite.

Nous connaissons, par l'intermédiaire des relations (2.59) et (2.65), l'évolution dans le temps du système en résonance ou en quasi-résonance avec le champ du laser.

Nous pouvons désormais exprimer, de même qu'au paragraphe II 3.3, la polarisation induite à la fréquence harmonique en fonction des éléments de matrice de l'opérateur densité :

$$\rho_{3\omega}^{(3)}(t) = N \text{Tr}(\mu \sigma_{3\omega}) \quad (2.66)$$

Par rapport à l'expression (2.28) écrite pour une solution stationnaire, on a remplacé $\rho_{3\omega}$ (indépendant du temps) par $\sigma_{3\omega}$ (dépendant du temps).

En remplaçant les éléments de matrice de $\sigma_{3\omega}$ par leur expression calculée en (2.57), et en négligeant les termes anti résonnants devant les termes résonnants, on obtient :

$$\rho_{3\omega}^{(3)}(t) = \frac{1}{2\hbar} N r'_{CA} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA} \mathcal{E}_\omega \quad (2.67)$$

avec :

$$r'_{CA} = \sum_{\ell} \langle \mu \rangle_{A\ell} \langle \mu \rangle_{\ell C} \left(\frac{1}{\omega - \omega_{\ell C}} - \frac{1}{\omega + \omega_{\ell A}} \right) \quad (2.68)$$

II 5.1.5 Retour vers l'approximation stationnaire

L'influence de la largeur de raie du laser sur l'évolution du milieu se manifeste par l'intermédiaire des dérivées temporelles des éléments de matrice de ρ . A partir des expressions (2.59) et (2.65), on peut définir les conditions dans lesquelles l'approximation stationnaire peut être retrouvée.

En ce qui concerne l'équation (2.59), le terme $\frac{\partial \sigma_{2\omega}^{(2)}}{\partial t}$ pourra être négligé dès lors que le temps de cohérence du laser est supérieur au temps de relaxation des cohérences donné par $\frac{1}{\Gamma}$.

En ce qui concerne l'équation (2.65), le terme $\frac{\partial n}{\partial t}$ pourra être annulé si le temps de cohérence du laser est petit devant le temps τ de relaxation des populations.

Dans le cas où l'approximation stationnaire est justifiée, c'est-à-dire dans la mesure où les deux conditions précédentes sont vérifiées, on peut reformuler les équations (2.59) et (2.65) de la manière suivante :

$$\left((\Delta_{CA} - \delta\omega_{CA}) - i\Gamma_{CA} \right) \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA} = \frac{1}{2\hbar^2} n r_{CA} \mathcal{E}_\omega^2 \quad (2.69)$$

$$\tau(n - n_0) = - \frac{1}{2\hbar^2} r_{CA} \Im \left(\mathcal{E}_\omega^{*2} \langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA} \right)$$

Ce jeu d'équations nous fournit la différence de population relative des niveaux A et C :

$$n = \frac{n_0}{1 + \frac{1}{4\hbar^3} r_{CA}^2 |\mathcal{E}|^4 \frac{\Gamma_{CA}/\tau}{(\Delta_{CA} - \delta\omega_{CA})^2 + \Gamma_{CA}^2}} \quad (2.70)$$

On constate qu'à résonance exacte, le pompage optique en champ faible évolue comme le carré de la puissance de l'onde laser. En champ fort, la population relative des deux états couplés par le champ peut atteindre la valeur de saturation :

$$n_{sat.} = \frac{n_0}{1 + \frac{4}{\hbar} \frac{\Gamma_{CA}}{\tau} \left(\frac{r_{CA}}{\alpha_C - \alpha_A} \right)^2} \quad (2.71)$$

En remplaçant dans (2.67), $\langle \sigma_{2\omega}^{(2)} \rangle_{CA}$ par sa valeur déduite de (2.69), on calcule la valeur de la susceptibilité non-linéaire à la pulsation 3ω à l'aide de l'expression (2.27) :

$$\chi_{R2}^{(3)}(3\omega) = \frac{N \left(\langle \sigma_0 \rangle_{CC} - \langle \sigma_0 \rangle_{AA} \right)}{\hbar^3 \epsilon_0} \frac{1}{\Delta_{CA} - \delta\omega_{CA} - i\Gamma_{CA}} \quad (2.72)$$

$$\sum_{\beta\delta} \frac{\langle \mu \rangle_{A\delta} \langle \mu \rangle_{\delta C} \langle \mu \rangle_{C\beta} \langle \mu \rangle_{\beta A}}{\omega_{\delta A} - \omega} \left(\frac{1}{\omega_{\delta A} - 3\omega} + \frac{1}{\omega_{\delta A} + \omega} \right)$$

Cette expression se distingue de celle obtenue en (2.39), lors du calcul stationnaire, par l'apparition de l'effet Stark dynamique où Δ_{cA} est remplacé désormais par $\Delta_{cA} - \delta\omega_{cA}$ et par le pompage optique à deux photons où $\langle \sigma_0 \rangle_{cC} - \langle \sigma_0 \rangle_{AA}$ est substitué à $\rho_A^{(0)}$.

II 5.1.6 Susceptibilité équivalente

La polarisation, notée en (2.67) sous sa forme générale reste une quantité difficilement exprimable sous forme analytique dans la mesure où le terme $\langle \sigma_{2\omega} \rangle_{cA}$ englobe les effets d'un grand nombre de phénomènes reliés à la cohérence relative du milieu par rapport à celle du laser.

Dans le souci de simplifier les calculs, l'expression de la polarisation sera développée en posant les hypothèses suivantes :

- le pompage optique à deux photons est négligeable; le seul état peuplé est l'état fondamental de population

$$N \langle \sigma_0 \rangle_{AA} = N;$$

- les sources d'élargissement sont, d'une part, l'étendue spectrale du rayonnement laser et, d'autre part, l'élargissement inhomogène du milieu qui fait qu'à chaque classe de vitesse on associe une polarisation à la fréquence Doppler correspondante.

Pour des molécules ayant une répartition Maxwellienne de vitesse, le nombre des molécules $N(\Delta\omega)$ qui voient la fréquence du laser décalée de $\Delta\omega$ est donné par une distribution de Gauss :

$$N(\Delta\omega) = \frac{N}{\sqrt{\pi} \gamma_D} e^{\left(-\frac{\Delta\omega^2}{\gamma_D^2}\right)} \quad (2.73)$$

où γ_D représente l'élargissement Doppler des niveaux d'énergie.

Compte tenu de ces hypothèses, on intègre l'équation (2.59) afin d'obtenir l'expression du terme résonnant $\langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA}$:

$$\langle \sigma_{2\omega} \rangle_{CA} = \frac{i}{2\hbar^2} \langle \sigma_0 \rangle_{AA} r_{CA} \int_0^t e^{i(\delta\omega_{CA} - \Delta_{CA} + i\Gamma)t'} \mathcal{E}_\omega^2(t-t') dt' \quad (2.74)$$

On reporte ensuite cette expression dans l'équation (2.67). La polarisation pour une classe de vitesses donnée nous est fournie par la quantité :

$$\varphi_{3\omega}^{(3)}(t) = \frac{i}{4\hbar^3} N(\Delta\omega) r_{CA} r'_{CA} \int_0^{+\infty} e^{i(\delta\omega_{CA} - \Delta_{CA} + i\Gamma)t'} \mathcal{E}_\omega^2(t-t') \mathcal{E}(t) dt' \quad (2.75)$$

Pour obtenir la polarisation globale, il nous faut sommer les polarisations engendrées par chacune des classes de vitesses. En d'autres termes, l'expression (2.75) doit être moyennée sur tous les décalages Doppler $\Delta\omega$ de la molécule. En remplaçant $N(\Delta\omega)$ par son expression (2.73), Δ_{CA} par $\Delta_{CA} + 2\Delta\omega$ et en intégrant (2.75) pour $\Delta\omega$ couvrant tout le spectre des pulsations, on aboutit à :

$$\varphi_{3\omega}^{(3)}(t) = \frac{i}{4\hbar^3} N r_{cA} r'_{cA} \int_0^{+\infty} e^{\left(i(\delta\omega_{cA} - \Delta_{cA} + i\Gamma)t' + \frac{\gamma_D^2 t'^2}{4} \right)} \mathcal{E}_\omega^2(t-t') \mathcal{E}_\omega(t) dt' \quad (2.76)$$

Connaissant désormais l'expression de la polarisation, nous sommes confrontés au problème de définir une susceptibilité non-linéaire en régime non-stationnaire.

En effet, jusqu'à présent nous utilisons, pour calculer l'expression de la susceptibilité d'ordre trois, l'expression (2.27) découlant des relations (1.15) :

$$\varphi_{3\omega}^{(3)} = \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathcal{E}_\omega^3 \quad (2.77)$$

Cette relation est désormais obsolète dans la mesure où la polarisation à l'instant "t" n'est plus seulement reliée à la valeur du champ en cet instant mais à toutes les valeurs antérieures de celui-ci.

Toutefois, on peut toujours définir des quantités indépendantes du temps en calculant les valeurs moyennes des amplitudes des champs électriques et des champs de polarisation :

$$\frac{\overline{\varphi_{3\omega}^{(3)}(t) \varphi_{3\omega}^{(3)*}(t)}}{\overline{\mathcal{E}_\omega(t) \mathcal{E}_\omega^*(t)}} \quad (2.78)$$

Du point de vue expérimental, ces valeurs moyennées correspondent à des mesures effectuées par un détecteur, le temps de réponse du détecteur étant supérieur au temps caractéristique de fluctuation de la source laser.

Partant de ces expressions, on définit alors, par analogie avec le calcul développé dans le cadre de l'approximation stationnaire, une susceptibilité équivalente :

$$\chi_{R2,eq}^{(3)}(3\omega) = \epsilon_0 \sqrt{\frac{\overline{\varphi_{3\omega}^{(3)}(t) \varphi_{-3\omega}^{(3)*}(t)}}{3}} \sqrt{\frac{1}{\mathcal{E}_\omega(t) \mathcal{E}_{-\omega}^*(t)}}} \quad (2.79)$$

L'expression $\overline{\varphi_{3\omega}^{(3)}(t) \varphi_{-3\omega}^{(3)*}(t)}$ est calculée à partir de (2.76) :

$$\overline{\varphi_{3\omega}^{(3)}(t) \varphi_{-3\omega}^{(3)*}(t)} = \left(\frac{1}{4\hbar^3} N r_{cA} r'_{cA} \right)^2 \int_0^{+\infty} dt' \int_0^{+\infty} dt'' e^{i(\delta\omega_{cA} - \Delta_{cA} + i\Gamma)t'} e^{-i(\delta\omega_{cA} - \Delta_{cA} - i\Gamma)t''} \quad (2.80)$$

$$\frac{1}{\mathcal{E}_\omega(t) \mathcal{E}_{-\omega}^*(t) \mathcal{E}_\omega^2(t-t') \mathcal{E}_{-\omega}^{*2}(t-t'')} e^{\left(-\frac{\gamma_D^2 t'^2}{4} - \frac{\gamma_D^2 t''^2}{4} \right)}$$

Pour déterminer le terme moyenné, on utilise l'hypothèse ergodique en calculant, à un temps "t" donné, la somme sur les champs rayonnés par les Z différentes sources élémentaires constituant le milieu.

En écrivant la composante spectrale du champ \mathcal{E} sous la forme :

$$\mathcal{E}_\omega(t) = \sum_{i=0}^Z \mathcal{E}_{i\omega}(t) \quad (2.81)$$

où les champs ε_i sont associés à des ondes non-corrélées entre elles, on obtient :

$$\overline{\varepsilon_{\omega}(t)\varepsilon_{\omega}^*(t)\varepsilon_{\omega}^2(t-t')\varepsilon_{\omega}^{*2}(t-t'')} = \sum_{i,j,k,l,m,n=0}^Z \varepsilon_{i\omega}(t) \quad (2.82)$$

$$\varepsilon_{j\omega}^*(t) \varepsilon_{k\omega}(t-t') \varepsilon_{l\omega}^{*2}(t-t'') \varepsilon_{m\omega}(t-t') \varepsilon_{n\omega}^{*2}(t-t'')$$

Cette expression est non-nulle à la condition qu'il n'apparaisse sous le signe somme que des produits $\varepsilon \varepsilon^*$ de mêmes indices. En effet, les champs ε étant cohérents entre eux dans la mesure où ils sont issus d'une même source élémentaire, la somme sur les termes $\varepsilon_i \varepsilon_j$ doit s'annuler pour Z suffisamment grand.

Il s'ensuit que, pour les trois couples d'indices i, j, k , l'expression (2.82) se résume à six termes non-nuls, chacun des termes suivants étant présents deux fois :

$$\overline{\varepsilon_{i\omega}(t)\varepsilon_{i\omega}^*(t) \varepsilon_{j\omega}(t-t')\varepsilon_{j\omega}^*(t-t'')} \overline{\varepsilon_{k\omega}(t-t')\varepsilon_{k\omega}^*(t-t'')} \\ \overline{\varepsilon_{i\omega}(t)\varepsilon_{i\omega}^*(t-t'')} \overline{\varepsilon_{j\omega}(t-t')\varepsilon_{j\omega}^*(t)} \overline{\varepsilon_{k\omega}(t-t')\varepsilon_{k\omega}^*(t-t'')} \quad (2.83) \\ \overline{\varepsilon_{i\omega}(t)\varepsilon_{i\omega}^*(t-t'')} \overline{\varepsilon_{j\omega}(t-t')\varepsilon_{j\omega}^*(t-t'')} \overline{\varepsilon_{k\omega}(t-t')\varepsilon_{k\omega}^*(t)}$$

Avant de poursuivre, il nous faut définir la loi de variation sur l'amplitude de l'onde liée aux fluctuations de phase du laser. Pour un laser multimode, sans synchronisation de mode, nous adopterons une fonction d'autocorrélation correspondant à une distribution gaussienne de bruit /Loudon 1983/ :

$$g(t') = \frac{\overline{\mathcal{E}_\omega(t) \mathcal{E}_\omega^*(t-t')}}{\overline{\mathcal{E}_\omega(t) \mathcal{E}_\omega^*(t)}} = e^{-\frac{t'^2}{\tau_0^2}} \quad (2.84)$$

où la largeur totale de la raie laser (à 1/e de son maximum) est donnée par :

$$\gamma_L = 4 \frac{\sqrt{2}}{\tau_0} \quad (2.85)$$

Finalement, l'expression (2.82) peut être mise sous la forme réduite :

$$\overline{\mathcal{E}_\omega(t) \mathcal{E}_\omega^*(t) \mathcal{E}_\omega^2(t-t') \mathcal{E}_\omega^2(t-t'')} = \left\{ 4g(t')g(t'')g(t'-t'') + 2g^2(t'-t'') \right\} \frac{3}{\overline{\mathcal{E}_\omega(t) \mathcal{E}_\omega^*(t)}} \quad (2.86)$$

En remplaçant g par sa valeur, on peut maintenant donner l'expression de la susceptibilité non-linéaire d'ordre trois d'un milieu possédant un élargissement homogène Γ , et inhomogène γ_D , soumis à l'excitation d'un laser de largeur spectrale γ_L :

$$\chi_{R2,eq}^{(3)}(3\omega) = \frac{1}{\hbar^3 \epsilon_0} N r_{CA} r'_{CA} \sqrt{\frac{I}{(\Delta_{CA} - \delta\omega_{CA})^2 + \Gamma_{CA}^2}} \quad (2.87)$$

On a posé dans cette expression :

$$I = \left((\Delta_{CA} - \delta\omega_{CA})^2 + \Gamma_{CA}^2 \right) \int_0^{+\infty} dt' \int_0^{+\infty} dt'' e^{\left(-\frac{\gamma_D^2 t'^2}{4} - \frac{\gamma_D^2 t''^2}{4} \right)}$$

(2.88)

$$e^{\{i(\delta\omega_{CA} - \Delta_{CA}) - \Gamma\}t'} e^{-\{i(\delta\omega_{CA} - \Delta_{CA}) + \Gamma\}t''}$$

$$\left(4e^{-\frac{t'^2 + t''^2 + (t' - t'')^2}{\tau_0^2}} + 2e^{-\frac{2(t' - t'')^2}{\tau_0^2}} \right)$$

On est tenté d'analyser l'expression (2.87) en regard de celle obtenue en considérant la réponse du milieu indépendante du temps. Pour ce faire, il nous suffit de remplacer r_{CA} et r'_{CA} par leurs valeurs introduites en (2.62), (2.68) et de comparer (2.39) à (2.87). On remarque alors que les deux expressions se distinguent sur deux points, (i) la réponse du milieu fait désormais apparaître l'effet Stark dynamique $\delta\omega_{CA}$ (paragraphe II 5.4) qui vient s'ajouter à l'écart à résonance Δ_{CA} , (ii) néanmoins, la différence majeure réside dans l'apparition de l'intégrale I, qui résume en fait l'influence des diverses sources d'élargissement sur l'efficacité du processus de conversion de fréquence.

Malheureusement, la quantité I ne possède d'expression analytique que dans certains cas limites.

II 5.1.7 Etude aux cas limites

II 5.1.7.1 Conversion non-résonnante

On se place dans le cas où la fréquence du laser est fortement décalée par rapport à la transition résonnante, c'est-à-dire :

$$\begin{aligned} \Delta_{CA} - \delta\omega_{CA} &\ll \Gamma \\ \Delta_{CA} - \delta\omega_{CA} &\gg \gamma_D \end{aligned} \quad (2.89)$$

On trouve alors :

$$I = 6$$

$$\chi_{R2,eq}^{(3)}(3\omega) = \frac{1}{\hbar^3 \epsilon_0} N r_{CA} r'_{CA} \sqrt{\frac{6}{(\Delta_{CA} - \delta\omega_{CA})^2 + \Gamma_{CA}^2}} \quad (2.90)$$

La réponse du milieu ne dépend des sources d'élargissement spectral que par l'intermédiaire du seul terme de relaxation Γ_{CA} .

On peut s'étonner de trouver une augmentation de la susceptibilité d'un facteur $\sqrt{6}$ par rapport au calcul stationnaire (expression (2.39)); ceci tient au fait que le calcul de la susceptibilité équivalente prend en compte les fluctuations d'amplitude de la source laser par l'intermédiaire d'un moyennage tel que celui introduit en (2.78). L'intégration dans le temps se justifie dans la mesure où le temps de réponse du détecteur est supérieur au temps caractéristique τ_0 durant lequel l'amplitude des champs varie. Quand on moyenne la réponse du milieu, on moyenne en fait sur la valeur cubique de l'amplitude du champ laser; il en découle

que les fluctuations au-delà de la valeur moyenne font plus que compenser les fluctuations en deçà de la valeur moyenne. Concrètement, pour une source dont les fluctuations d'amplitude sont dues à des fluctuations de phase aléatoires entre les différents modes (source gaussienne), on a la relation /Loudon 1983/ :



$$\overline{(\mathcal{E}_\omega \mathcal{E}_\omega^*)^n} = n! \overline{\mathcal{E}_\omega \mathcal{E}_\omega^*}^n \quad (2.91)$$

Ceci explique la présence du facteur $\sqrt{3!}$ dans l'expression de I.

II 5.1.7.2 Conversion en milieu à élargissement inhomogène

On se place désormais dans un milieu dont la largeur inhomogène est bien supérieure à l'élargissement homogène, avec un laser de forte largeur spectrale :

$$\frac{1}{\tau_0} \gg \gamma_D \gg \Gamma_{CA} \quad (2.92)$$

A résonance exacte, on obtient :

$$I = \frac{\pi}{2} \frac{\Gamma^2 \tau_0}{\gamma_D}$$

$$\chi_{R2,eq}^{(3)}(3\omega) = \frac{1}{\hbar^3 \epsilon_0} N r_{CA} r'_{CA} \sqrt{\frac{\frac{\pi}{2} \frac{\Gamma^2 \tau_0}{\gamma_D}}{(\Delta_{CA} - \delta\omega_{CA})^2 + \Gamma_{CA}^2}} \quad (2.93)$$

La conversion résonnante touche uniquement les molécules des classes de vitesses contenues dans la largeur spectrale du laser. Diminuer l'élargissement inhomogène permet de ramener plus de classes de vitesses à l'intérieur du profil de la raie laser et ainsi d'exciter plus de molécules, donc d'augmenter le taux de conversion.

II 5.1.7.3 Conversion en milieu à élargissement homogène

Cette fois-ci, c'est l'élargissement homogène qui l'emporte sur l'élargissement inhomogène, avec toujours un laser de forte largeur spectrale :

$$\frac{1}{\tau_0} \gg \Gamma_{CA} \gg \gamma_D \quad (2.94)$$

on obtient à résonance exacte :

$$I = \sqrt{\frac{\pi}{8}} \Gamma_{CA} \tau_0$$

$$\chi_{R2,eq}^{(3)}(3\omega) = \frac{1}{\hbar^3 \epsilon_0} r_{CA} r'_{CA} \sqrt{\frac{\sqrt{\frac{\pi}{8}} \Gamma_{CA} \tau_0}{(\Delta_{CA} - \delta\omega_{CA})^2 + \Gamma_{CA}^2}} \quad (2.95)$$

L'interprétation est semblable à celle faite précédemment dans le sens où la conversion résonnante n'a lieu, dans ce cas, que dans le domaine de fréquence délimité par l'intersection du profil de raie du laser et de l'élargissement homogène du milieu. Il n'est donc pas surprenant de trouver dans l'expression de I la quantité $\Gamma_{CA} \tau_0$ exprimant le rapport entre la largeur homogène du milieu et l'élargissement spectral du laser.

II 5.2 Résonance à trois photons

Dans une démarche identique à celle menée précédemment, on peut étendre le calcul de la susceptibilité équivalente à la conversion harmonique en résonance à trois photons.

Pour un état résonnant D, l'écart à résonance est défini par la relation :

$$\Delta_{DA} = \omega_{DA} - 3\omega \quad (2.96)$$

Les relations (2.44) et (2.46) portant sur les moments de transition de la molécule, s'écrivent désormais sous la forme :

$$\begin{aligned} \langle \mu \rangle_{A\ell} &= \langle \mu \rangle_{\ell A} \neq 0 \\ \langle \mu \rangle_{D\ell} &= \langle \mu \rangle_{\ell D} \neq 0 \end{aligned} \quad (2.97)$$

La relation (2.45), quant à elle, n'a plus d'équivalent. En effet, l'énergie du photon harmonique coïncide désormais avec l'énergie de l'état résonnant; la conversion n'est donc permise qu'à la condition unique où :

$$\langle \mu \rangle_{AD} \neq 0 \quad (2.98)$$

Compte tenu des relations précédentes, le système d'équations différentielles (2.53) nous permet d'établir l'expression des équations de Bloch pour une conversion résonnante à trois photons :

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + i(\Delta_{DA} - \delta\omega_{DA}) + \Gamma_{DA} \right) \langle \sigma_{3\omega} \rangle_{DA} = \frac{1}{2i\hbar^2} r_{DA} n \mathcal{E}_\omega^3 \quad (2.99)$$

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \tau^{-1}(n - n_0) = - \frac{r_{DA}}{2\hbar^2} \Im \left(\mathcal{E}_\omega^{*3} \langle \sigma_{3\omega} \rangle_{DA} \right)$$

Les quantités $\delta\omega_{DA}$ et r_{DA} sont définies à partir des relations (2.60) et (2.62) en remplaçant C par D.

n représente désormais la différence de population relative entre les états D et A :

$$n = \left(\langle \sigma_0 \rangle_{DD} - \langle \sigma_0 \rangle_{AA} \right) \quad (2.100)$$

Prenant en compte les sources d'élargissement relatives au milieu et à la source de rayonnement et négligeant le pompage optique à trois photons, on détermine la cohérence $\langle \sigma_{3\omega} \rangle_{DA}$:

$$\langle \sigma_{3\omega} \rangle_{DA} = \frac{i}{2\hbar^2} \langle \sigma_0 \rangle_{AA} r_{DA} \quad (2.101)$$

$$\int_0^t e^{i(\delta\omega_{DA} - \Delta_{DA} + i\Gamma)t'} \mathcal{E}_\omega^3(t-t') dt'$$

ce qui nous permet, via la relation

$$\varphi_{3\omega}^{(3)}(t) = \frac{1}{2\hbar} N r'_{DA} \langle \sigma_{3\omega} \rangle_{DA} \mathcal{E}_\omega \quad (2.102)$$

de définir, grâce à l'expression (2.79), une susceptibilité équivalente dans le cas du triplement de fréquence par résonance à trois photons :

$$\chi_{R3,eq}^{(3)}(3\omega) = \frac{1}{\hbar^3 \epsilon_0} N r_{DA} r'_{DA} \sqrt{\frac{I}{(\Delta_{DA} - \delta\omega_{DA})^2 + \Gamma_{DA}^2}} \quad (2.103)$$

avec le facteur I défini par :

$$I = 6 \left((\Delta_{DA} - \delta\omega_{DA})^2 + \Gamma_{DA}^2 \right) \int_0^{+\infty} dt' \int_0^{+\infty} dt'' e^{\left(-\frac{\gamma_D^2 t'^2}{4} - \frac{\gamma_D^2 t''^2}{4} \right)} \quad (2.104)$$

$$e^{i(\delta\omega_{DA} - \Delta_{DA}) - \Gamma)t'} \quad e^{-i(\delta\omega_{DA} - \Delta_{DA}) + \Gamma)t''} \quad e^{-\frac{3(t' - t'')^2}{\tau_0^2}}$$

L'évaluation numérique du facteur $\sqrt{\frac{I}{\Gamma^2}}$, pour différentes sources d'élargissement, démontre que la susceptibilité équivalente évolue dans les mêmes ordres de grandeur qu'il s'agisse d'une conversion résonnante à deux ou trois photons.

II 6 LA SUSCEPTIBILITE EN JET SUPERSONIQUE

Le calcul de la susceptibilité microscopique en jet supersonique présente un caractère particulier lié à l'inhomogénéité du milieu.

En effet, les quantités thermodynamiques telles que température, pression et densité dépendant fortement de la position dans la détente, les sources d'élargissement ne sont pas figées à une valeur précise, mais évoluent au cours de la détente de la manière suivante :

- le refroidissement du milieu entraîne une diminution de l'élargissement Doppler γ_D ;
- la raréfaction du milieu conduit à une diminution de l'élargissement collisionnel Γ .

Le modèle de la détente isentropique, qui sera présenté au chapitre suivant, nous fournit un ordre de grandeur sur la température, la pression et la densité du jet à une distance X de l'origine de la détente. Partant de ces valeurs, on peut pour chaque stade de la détente, d'une part, calculer l'élargissement Doppler γ_D et, d'autre part, définir à l'aide d'un modèle de sphères dures le libre parcours moyen des molécules dans le jet et donc l'élargissement collisionnel Γ du milieu. Pour fixer les idées, on peut citer quelques chiffres qui présentent le mérite de résumer les conditions expérimentales dans lesquelles nos expériences se sont déroulées :

- En début de détente, l'élargissement collisionnel du milieu est prépondérant vis-à-vis de l'élargissement inhomogène :

$$\Gamma = 0,2 \text{ cm}^{-1} \tag{2.105}$$

$$\gamma_D = 0,075 \text{ cm}^{-1} < \Gamma$$

→ raie de résonance à profil de Lorentz

- En fin de détente, l'ordre est inversé, c'est l'élargissement inhomogène qui l'emporte sur l'élargissement collisionnel (en ce qui concerne l'azote, la largeur naturelle de l'état résonnant est bien inférieure au MHz) :

$$\gamma_0 = 0,015 \text{ cm}^{-1} \tag{2.106}$$

$$\Gamma = 2,7 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^{-1} \ll \gamma_0$$

→ raie de résonance à profil de Gauss

Entre ces deux situations extrêmes, on passe par des étapes où les élargissements (collisionnel et Doppler) sont comparables. Par conséquent, nous avons été amenés à utiliser l'expression générale (2.87) de manière à calculer la réponse non-linéaire du milieu tout le long de la détente supersonique.

Le résultat est représenté Figure II.5 où l'on a tracé l'évolution de la susceptibilité microscopique, via l'expression numérique du facteur $\sqrt{\frac{I}{\Gamma^2}}$, en fonction de différentes largeurs spectrales du laser.

On constate, d'après cette figure, que la variation de la susceptibilité le long de l'axe du jet se fait sentir surtout pour les faibles largeurs spectrales du laser, c'est-à-dire dans un domaine où la cohérence du laser est comparable à la cohérence du jet :

$$\gamma_L \approx \gamma_0 \approx \frac{1}{\Gamma} \tag{2.107}$$

Pour des raies laser plus larges, la susceptibilité est à peu près constante sur l'axe de la détente puisque le laser est toujours nettement moins cohérent que le jet supersonique lui-même (sauf pour les valeurs de X/D comprises entre 0 et 2) :

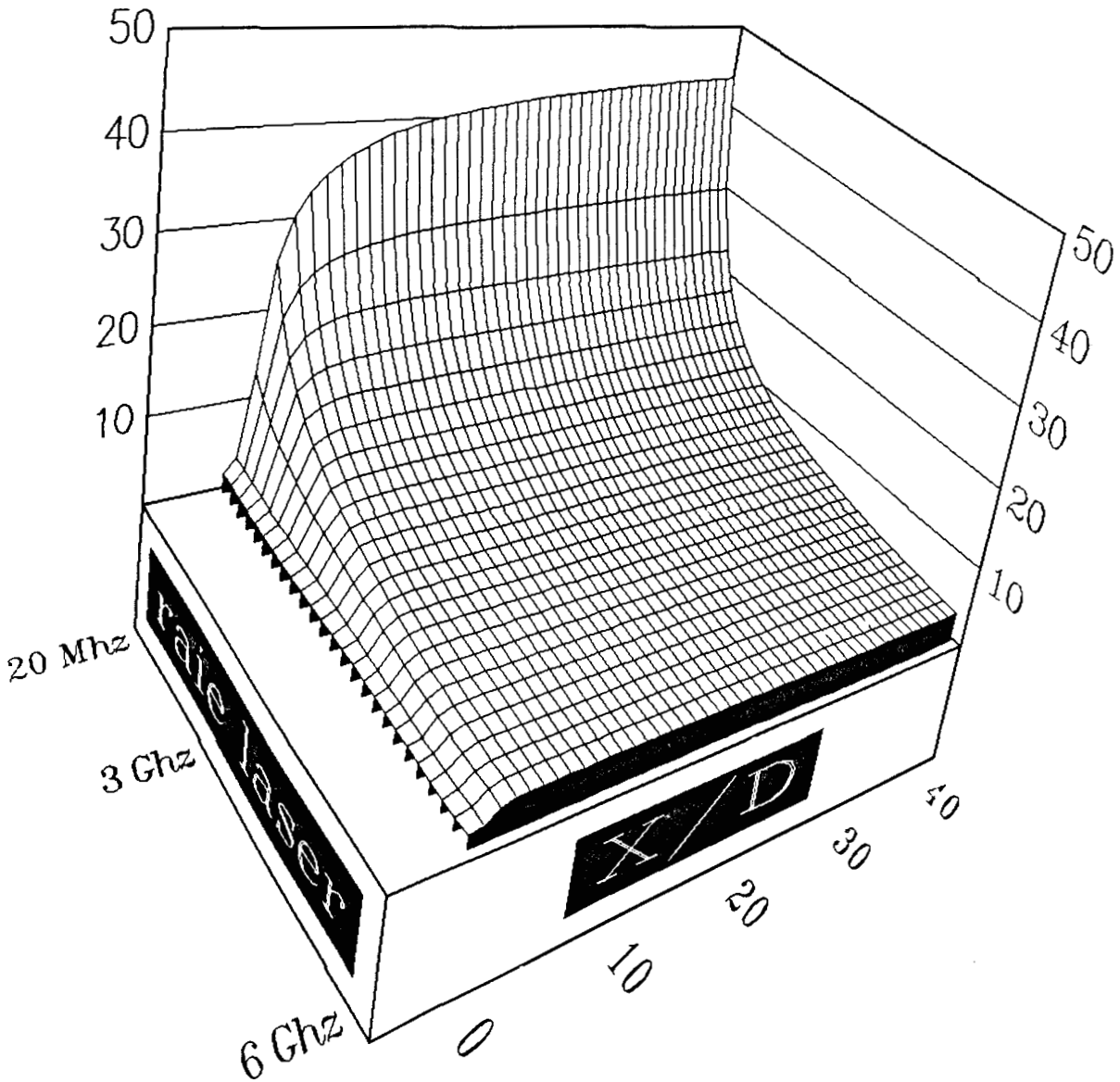


Figure II.5

Evolution de la susceptibilité équivalente sur l'axe du jet supersonique à travers le facteur $(I/\Gamma)^{1/2}$ défini à partir de l'expression (2.88). X représente la distance mesurée à partir de la tuyère de diamètre D. Le laser est modélisé par une source lumineuse à fonction d'autocorrélation gaussienne. Le calcul est effectué pour différentes largeurs spectrales de la raie laser comprises entre 20 MHz et 6 GHz.

$$\gamma_L \ll \gamma_D$$

(2.108)

$$\gamma_L \ll \frac{1}{\Gamma}$$

II 7 CONCLUSION

Ce deuxième chapitre nous a permis d'établir les expressions de la susceptibilité non-linéaire d'ordre trois, à travers les solutions stationnaires et les solutions non-stationnaires de l'équation d'évolution du système. Nous avons montré que l'approximation stationnaire cadrait mal avec une théorie où l'amplification par résonance doit être incluse. Ayant pris en compte les diverses sources d'élargissement, nous avons introduit une susceptibilité efficace, par analogie avec celle établie dans le cas stationnaire, valable pour le triplement de fréquence en résonance à deux photons.

Nos résultats ont été utilisés afin d'évaluer l'évolution de la susceptibilité microscopique le long de l'axe d'un jet supersonique. Les résultats obtenus démontrent que la réponse non-linéaire du milieu est constante sur l'axe du jet dès lors que la largeur spectrale du laser est supérieure aux élargissements homogènes et inhomogènes du milieu. En d'autres termes, tant que la cohérence du laser est faible vis-à-vis de la cohérence du jet, la variation des largeurs collisionnelles et Doppler n'influe pas sur l'amplitude de la susceptibilité microscopique.

CHAPITRE III

Les jets supersoniques

III 1 LE PRINCIPE DES JETS

III 1.1 La source effusive

III 1.2 Le jet libre supersonique

III 1.2.1 Les générateurs "basse pression"

III 1.2.1.1 Le jet continu

III 1.2.1.2 Le jet pulsé

III 1.2.2 Le générateur "haute pression"

III 2 STRUCTURE ET GRANDEURS CARACTERISTIQUES DU JET LIBRE

III 2.1 Détente isentropique d'un gaz parfait

III 2.1.1 Equations régissant l'écoulement

III 2.1.2 Nombre de Mach et grandeurs caractéristiques

III 2.2 Ecoulement en jet libre supersonique

III 3 LE JET IDEAL ET LE JET REEL

III 3.1 Echanges d'énergie entre le jet et la tuyère

III 3.2 Interactions entre le jet et le gaz résiduel

III 3.3 Ecart à l'équilibre thermodynamique

III 4 LE JET SUPERSONIQUE DE NOTRE EXPERIENCE

CHAPITRE III

La mise au point, dans les années 70, des générateurs de type "haute pression" a permis de hisser le Laboratoire des Jets Moléculaires au niveau international en matière de conception, de réalisation et de caractérisation des jets libres supersoniques et des faisceaux moléculaires de forte intensité /Campargue 1970¹, Lebéhot 1979, Gaveau 1984, Marx 1986, Aguillon 1989¹, Drawin 1990/. La finalité de ce chapitre est de donner un rapide aperçu des différents types de jets libres et de faisceaux moléculaires existants, en s'attachant plus particulièrement à la description du jet libre supersonique continu utilisé dans notre expérience.

III 1 LE PRINCIPE DES JETS

De façon très schématique, on obtient un jet de gaz en mettant en communication, par un orifice de diamètre D , un réservoir maintenu à la pression P_0 (chambre génératrice) et une enceinte maintenue sous une plus faible pression P_1 (chambre de détente).

Sur la base de ce principe, il existe deux grandes catégories de jets que l'on classe selon la valeur relative du nombre de Knudsen Kn_0 qui reflète l'inverse du nombre de collisions subies par les molécules du gaz à travers l'orifice :

$$Kn_0 = \frac{\lambda_0}{D} \quad (3.1)$$

où λ_0 définit le libre parcours moyen des molécules dans le réservoir (en toute rigueur il faudrait calculer le nombre de Knudsen au niveau de l'orifice).

Cette grandeur est fondamentale car c'est la valeur du taux de collisions - qui règne au sein du gaz lors du passage de ce dernier à travers l'orifice D - qui fixe la nature et les propriétés du jet formé en chambre de détente.

Dans un premier temps, nous allons décrire le principe de deux types de jets qui se distinguent l'un de l'autre par leur mode de fonctionnement et leurs caractéristiques respectives :

- le jet effusif ou source effusive ($Kn_0 \geq 1$);
- les jets libres supersoniques ($Kn_0 \ll 1$).

Le cas du jet supersonique obtenu par détente dans une tuyère de Laval ne sera pas abordé.

III 1.1 La source effusive

Cette source - la plus ancienne, puisqu'elle fut réalisée pour la première fois par Dunoyer /1911/ en chauffant un fragment de sodium placé sous vide en face d'un orifice - a fait l'objet d'un grand nombre d'expériences célèbres telles que la mise en évidence expérimentale du déplacement de Lamb /Lamb et Retherford 1950/ et l'expérience de Gerlach et Stern /1921/, pour n'en citer que quelques unes.

Dans la source effusive, le nombre de collisions à l'orifice du jet est très faible :

$$Kn_0 \gtrsim 1 \quad (3.2)$$

soit parce que λ_0 est grand en raison d'une pression génératrice faible, soit parce que le diamètre de l'orifice est suffisamment petit pour qu'il en soit ainsi, ou soit encore pour ces deux raisons à la fois. Le libre parcours moyen des molécules dans la chambre génératrice étant supérieur au diamètre de l'orifice, les molécules qui se trouvent près de ce dernier ont une forte probabilité de réussir le parcours d'une chambre à l'autre sans subir d'interactions avec d'autres molécules ou avec l'orifice lui-même. Par conséquent, les molécules s'échappent du réservoir par simple effusion thermique sans interactions mutuelles et avec une distribution de vitesse semblable à celle qui existe en amont de l'orifice /Bruhat 1962/. De ce point de vue, la source effusive présente un atout certain dans le sens où le flux et la densité sont bien définis et facilement calculables, ce qui s'avère très précieux lors de l'interprétation de résultats d'expériences.

En contre-partie, la condition de non-collision dans l'orifice entraîne que :

- le débit de la source est faible;
- les vitesses des molécules sont très dispersées à la fois en grandeurs et en directions.

A la lumière de ces deux remarques, il est clair que la collimation d'un faisceau d'origine effusive conduit à des distributions d'énergie trop larges et à des densités de molécules très insuffisantes pour un bon nombre d'expériences, limitant ainsi grandement l'utilisation de telles sources. A ce titre, nous allons voir que le jet supersonique permet d'obtenir de bien meilleures performances.

III 1.2 Le jet libre supersonique

La production d'un jet supersonique s'obtient en augmentant la pression en amont de l'orifice (qui prend alors le nom de tuyère sonique) de telle sorte que le libre parcours moyen des molécules dans la chambre génératrice soit très petit devant le diamètre de la tuyère :

$$Kn_0 \ll 1 \quad (3.3)$$

Par ce biais, on réalise une détente adiabatique réversible du gaz à partir de la tuyère, dans laquelle le nombre de collisions que subissent les molécules est très grand. L'effet qui en résulte est de produire, dans la chambre de détente, un écoulement qui a l'avantage d'être très supersonique et par suite très ordonné. En effet, les nombreux chocs que subissent les molécules dans l'épaisseur de la tuyère et au-delà ont tendance à aligner, par des effets collectifs, le déplacement des molécules sur un axe commun - l'axe du jet - et par cela même d'uniformiser l'ensemble des vitesses sur la vitesse hydrodynamique U de l'écoulement; il ne s'agit plus alors d'une simple sélection spatiale des vitesses par l'orifice, comme dans le cas de la source effusive, mais d'une uniformisation par collision des vitesses en modules et en directions (précollimation).

La monocinéticité, ainsi acquise par l'écoulement, a pour effet d'abaisser la température du milieu et par là-même de diminuer la vitesse locale du son "a" ($a \approx \sqrt{T}$). La vitesse hydrodynamique restant du même ordre de grandeur que la vitesse quadratique moyenne dans la chambre génératrice, le régime d'écoulement, subsonique en amont de la tuyère, peut donc devenir supersonique et même hypersonique en aval de la tuyère.

L'état très ordonné résultant de la détente supersonique rend possible la production de faisceaux bien plus intenses comparés à ceux que l'on produit à partir des sources effusives /Kantrowitz et Grey 1951/; ces faisceaux sont obtenus par extraction de la veine centrale du jet libre supersonique au moyen d'un écorceur. Cette opération est réalisée dans le jet en fin de détente où le milieu est le plus ordonné du fait de l'abaissement de la température; les molécules évoluent ensuite dans le faisceau sans interaction mutuelle (régime moléculaire).

L'intensité de tels faisceaux est cependant limitée par les phénomènes d'invasion du jet libre (état ordonné) par les molécules résiduelles (état désordonné) qui se trouvent dans la chambre de détente. Pour pallier cette difficulté, il existe deux tendances :

- la plus naturelle consiste à diminuer le plus possible la pression dans la chambre de détente afin de minimiser l'effet du gaz résiduel;
- la plus surprenante est, au contraire, de maintenir une certaine pression de gaz résiduel dans la chambre de détente, tout en évitant son interaction avec la partie axiale du jet utilisée pour en extraire le faisceau.

Chacune de ces méthodes est à l'origine d'une école de jet supersonique que l'on peut nommer de manière cavalière : l'école américaine avec ses générateurs "basse pression", l'école française avec son générateur "haute pression".

III 1.2.1 Les générateurs "basse pression"

L'idée de base de ces générateurs est de s'approcher au plus près des conditions idéales de détente dans le vide parfait afin de réduire le plus possible les perturbations entre le jet et le gaz résiduel.

III 1.2.1.1 Le jet continu

La démarche opératoire consiste à abaisser la pression P_1 dans la chambre de détente en-deçà de 10^{-5} torr (si possible). Pour conserver les performances du jet, ceci doit être réalisé tout en maintenant le niveau de pression P_0 en chambre génératrice, ce qui signifie augmenter considérablement la vitesse de pompage de la chambre de détente. Pour donner un ordre de grandeur, les exigences pour atteindre des pressions de l'ordre de 10^{-4} torr avec des conditions génératrices satisfaisantes nécessitent la mise en oeuvre de moyens de pompage de l'ordre de 10000 à 40000 ls^{-1} à 10^{-4} torr /Fenn et Deckers 1963/. Ces chiffres révèlent la lourde mise en oeuvre des générateurs "basse pression" : les appareils les plus performants ont des dimensions colossales et des coûts de fabrication considérables.

Les expérimentateurs qui ne veulent pas voir leur laboratoire se transformer en "usine à gaz", doivent se résoudre à diminuer la pression génératrice ou diminuer la taille de la tuyère (dans les limites de réalisation technique). Il va sans dire que ce genre de compromis est au détriment des performances du jet supersonique et du faisceau moléculaire qui en est extrait.

III 1.2.1.2 Le jet pulsé

Les jets pulsés, dans lesquels la tuyère est remplacée par une vanne qui laisse passer le gaz de façon intermittente, proposent une alternative pour diminuer la taille du système de pompage des générateurs basses pressions. Dans ce type de jet, on accorde le taux de répétition et la durée d'ouverture de la vanne à la vitesse de pompage de l'installation de telle sorte que la bouffée de gaz libérée par la vanne dans la chambre de détente soit créée sous une pression environnante n'excédant pas 10^{-4} torr.

Les performances obtenues avec les jets pulsés sont tout-à-fait correctes. On peut citer, par exemple, Gentry et Giese /1978/ qui ont obtenu des flux de 10^{21} mol. $\text{sr}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ sur des impulsions de 10 μs et un taux de répétition de 1 Hz. Liverman et al /1979/ ont atteint des densités 100 fois plus grandes à une fréquence de 10 Hz pour des durées d'impulsion variant entre 50 et 300 μs . Les inconvénients de cette technique sont principalement une fluence très faible et un manque de stabilité.

III 1.2.2 Le générateur "haute pression"

Campargue a introduit une solution originale qui permet, à la fois, d'éliminer l'influence du gaz résiduel et de produire des faisceaux moléculaires intenses et monocinétiques. La première réalisation de ce type de jet date de 1964 /Campargue 1964/.

L'idée originale est de maintenir en chambre de détente une pression suffisante pour qu'il se forme entre le jet et le gaz résiduel un système d'ondes de choc, appelé bouteille de choc, qui protège le jet de l'influence du gaz résiduel (Schéma 1). L'idée était fondée puisque Sherman /1963/ avait déjà imaginé - pour des pressions bien plus élevées que celles utilisées pour produire des faisceaux moléculaires - des conditions idéales pour lesquelles la bouteille de choc, formée lors de l'écoulement en régime supersonique, pouvait protéger en son sein une "zone de silence" (fermée à son extrémité par le disque de Mach) dans laquelle la détente se réalisait comme dans le vide parfait. Ainsi, la description théorique donnée par Ashkenas et Sherman /1966/ pour des jets supersoniques produits avec une pression résiduelle nulle restait valable dans la "zone de silence" d'un jet libre.

Le problème était de déterminer les conditions expérimentales qui permettraient de se rapprocher des conditions idéales de la "zone de silence". Pour le résoudre, Campargue a étudié expérimentalement les phénomènes d'invasion du jet libre par les molécules résiduelles en introduisant dans la chambre de détente un gaz étranger au gaz détendu /Campargue 1970¹/ . Ces expériences ont démontré que, pour une vitesse

de pompage donnée, la perturbation du jet par le gaz résiduel devient plus faible quand on augmente les valeurs absolues des pressions génératrice et résiduelle. De plus, lorsque la pression dans la chambre de détente avoisine les 10^{-1} torr, la bouteille de choc devient parfaitement étanche jusqu'au disque de Mach et donne naissance à une "zone de silence" /Campargue et Breton 1971, Campargue 1984/.

Par cette méthode, on peut produire des jets très intenses étant donnée la possibilité d'augmenter la pression génératrice sans pour autant faire appel à d'énormes moyens de pompage (il est en effet plus facile d'évacuer de gros débits à 10^{-1} Torr, qu'à 10^{-5} Torr); sur l'exemple de l'installation qui nous concerne et qui sera décrite au chapitre V, on dispose de deux pompes en série d'un débit de $2000 \text{ m}^3/\text{h}$ et $350 \text{ m}^3/\text{h}$ respectivement.

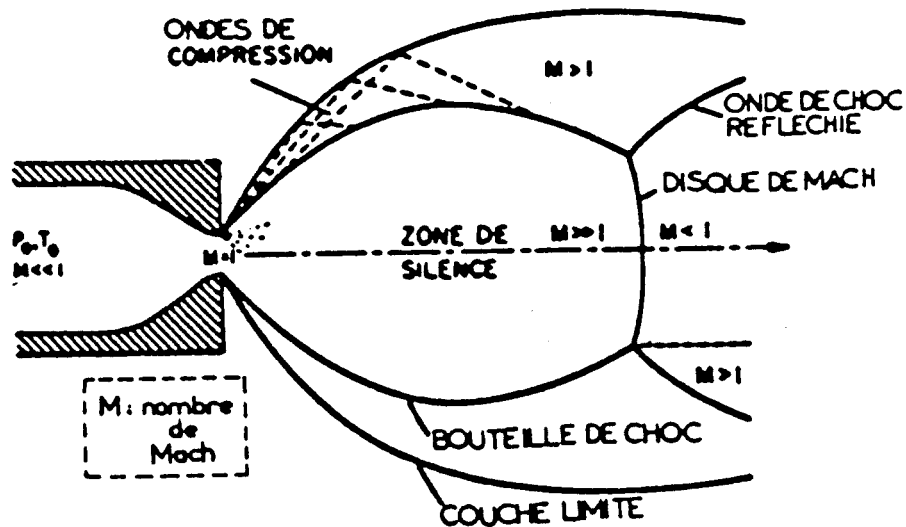


Schéma 1

Structure d'onde de choc créée dans la chambre de détente du générateur "haute pression"

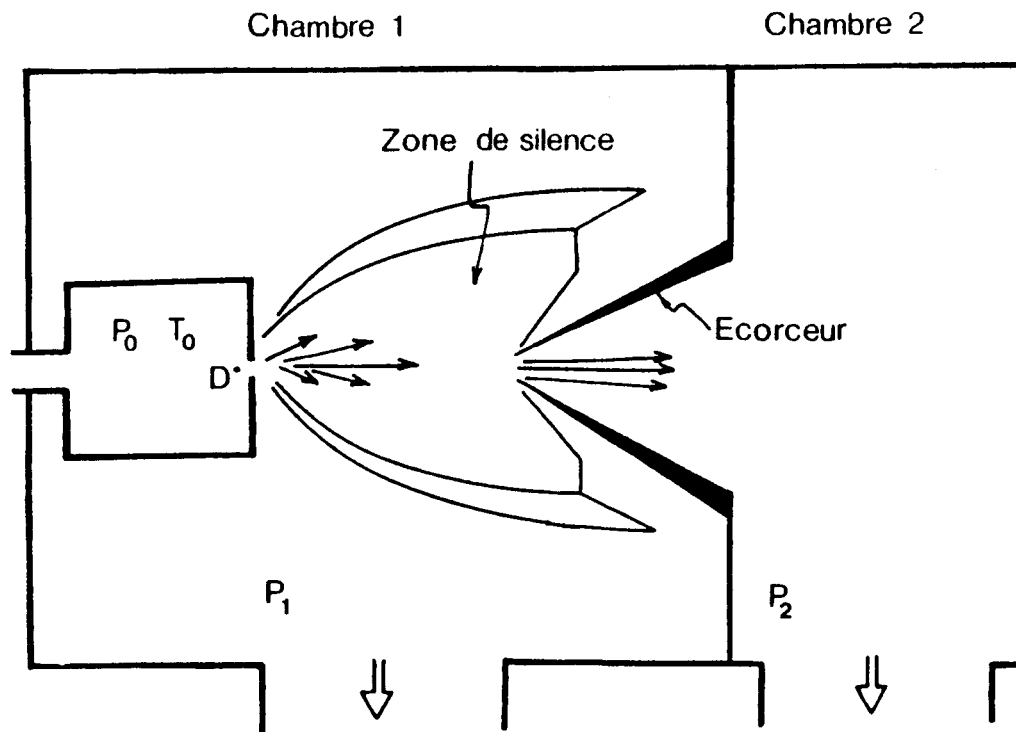


Schéma 2

Dispositif pour extraire un faisceau moléculaire de la zone de silence du jet libre supersonique

Ayant réglé le problème de la "zone de silence", Campargue a cherché à extraire de celle-ci un faisceau moléculaire supersonique. L'opération n'est pas simple, puisque le disque de Mach qui ferme la bouteille de choc empêche toute sortie de molécules en régime supersonique. Pour produire un faisceau moléculaire, il est donc indispensable de "percer" le disque de Mach afin d'extraire de la "zone de silence" la veine axiale du jet. La question qui se pose est : comment réaliser l'extraction du faisceau sans pour cela perturber le système d'onde de choc et risquer ainsi de perdre le caractère supersonique et ordonné de l'écoulement ? Pour y répondre, Campargue a conçu un écorceur d'extraction (schéma 2) dont la forme et la position par rapport à la

tuyère ont été soigneusement étudiées afin d'obtenir les meilleurs performances de faisceau /Campargue 1970¹/.

La géométrie extrêmement critique de l'écorceur doit être telle que, d'une part, l'onde de choc s'attache à l'arête de l'écorceur sans que le corps de celui-ci ne la perturbe et que, d'autre part, le pompage du volume intérieur de l'écorceur soit suffisamment efficace pour éviter la formation d'ondes de choc obliques qui détruiraient l'écoulement supersonique.

Le choix de la position de l'écorceur par rapport à la tuyère résulte d'un compromis entre intensité et qualité de faisceau que l'on veut obtenir :

- trop près de la tuyère, la détente n'est pas achevée et l'écorceur engouffre une trop grande quantité de gaz ce qui produit des perturbations à l'intérieur de celui-ci;
- trop loin de la tuyère, la quantité de gaz extraite est faible et l'on risque de voir apparaître l'invasion du gaz résiduel ou le passage en régime subsonique en cas de détachement du choc normal /Campargue 1970¹, Campargue et Lebehot 1974/.

III 2 STRUCTURE ET GRANDEURS CARACTERISTIQUES DU JET LIBRE

Un jet libre est produit par la détente d'un gaz dans un milieu géométriquement illimité après traversée d'une tuyère sonique. En aparté, notons que la tuyère sonique étant une tuyère tronquée à l'endroit où la vitesse du son est juste

atteinte, la détente en jet libre est très différente d'une détente en tuyère supersonique (tuyère de Laval) de par des conditions aux limites de natures très différentes : elles sont données, dans le premier cas, par la présence du gaz résiduel et, dans le second cas, par les parois de la tuyère.

Si l'on admet que la détente est suffisamment rapide afin d'éviter tout échange thermique avec la tuyère mais suffisamment lente de manière à ce que les grandeurs thermodynamiques du gaz soient toujours définies (température, pression, densité...), on peut modéliser la détente par une transformation adiabatique réversible, autrement dit une transformation isentropique.

Dans un premier temps, nous allons rappeler les lois qui régissent la détente isentropique d'un gaz parfait et les grandeurs qui la caractérisent.

III 2.1 Détente isentropique d'un gaz parfait

III 2.1.1 Equations régissant l'écoulement

L'écoulement isentropique est décrit par les quatre équations qui relient entre elles les grandeurs thermodynamiques locales du gaz :

- la pression P ;
- la température T ;
- la masse volumique ρ ;
- l'enthalpie massique H ;

à la vitesse hydrodynamique U de l'écoulement.

i) Equation des gaz parfaits

On écrit l'équation des gaz parfaits :

$$P = \frac{\rho}{M} RT = NkT \quad (3.4)$$

avec ρ la masse volumique,

M la masse molaire,

R la constante des gaz parfaits,

N la densité volumique de particules,

k la constante de Boltzmann.

à laquelle on ajoute les relations tenant compte de l'isentropie de la détente :

$$\frac{P_0}{P} = \left(\frac{\rho_0}{\rho}\right)^\gamma \quad \frac{T_0}{T} = \left(\frac{P_0}{P}\right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}} \quad (3.5)$$

où γ est le rapport des chaleurs massiques du gaz à pression et à volume constant respectivement :

$$\gamma = \frac{C_p}{C_v} \quad (3.6)$$

ii) Equation de conservation de la masse

$$\text{div}(\rho \vec{U}) = 0 \quad (3.7)$$

iii) Equation de conservation de la quantité de mouvement

Le long d'une ligne de courant, l'équation d'Euler s'écrit :

$$dP = -\rho U dU \quad (3.8)$$

iv) Equation de conservation de l'énergie

Le long d'une ligne de courant, l'équation de Bernoulli s'écrit :

$$H + \frac{U^2}{2} = \text{Cte} \quad (3.9)$$

III 2.1.2 Nombre de Mach et grandeurs caractéristiques

On définit le nombre de Mach comme étant le rapport entre la vitesse hydrodynamique de l'écoulement U et la vitesse du son " a " dans le milieu, ces deux vitesses étant exprimées dans le référentiel du laboratoire :

$$M = \frac{U}{a} \quad (3.10)$$

Comme le gaz parfait affiche un comportement très différent selon que l'écoulement est subsonique ($M < 1$) ou supersonique ($M > 1$) /Landau et Lifchitz 1971/, il est commode d'utiliser le nombre de Mach afin de caractériser l'état du gaz à chaque étape de la détente.

Pour un gaz parfait la vitesse du son "a" se définit à entropie S constante par la relation :

$$a = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho} \right)_{S=\text{cte}}^{\frac{1}{2}} = \sqrt{\frac{\gamma RT}{M}} = \sqrt{\frac{\gamma KT}{m}} \quad (3.11)$$

Compte tenu de cette expression, on peut réécrire l'équation d'Euler (3.8) le long d'une ligne de courant sous la forme :

$$\frac{d\rho}{dU} = - \frac{\rho U}{a^2} \quad (3.12)$$

ce qui permet, en substituant cette expression dans la relation $d(\rho U) = \rho dU + U d\rho$, de déterminer la variation de la densité de flux ρU en fonction de la vitesse hydrodynamique :

$$\frac{d(\rho U)}{dU} = \rho (1 - M^2) \quad (3.13)$$

Cette dernière équation confirme bien que l'écoulement possède un comportement différent selon que le régime de détente est subsonique ou supersonique :

- en régime subsonique $M < 1$, la densité de flux augmente avec la vitesse hydrodynamique : les lignes de courant sont donc convergentes quand la vitesse U augmente;
- au régime sonique $M = 1$, la densité de flux atteint sa valeur maximale : le passage de la vitesse du son s'effectue au lieu où les lignes de courant sont les plus resserrées;

- en régime supersonique $M > 1$, la densité de flux diminue avec la vitesse hydrodynamique : les lignes de courant deviennent divergentes quand la vitesse U augmente;

Le régime de transition ou régime sonique est marqué par des grandeurs de valeurs particulières, dites valeurs critiques, que l'on repère habituellement par un astérisque. Dans une détente libre, le point critique est atteint au col sonique, c'est à dire au passage par l'orifice de la tuyère.

Toutes les grandeurs caractéristiques de l'écoulement isentropique du gaz parfait sont exprimées en fonction du nombre de Mach et des conditions du gaz avant détente, autrement dit des conditions génératrices. Pour obtenir leurs expressions, il nous suffit d'écrire que la détente est une transformation isentropique, ce qui implique que l'énergie du gaz avant détente est égale à l'énergie après détente. D'après (3.9), on a ainsi :

$$H_0 + \frac{U_0^2}{2} = H_1 + \frac{U_1^2}{2} \quad (3.14)$$

ce qui, d'après la deuxième loi de Joule ($dH = C_p dT$), à laquelle obéit un gaz parfait, nous donne à C_p constant :

$$C_p (T - T_0) = \frac{1}{2} (U_0^2 - U^2) \quad (3.15)$$

La vitesse hydrodynamique U_0 dans la chambre génératrice, faible vis-à-vis de U puisqu'elle est due au seul mouvement d'entraînement qui existe à l'embouchure de la tuyère, peut être négligée.

En écrivant l'expression de la chaleur massique à pression constante pour un gaz parfait :

$$C_p = \frac{\gamma}{\gamma-1} \frac{R}{M} \quad (3.16)$$

et en tenant compte des relations (3.10) et (3.11), il vient :

$$\frac{T}{T_0} = \left(1 + \frac{\gamma-1}{2} M^2\right)^{-1} \quad (3.17)$$

Enfin, en combinant cette dernière expression avec les relations (3.5), on obtient :

$$\frac{P}{P_0} = \left(1 + \frac{\gamma-1}{2} M^2\right)^{\frac{\gamma}{1-\gamma}} \quad (3.18)$$

et

$$\frac{N}{N_0} = \frac{\rho}{\rho_0} = \left(1 + \frac{\gamma-1}{2} M^2\right)^{\frac{1}{1-\gamma}} \quad (3.19)$$

Au col sonique où $M=1$, ces trois dernières relations s'écrivent :

$$\frac{T^*}{T_0} = \frac{2}{\gamma-1}$$

$$\frac{P^*}{P_0} = \left(\frac{2}{\gamma-1}\right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}} \quad (3.20)$$

$$\frac{N^*}{N_0} = \left(\frac{2}{\gamma-1}\right)^{\frac{1}{\gamma-1}}$$

γ étant supérieur à un, il est clair que la raréfaction et le refroidissement du gaz sont déjà bien avancés au passage du col de la tuyère.

III 2.2 Ecoulement en jet libre supersonique

Le calcul des expressions (3.17) à (3.19) passe par la détermination du nombre de Mach pour chaque étape de la détente supersonique. Owen et Thornhill /1948/, puis Wolff /1962/ se sont intéressés à la résolution du système d'équations différentielles (3.4-3.9) et ont calculé l'écoulement à l'aide de la méthode des caractéristiques en supposant le jet supersonique produit dans le vide parfait. Ashkenas et Sherman /1966/, par la mesure des pressions d'impact au sein d'un jet basse pression, ont vérifié expérimentalement les résultats de Wolff, ce qui les a menés aux conclusions suivantes : à l'intérieur du jet supersonique toutes les lignes de courant semblent issues d'une source ponctuelle placée à une petite distance X_0 en aval de la tuyère (schéma 3). De plus, les propriétés de l'écoulement en un point X de l'axe du jet dépendent uniquement de la variable X/D (distance réduite sur l'axe du jet) et de la nature du gaz γ .

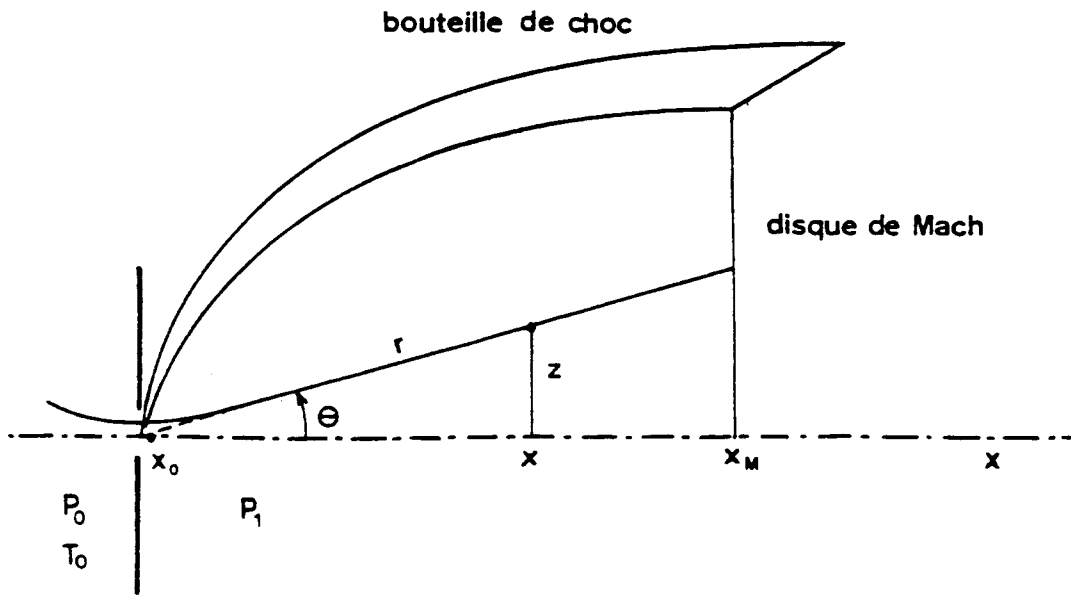


Schéma 3

Bouteille de choc et définition des variables utilisées dans la description du jet libre supersonique

Ainsi, la distribution du nombre de Mach sur l'axe du jet est donnée par la relation :

$$M = A' \left(\frac{X-X_0}{D} \right)^{\gamma-1} - \frac{1}{2A'} \frac{\gamma+1}{\gamma-1} \left(\frac{X-X_0}{D} \right)^{1-\gamma} \quad (3.21)$$

à laquelle on peut ajouter un troisième terme, pour une meilleure précision :

$$D' \left(\frac{X-X_0}{D} \right)^{3(1-\gamma)} \quad (3.22)$$

Les coefficients A' , D' et X_0 dépendent de γ . Cette formule analytique est en accord (à mieux que 0,5%) avec les résultats fournis par la méthode des caractéristiques à condition de rester dans un domaine tel que X soit supérieur

à X_2 ou X_3 selon que l'on emploie la formule à deux ou trois termes. Les valeurs des différents coefficients sont données dans le tableau 1 /Ashkenas et Sherman 1966/.

γ	$\frac{X_0}{D}$	A'	C'	D'	$\frac{X_2}{D}$	$\frac{X_3}{D}$
5/3	0,075	3,26	1,365	0,31	2,5	1
7/5	0,40	3,65	1,662	0,20	6	1
9/7	0,85	3,96	1,888	-	4	-

Tableau 1

La densité à la distance "r" du point source X_0 sur un axe faisant un angle θ avec l'axe du jet est donnée par la relation :

$$N(r,\theta) = N(r,0) \cos^2 \left(\frac{\Pi\theta}{2C'} \right) \quad (3.23)$$

III 3 LE JET IDEAL ET LE JET REEL

Les interactions entre le gaz et la tuyère, la formation d'une structure de choc, les effets liés aux temps de relaxation des degrés de liberté interne du gaz font que le jet libre - modélisé en considérant la détente adiabatique et réversible d'un gaz parfait dans un milieu de géométrie infinie - n'est qu'une description approchée du jet libre réel.

III 3.1 Echanges d'énergie entre le jet et la tuyère

La viscosité du gaz entraîne une certaine irréversibilité de la détente qui se crée principalement en raison du travail échangé entre le gaz et la tuyère. Concrètement, une couche limite se forme entre l'écoulement et la tuyère ce qui a pour effets de diminuer le diamètre effectif de l'aire critique et de distordre l'écoulement. En ce qui nous concerne, ce phénomène est négligeable dans la mesure où nos pressions génératrices sont élevées et nos diamètres de tuyères sont grands /Ashkenas et Sherman 1966, Campargue 1970¹/.

Le contact thermique du gaz avec la tuyère remet en cause l'adiabaticité de la détente. Les échanges de chaleur entre deux "corps" étant proportionnels à leur différence de température, l'accroissement d'entropie est surtout à craindre si le gaz est chauffé en chambre génératrice avant d'être détendu. Dans le cas d'un jet non chauffé, tel que le nôtre, ce phénomène est très faible étant donné que la température de la tuyère et du gaz au col sonique sont du même ordre de grandeur.

III 3.2 Interactions entre le jet et le gaz résiduel

L'interaction entre le gaz résiduel et le jet libre forme une structure de choc, appelée bouteille de choc. Celle-ci se compose d'une paroi latérale de symétrie cylindrique fermée à son extrémité par une onde de choc frontale, le disque de Mach. Les relations qui caractérisent la détente isentropique sont valables uniquement à l'intérieur de la

bouteille de choc, autrement dit dans la zone de silence, là où le jet ne perçoit pas la présence du gaz résiduel.

Campargue a précisé les conditions d'étanchéité de la bouteille de choc en montrant des phénomènes d'invasion de la zone de silence par le gaz résiduel, cette invasion pouvant être sélective suivant la masse des particules /Campargue 1970²/.

Connaître la forme et la dimension de la zone de silence se révèle en général très utile. Love et al /1959/, Adamson et Nicholls /1959/ et Bier et Schmidt /1961/ ont calculé la position du disque de mach :

$$\frac{X_M}{D} = 0.67 \sqrt{\frac{P_0}{P_1}} \quad (3.24)$$

Cette expression a été vérifiée expérimentalement par Ashkenas et Sherman /1966/.

Dupeyrat /1979/, lors de ses études du jet libre issu d'orifices circulaires a donné des formules empiriques qui permettent, pour un certain domaine de pression, d'obtenir la dimension de la bouteille de choc :

Pour $5 \ll P_0/P_1 \ll 56$ on a :

$$\frac{r(\theta)}{D} = -7,9 \cdot 10^{-3} (\theta - 67) \left(\frac{P_0}{P_1} \right)^{0,565} \quad (3.25)$$

Pour $0,1 \ll P_0/P_1 \ll 1$ on a :

$$\frac{r(\theta)}{D} = -1,09 \cdot 10^{-2} (\theta - 61,4) \left(\frac{P_0}{P_1} \right)^{0,578} \quad (3.26)$$

Dans ces deux relations, les angles sont exprimés en degré et les pressions en torr.

On remarque d'après les expressions (3.24-3.26) que les dimensions de la bouteille de choc sont uniquement reliées au rapport des pressions P_0 et P_1 (vitesse de pompage) ainsi qu'au diamètre D de la tuyère. Quant aux épaisseurs de l'onde de choc et de la couche limite environnante, elles sont d'autant plus grandes que P_1 est faible; à la limite des P_1 très petits, la structure de choc s'évanouit (principe des jets "basse pression").

III 3.3 Ecarts à l'équilibre thermodynamique

Le refroidissement très brutal du gaz dans la détente supersonique entraîne un déséquilibre thermodynamique local entre les différents degrés de liberté (vibration, rotation et translation) de la molécule et donc un accroissement d'entropie. Ainsi, le gaz passe d'un état d'équilibre boltzmannien dans la chambre génératrice - dans laquelle les températures vibrationnelle T_{vib} , rotationnelle T_{rot} et translationnelle T_{trans} sont toutes confondues à la température thermodynamique - à un état d'équilibre pseudo-boltzmannien où la statistique de Boltzmann n'est vérifiée qu'à l'intérieur de chaque degré de liberté. En effet, la relaxation des niveaux de vibrations et de rotations se fait essentiellement par transferts collisionnels de ces degrés de liberté vers la translation. Ainsi, dans le cas d'une molécule d'azote modélisée par des sphères dures, le nombre moyen de collisions nécessaires à une mise en équilibre d'un degré de liberté est de l'ordre de 1 pour la translation, de 5 pour la rotation et de 10^5 pour la vibration. Par contre, du fait de la raréfaction, le nombre de collisions dans le

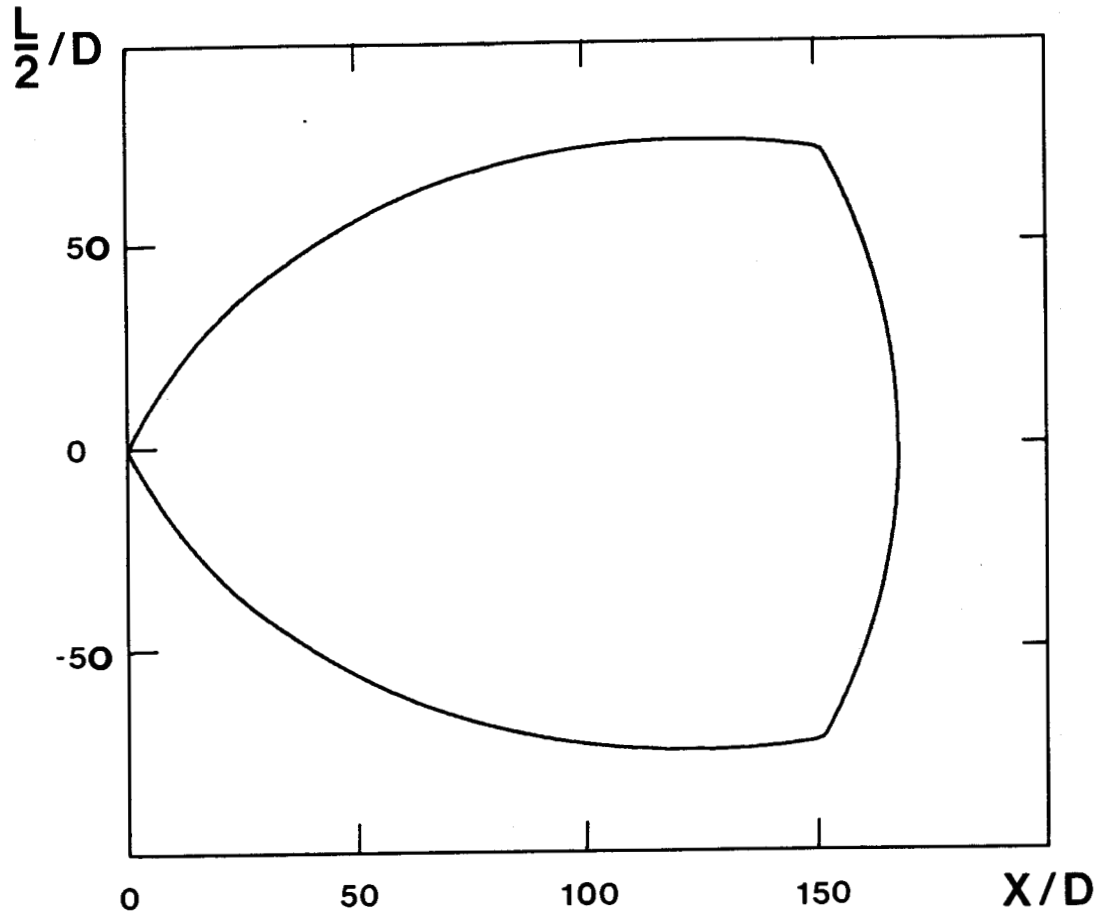


Figure III.1

Dimensions de la bouteille de choc calculées pour des conditions génératrices $P_0=4,2$ bars/ $D=0,275$ mm et une pression de gaz résiduel $P_1=0,05$ torr.

jet, pendant la durée de la détente, passe de l'ordre de 20000, au col de la tuyère, à moins de 5, en fin de détente. Par conséquent, on assiste au cours de la détente à un gel successif de l'énergie de vibration et de rotation dû à une relaxation incomplète des degrés internes, ce qui se traduit par un déséquilibre entre les différentes températures :

$$T_{vib} \gg T_{rot} > T_{trans} \quad (3.27)$$

III 4 LE JET SUPERSONIQUE DE NOTRE EXPERIENCE

Le jet libre supersonique utilisé dans notre expérience est un générateur "haute pression" composé :

- d'une chambre génératrice à température ambiante qui contient le gaz diatomique sous une pression P_0 ;
- d'une chambre de détente où règne une pression résiduelle P_1 (de l'ordre de 0,05 torr) ;
- d'une tuyère sonique d'un diamètre de 0,275 mm ou 0,475 mm selon les expériences.

La forme et la dimension de la bouteille de choc du jet ont été calculées, dans des conditions génératrices typiques, à l'aide de la formule (3.25) en supposant que cette dernière reste valable au-delà de $P_0/P_1=56$. Le résultat est présenté fig.III.1.

Enfin, il faut noter que, dans le jet, la température vibrationnelle des molécules est figée pratiquement dès le début de la détente, tandis que la température rotationnelle n'évolue plus au-delà de $X/D=40$ (à voir au chapitre VII), c'est à dire en fin de détente. Pour cette raison on utilisera pour caractériser la détente supersonique un coefficient γ égal à $7/5$ qui correspond, via le principe d'équipartition de l'énergie /Bruhat 1962/, à cinq degrés de liberté (trois pour la translation et deux pour la rotation) au lieu de $9/7$ pour une molécule diatomique dont le nombre de degrés de liberté est six (trois pour la translation, deux pour la rotation et un pour la vibration).

CHAPITRE IV

Adaptation de phase

IV 1 ADAPTATION DE PHASE EN MILIEU HOMOGENE ET ISOTROPE

IV 1.1 Modèle de l'onde plane

IV 1.1.1 Description des champs

IV 1.1.2 Equation de propagation

IV 1.1.3 Faibles taux de conversion

IV 1.1.4 Forts taux de conversion

IV 1.2 Triplement de fréquence en faisceau gaussien TEM_{00}

IV 1.2.1 Expression de l'onde harmonique

IV 1.2.2 Expression de la puissance harmonique

IV 1.2.3 Facteur d'adaptation de phase : faisceau
faiblement focalisé

IV 1.2.4 Facteur d'adaptation de phase : faisceau
fortement focalisé

IV 1.2.5 Facteur d'adaptation de phase : cas
général

IV 1.3 Triplement de fréquence en faisceau gaussien de mode d'ordre élevé

IV 1.3.1 Expression du champ harmonique

IV 1.3.2 Puissance harmonique et facteur d'adaptation
de phase

IV 1.3.3 Régime de faible focalisation

IV 1.3.4 Régime de forte focalisation

IV 1.3.5 Cas général

IV 1.4 Le facteur d'adaptation de phase dans le cas d'un laser hautement multimode

IV 2 ADAPTATION DE PHASE EN MILIEU INHOMOGENE

IV 2.1 Etudes antérieures

IV 2.2 Triplement de fréquence dans la "zone de silence"
d'un jet supersonique continu

IV 3 CONCLUSION

CHAPITRE IV

L'expression de l'onde harmonique et de la puissance transportée par celle-ci sera établie en se plaçant dans l'approximation du régime quasi-stationnaire. Ainsi, on résoudra l'équation de propagation à l'aide de la relation constitutive, en traitant le tenseur des susceptibilités comme un terme constant. Ceci nous conduira à introduire le facteur d'adaptation de phase qui régit les conditions de propagation de l'onde harmonique au sein du milieu non-linéaire.

IV 1 ADAPTATION DE PHASE EN MILIEU HOMOGENE ET ISOTROPE

Nous appelons homogène un milieu à répartitions de pression, température et densité uniformes; le gaz contenu dans une cellule étanche et thermostatée en est l'exemple le plus courant. L'équation de propagation (1.29) étant établie implicitement pour un milieu homogène, elle servira de point de départ à notre raisonnement.

IV 1.1 Modèle de l'onde plane

IV 1.1.1 Description des champs

On admet que les seules ondes présentes dans le milieu sont, d'une part, l'onde fondamentale se propageant suivant l'axe \vec{z} et caractérisée par le vecteur champ électrique :

$$\vec{E}_f(z, t) = \frac{1}{2} \left(\vec{\mathcal{E}}_f(z) e^{-i(\omega t - K_f z)} + cc \right) \quad (4.1)$$

et, d'autre part, l'onde harmonique dont le champ électrique est aussi, par raison de symétrie, une onde plane se propageant suivant l'axe Oz :

$$\vec{E}_h(z, t) = \frac{1}{2} \left(\vec{\mathcal{E}}_h(z) e^{-i(3\omega t - K_h z)} + cc \right) \quad (4.2)$$

Ces deux ondes, par interaction non-linéaire au sein du milieu, donnent naissance, entre autres, à deux polarisations non-linéaires d'ordre trois.

D'après les relations (1.13) et (1.32) établies au chapitre I et compte-tenu des expressions (4.1) et (4.2), ces vecteurs de polarisation s'écrivent :

$$\vec{P}_f^{(3)}(z, t) = \frac{1}{2} \left(\vec{\mathcal{P}}_f^{(3)}(z) e^{-i(\omega t - K_f^p z)} + cc \right) \quad (4.3)$$

$$\vec{P}_h^{(3)}(z, t) = \frac{1}{2} \left(\vec{\mathcal{P}}_h^{(3)}(z) e^{-i(3\omega t - K_h^p z)} + cc \right)$$

avec des amplitudes définies par :

$$\varphi_f^{(3)}(z) = \frac{3}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} (\mathcal{E}_f^*(z))^2 \mathcal{E}_h(z) \quad (4.4)$$

$$\varphi_h^{(3)}(z) = \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathcal{E}_f^3(z)$$

et des vecteurs d'ondes reliés entre eux par les relations :

$$K_f^p = K_h - 2K_f \quad (4.5)$$

$$K_h^p = 3K_f$$

Via les équations de Maxwell, ces polarisations non-linéaires vont influencer, tout au long du milieu, sur la propagation des ondes fondamentale et harmonique.

IV 1.1.2 Equation de propagation

En adaptant nos notations au système d'équations (1.29) (dans lequel on néglige les termes d'absorption) et en tenant compte des relations (4.1-4.3) et (4.5), l'équation de propagation des ondes planes s'écrit :

$$\sum_{j=f,h} 2iK_j \frac{\partial \vec{\mathcal{E}}_j(z)}{\partial z} = \sum_{j=f,h} -\omega_j^2 \mu_0 \vec{\varphi}_j^{(3)}(z) e^{-i\Delta K_j z} \quad (4.6)$$

où $\Delta K_j = K_j - K_j^p$.

Cette expression appelle les deux remarques suivantes :

- étant donné que les vecteurs champ $\vec{\mathcal{E}}$ et $\vec{\mathcal{P}}$ sont colinéaires (milieu isotrope), la transposition de l'équation (4.6) en une expression scalaire est immédiate; par la suite, nous ne considérerons que les expressions scalaires des champs;
- l'approximation stationnaire impose que les solutions du système d'équations différentielles (4.6) soient obtenues pour des pulsations ω_j identiques de part et d'autre de l'égalité.

Ceci étant, d'après (4.4) et (4.6), les équations de propagation s'écrivent :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathcal{E}_f(z)}{\partial z} &= \frac{3i\omega}{8cn_f} \chi^{(3)} (\mathcal{E}_f^*(z))^2 \mathcal{E}_h(z) e^{i\Delta K z} \\ \frac{\partial \mathcal{E}_h(z)}{\partial z} &= \frac{3i\omega}{8cn_h} \chi^{(3)} \mathcal{E}_f^3(z) e^{-i\Delta K z} \end{aligned} \tag{4.7}$$

où n_f et n_h sont les indices de réfraction aux pulsations ω et 3ω .

IV 1.1.3 Faibles taux de conversion

Tant que le taux de puissance harmonique engendrée est faible, on peut considérer que le processus de conversion n'influe pas sur la propagation de l'onde fondamentale; le champ \mathcal{E}_f est considéré comme constant et l'équation de propagation sur la composante fondamentale du champ disparaît (ceci revient à négliger le terme $\mathcal{P}_f^{(3)}$ devant $\mathcal{P}_h^{(3)}$).

Pour un milieu homogène de longueur L , la résolution de l'équation (4.7) mène à la solution :

$$\mathcal{E}_h(z) = 0 \quad \text{pour } z < L \quad (4.8)$$

$$\mathcal{E}_h(z) = \frac{3i\omega}{8cn_h} \chi^{(3)} \mathcal{E}_f^3 \left(\frac{1 - e^{-i\Delta KL}}{i\Delta K} \right) \quad \text{pour } z > L \quad (4.9)$$

A l'aide de la relation :

$$I_h = \frac{1}{2} \epsilon_0 c n_h |\mathcal{E}_h|^2 \quad (4.10)$$

on en déduit l'expression de l'intensité de l'onde harmonique en sortie de cellule :

$$I_h = \frac{9\omega^2}{16\epsilon_0^2 c^4 n_f^3 n_h} |\chi^{(3)}|^2 L^2 I_f^3 \left(\frac{\sin\left(\frac{\Delta KL}{2}\right)}{\frac{\Delta KL}{2}} \right)^2 \quad (4.11)$$

La fonction $F = \left(\frac{\sin\left(\frac{\Delta KL}{2}\right)}{\frac{\Delta KL}{2}} \right)^2$ représente ce que l'on nomme le facteur d'adaptation de phase. Son origine physique résume en fait un phénomène de propagation et d'interférences d'ondes au sein du milieu. De façon plus précise, les dipôles non-linéaires créés en tout point du milieu rayonnent de l'énergie sous la forme d'ondelettes harmoniques. Cependant, il n'est pas suffisant que ces différentes ondelettes existent, encore faut-il qu'elles se propagent dans le milieu de manière à ne pas s'entre-détruire. Autrement dit, il faut qu'il existe entre ces ondelettes une relation de phase leur permettant d'interférer constructivement. C'est le facteur d'adaptation de phase, gouverné par la quantité ΔKL , qui traduit ce phénomène d'interférence.

On a représenté en figure IV.1 la variation du facteur d'adaptation de phase en fonction du paramètre d'accord de phase $\Delta KL/2$.

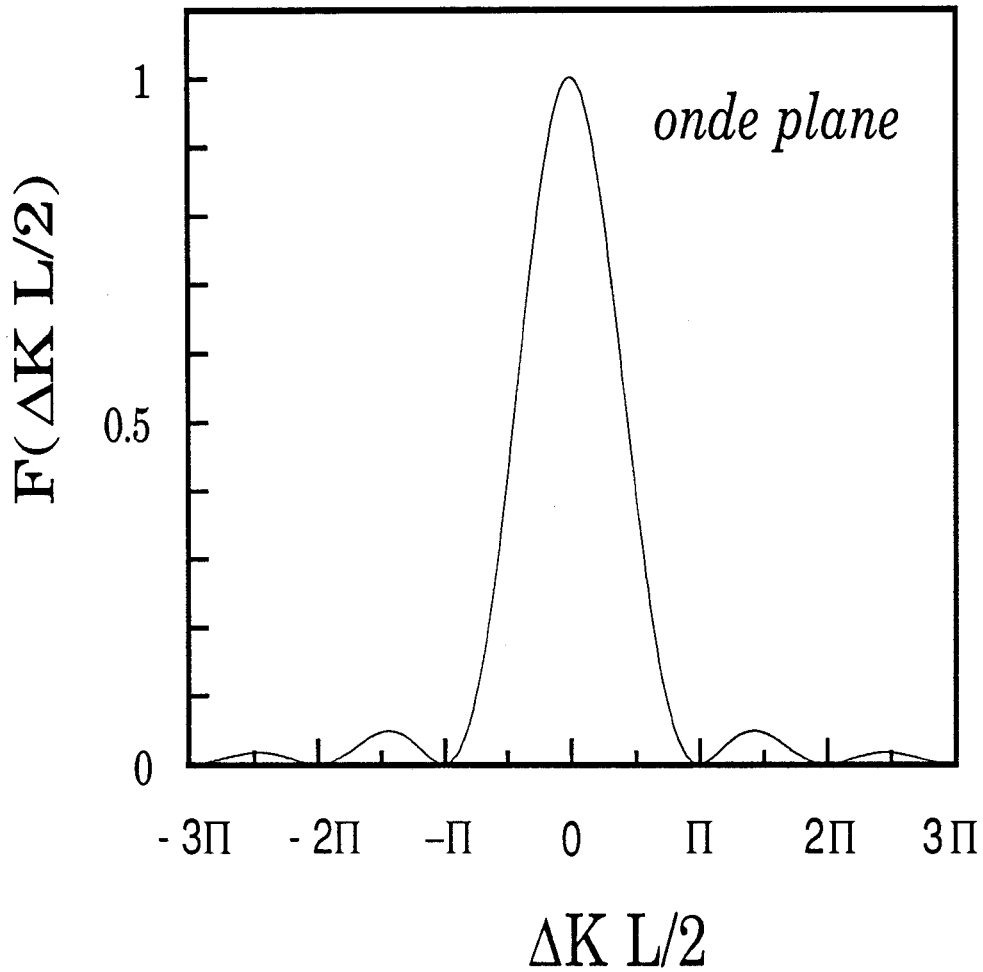


Figure IV.1

Courbe d'adaptation de phase correspondant au triplement de fréquence en onde plane. L est la longueur du milieu non linéaire et ΔK représente la différence des vecteurs d'onde $K_h - 3K_f$.

On constate que le facteur d'adaptation de phase est maximum lorsque les indices vus par les deux ondes sont égaux :

$$\Delta K = 0 \Rightarrow n_f = n_h \quad (4.12)$$

La largeur en ΔK de la courbe d'adaptation de phase varie en $1/L$. Ceci tient au fait que la condition d'interférence maximale, entre les différentes ondelettes, sera d'autant plus difficile à maintenir, à un ΔK donné, que la longueur d'interaction est longue.

IV 1.1.4 Forts taux de conversion

Dans le cas de taux de conversion élevés, le traitement précédent n'est plus valable. En effet, pour des valeurs conséquentes de I_f , l'expression (4.11) conduit à une divergence de l'intensité harmonique générée.

Les solutions générales du système d'équations (4.7) ont été calculées par Armstrong et al /1962/. En ce qui nous concerne, nous nous limiterons à donner les résultats du calcul dans le cas d'une parfaite adaptation de phase ($\Delta K=0$) et en considérant la susceptibilité non-linéaire comme une grandeur réelle.

Pour un milieu contenu entre les limites $z=0$ et $z=L$, les intensités des ondes harmonique et fondamentale ont pour expressions :

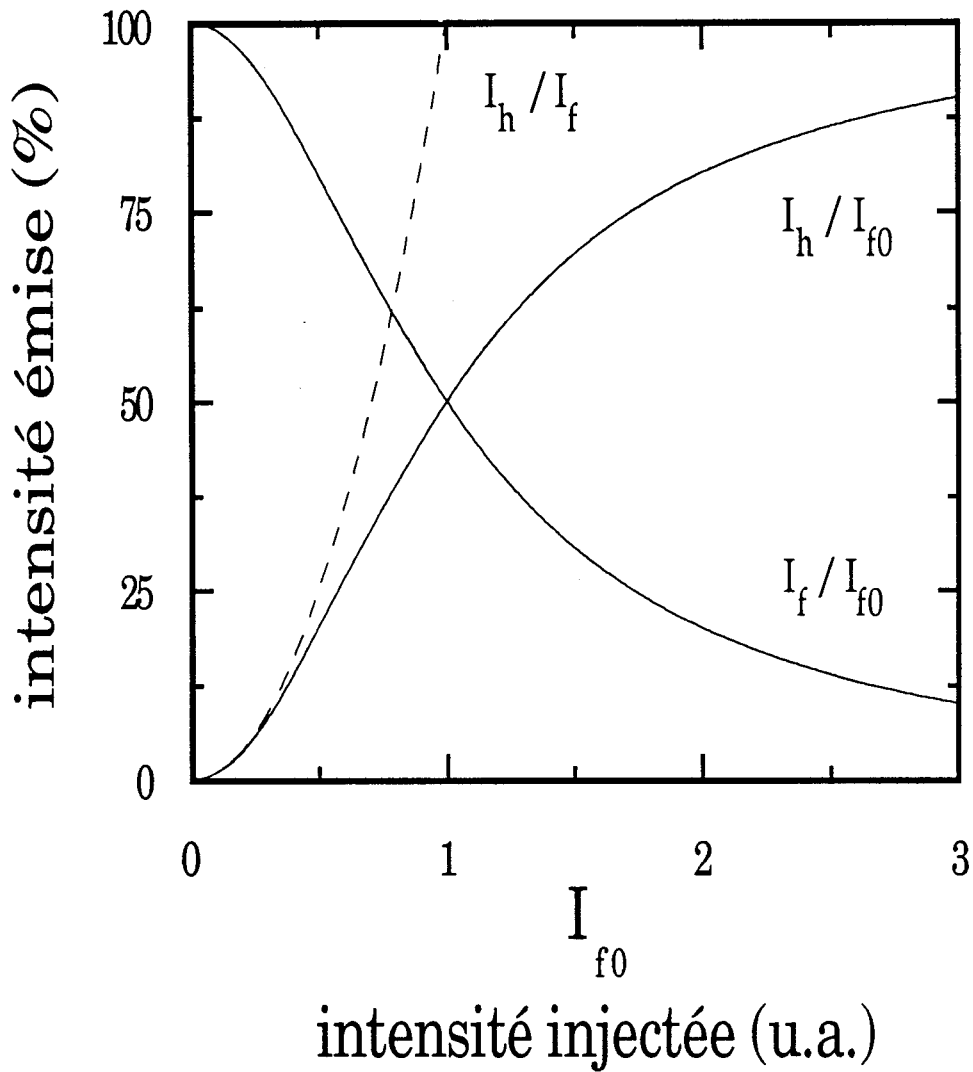


Figure IV.2

Intensités relatives de l'onde fondamentale I_f et de l'onde harmonique I_h à la sortie du milieu non linéaire en fonction de l'intensité I_{f0} injectée à l'entrée du milieu. La courbe en traits pointillés correspond au calcul effectué sans atténuation de l'onde fondamentale.

$$I_h = \frac{9\omega^2 |X^{(3)}|^2 L^2}{16 \epsilon_0^2 c^4 n^4 + 9\omega^2 |X^{(3)}|^2 L^2} I_{f0}^3 \quad (4.13)$$

$$I_f = I_{f0} - I_h$$

où I_{f0} représente l'intensité injectée à l'entrée du milieu non-linéaire.

On a représenté figure IV.2 la variation des intensités I_h et I_f ramenée à la valeur de l'intensité injectée I_{f0} . On a pris soin de tracer en traits pointillés la courbe d'intensité harmonique dans le cas de figure où l'atténuation de l'onde fondamentale est négligée. On note ainsi que, pour des taux de conversion n'excédant pas 10%, l'expression (4.11) correspond à une bonne approximation.

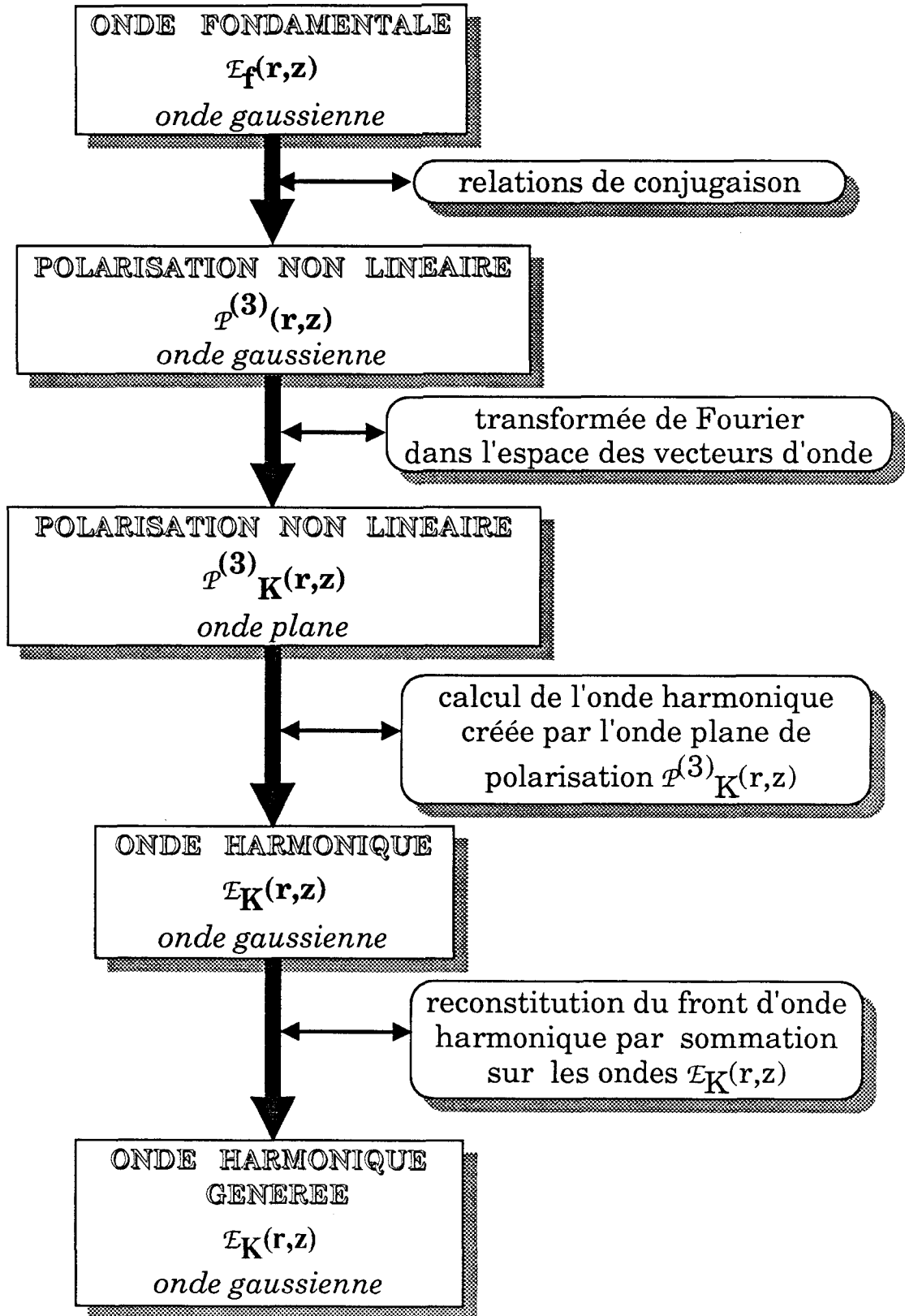
IV 1.2 Triplement de fréquence en faisceau gaussien

TEM₀₀

IV 1.2.1 Expression de l'onde harmonique

La focalisation du faisceau incident présente l'avantage d'augmenter la puissance déposée par unité de volume. Quand on sait que l'intensité harmonique évolue comme le cube de l'intensité fondamentale, ceci produit une augmentation considérable de la conversion (phénomènes de saturation mis à part). De plus, la focalisation permet de limiter la conversion de fréquence à une région bien définie de l'espace. Ceci s'avère très appréciable quand on utilise l'onde harmonique pour sonder le milieu non-linéaire. Nous reviendrons sur ce point dans la partie expérimentale (chapitre VII).

Principe du calcul de l'onde harmonique en faisceau gaussien



Schema 1

Les considérations théoriques concernant la génération de troisième harmonique à l'aide d'un laser focalisé ont été introduites par Ward et New /1969/ et étendues au cas général du mélange à quatre ondes par Bjorklund /1975/.

Il n'est pas dans notre but de traiter le calcul général de la génération de troisième harmonique à partir de faisceaux gaussiens. Nos considérations se limiteront à l'étude de la conversion en champ faible, c'est-à-dire sans atténuation de l'onde fondamentale. On admettra dans un premier temps que le laser délivre un mode TEM_{00} dont le faisceau est peu divergent; de cette manière on appliquera l'approximation des faisceaux paraxiaux.

Nous présentons sur le schéma 1 une description sommaire de la démarche du calcul qui permet d'aboutir à l'expression de l'onde harmonique générée à partir d'un faisceau gaussien TEM_{00} .

* Expression des champs

Le champ électrique, attaché à l'onde laser TEM_{00} se propageant suivant la direction \vec{z} , s'écrit sous la forme /Kogelnik et Li 1966/ :

$$E_f(r, t) = \frac{1}{2} (\mathcal{E}_f(r, z) e^{-i\omega t} + cc) \quad (4.14)$$

avec

$$\mathcal{E}_f(r, z) = \frac{\mathcal{E}_{f0}}{(1+i\zeta)} e^{+iK_f z} e^{-\frac{K_f r^2}{b(1+i\zeta)}} \quad (4.15)$$

Dans ces expressions, la quantité $b = \frac{2\pi w_0^2}{\lambda_f}$ définit le paramètre confocal du faisceau, où w_0 est le diamètre au point

d'étranglement du faisceau (par la suite nous utiliserons le terme consacré "waist"). ζ est la distance mesurée par rapport à la position f du point de focalisation; le tout est rapporté au paramètre confocal du laser $\zeta = \frac{2(z-f)}{b}$ ($r = \sqrt{x^2 + y^2}$ représente la coordonnée transverse).

L'amplitude de l'onde de polarisation à la fréquence harmonique s'obtient en reportant dans (4.4) les expressions (4.14) et (4.15) :

$$\varphi^{(3)}(r, z) = \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathcal{E}_{f_0}^3 \frac{e^{+3ik_f z}}{(1+i\zeta)^3} e^{-\frac{3K_f r^2}{b(1+i\zeta)}} Q(z) \quad (4.16)$$

avec

$$\begin{aligned} Q(z) &= 1 \text{ pour } z \in]0, L[\\ Q(z) &= 0 \text{ pour } z \notin]0, L[\end{aligned}$$

L'onde gaussienne $\varphi^{(3)}(3\omega)$ peut se ramener, via la transformée de Fourier dans l'espace des vecteurs d'onde, à une distribution spatiale d'ondes planes.

* Composante de Fourier de la polarisation

Parmi toutes les ondes planes constituant l'onde de polarisation, on s'intéresse à celles qui possèdent un vecteur d'onde $3\vec{K}$ quelconque :

$$\varphi_{3K}^{(3)} = \left(\frac{3}{2\pi}\right)^3 \int_{-\infty}^{+\infty} dx \int_{-\infty}^{+\infty} dy \int_{-\infty}^{+\infty} dz \varphi^{(3)}(r, z) e^{-i3\vec{K}\vec{r}} \quad (4.17)$$

Partant de cette quantité, il nous faut déterminer l'expression de l'onde harmonique engendrée par cette onde plane de polarisation. Malheureusement, la démarche appliquée dans le

paragraphe précédent ne peut être utilisée dans la mesure où les ondes planes sont désormais paraxiales et non strictement axiales. Cette nuance a en effet pour conséquence d'imposer des conditions aux limites différentes.

*** Onde harmonique générée par une onde plane paraxiale**

L'onde paraxiale fondamentale, de vecteur d'onde K , est notée :

$$E_K(r, t) = \frac{1}{2} \left(\mathcal{E}_K e^{-i(\omega t - \vec{K}r)} + cc \right) \quad (4.18)$$

L'approximation des faisceaux paraxiaux signifie que les seules composantes importantes de E_K sont telles que :

$$K_x \ll K_z \quad (4.19)$$

$$K_y \ll K_z$$

L'onde E_K induit, au niveau du milieu, une polarisation harmonique qui, d'après (1.13), possède elle aussi une structure d'onde plane :

$$P_{3K}^{(3)}(r, t) = \frac{1}{2} \left(\varphi_{3K}^{(3)} e^{-i(3\omega t - 3\vec{K} \cdot \vec{r})} + cc \right) \quad (4.20)$$

avec

$$\varphi_{3K}^{(3)} = \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathcal{E}_K^3 Q(z) \quad (4.21)$$

L'onde harmonique générée par $P_{3K}^{(3)}$, quant à elle, n'apparaît pas sous la forme d'une onde plane paraxiale; ceci est lié principalement à la nature particulière des conditions aux

limites du problème (la direction de propagation de l'onde fondamentale n'est plus tout à fait perpendiculaire à la face d'entrée du milieu).

Par conséquent, l'équation de propagation sera résolue en cherchant une solution sous la forme générale :

$$E_{h(K)}(r, t) = \frac{1}{2} \left(\mathcal{E}_{h(K)}(r, z) e^{-i3\omega t} + cc \right) \quad (4.22)$$

En reportant cette expression dans l'équation de propagation (1.7), on obtient :

$$\nabla \mathcal{E}_{h(K)}(r, z) - K_h \mathcal{E}_{h(K)}(r, z) = \frac{-9\omega^2 \mu_0}{c^2} \mathcal{P}_{3K}^{(3)} e^{i3\vec{K}\vec{r}} \quad (4.23)$$

Cette équation admet pour solution la combinaison linéaire d'une solution de l'équation homogène (onde libre) et d'une solution particulière (onde forcée) :

$$\mathcal{E}_{h(K)}(r, z) = \mathcal{E}_{h,L}(r, z) e^{\vec{K}_h \vec{r}} + \mathcal{E}_{h,F}(r, z) e^{i3\vec{K}\vec{r}} \quad (4.24)$$

Avant de remplacer, dans (4.23), \mathcal{E}_h par cette expression, notons que, l'onde $\mathcal{P}_{3K}^{(3)}$ étant générée par une onde électromagnétique E_K dans un milieu isotrope, son vecteur d'onde $3\vec{K}$ lui est perpendiculaire. De plus, l'onde harmonique $\mathcal{E}_{h(K)}$ et l'onde de polarisation $\mathcal{P}_{3K}^{(3)}$ étant colinéaires, ce vecteur d'onde doit de même se trouver perpendiculaire au champ $\mathcal{E}_{h(K)}$. Ceci étant, on obtient la relation :

$$(K_h^2 - 9K^2) \mathcal{E}_{h,F} = - \frac{9\omega^2}{c^2} \mathcal{P}_{3K}^{(3)} \quad (4.25)$$

A ce stade, nous faisons intervenir la différence des vecteurs d'ondes entre l'onde harmonique et l'onde de polarisation, à savoir :

$$K_h - 3K = \Delta K \quad (4.26)$$

accompagné des simplifications liées à la nature peu dispersive du milieu :

$$\Delta K \ll K_h \quad (4.27)$$

$$\Delta K \ll 3K$$

Compte-tenu de ces deux dernières relations, l'amplitude de l'onde forcée a pour expression :

$$\varepsilon_{h,F}(r,z) = - \frac{9\omega^2}{2c^2 K_h \Delta K} \varphi_{3K}^{(3)} \quad (4.28)$$

On peut désormais déterminer, à partir des expressions (4.24) et (4.28), les quantités $\varepsilon_{h,L}$ et K_h . En appliquant la condition aux limites :

$$\varepsilon_{h,K}(z=0) = 0 \quad (4.29)$$

on obtient :

$$K_{h_x} = 3K_x$$

$$K_{h_y} = 3K_y \quad (4.30)$$

$$\varepsilon_{h,L}(r,z) = - \varepsilon_{h,F}(r,z)$$

La troisième composante K_{h_z} s'exprime en fonction des deux premières par la relation :

$$K_{h_z} = K_h \sqrt{1 - 9 \frac{K_x^2 + K_y^2}{K_h^2}} \quad (4.31)$$

ce qui, compte-tenu de (4.19) se simplifie sous la forme :

$$K_{h_z} = K_h - \frac{9}{2} \frac{K_x^2 + K_y^2}{K_h} \quad (4.32)$$

Il nous reste à donner l'expression de l'onde harmonique générée par une onde paraxiale de vecteur d'onde \vec{K} . D'après (4.24) et (4.27) on a :

$$\mathcal{E}_{h_{(K)}}(r, z) = \mathcal{E}_{h, F}(r, z) e^{i3\vec{K}r} \left(1 - e^{-i(K_{h_z} - 3K_z)z} \right) \quad (4.33)$$

En remplaçant $\mathcal{E}_{h, F}(r, z)$ et K_{h_z} par leurs expressions (4.28) et (4.32) on aboutit finalement à :

$$\mathcal{E}_{h_{(K)}}(r, z) = - \frac{3\omega}{2 c n_h \Delta K} \varphi_{3K}^{(3)} e^{i3\vec{K}r} \left(1 - e^{i \left(K_h - 3K_z - \frac{9}{2} \frac{K_x^2 + K_y^2}{K_h} \right) z} \right) \quad (4.34)$$

On peut réécrire (4.34) d'une manière qui se révélera par la suite fort utile. En effet, d'après les relations (4.19) et (4.27), le terme ΔK qui apparaît au dénominateur de (4.34) est sensiblement égal, au facteur iz près, à $K_h - 3K_z - \frac{9}{2} \frac{K_x^2 + K_y^2}{K_h}$. Ainsi, grâce à la relation :

$$\frac{1}{\alpha} (1 - e^{-i\alpha}) = \int_0^1 dq e^{-i\alpha q} \quad (4.35)$$

on exprime (4.34) sous la forme intégrale :

$$\varepsilon_{h(\kappa)}(r, z) = \frac{3i\omega z}{2cn_h} \varphi_{3K}^{(3)} e^{i3\vec{K}r} \int_0^1 dq e^{i\left(K_h - 3K_z - \frac{9}{2} \frac{K_x^2 + K_y^2}{K_h}\right)zq} \quad (4.36)$$

* Reconstitution de l'onde harmonique à partir des composantes $\varepsilon_{h(\kappa)}(r, z)$:

Partant des expressions (4.17), (4.30) et (4.36), on écrit la composante $\varepsilon_{h(\kappa)}$ en fonction de la polarisation globale $\varphi^{(3)}$:

$$\varepsilon_{h(\kappa)}(r, z) = \frac{3i\omega z}{2cn_h} \left(\frac{3}{2\pi}\right)^3 e^{i3\vec{K}r} \int_{-\infty}^{+\infty} dx \int_{-\infty}^{+\infty} dy \int_{-\infty}^{+\infty} dz \int_0^1 dq \varphi^{(3)}(r, z) e^{-i\vec{K}r} e^{\left(3K_h + \Delta K - 3K_z - \frac{3}{2} \frac{K_x^2 + K_y^2}{K_h}\right)zq} \quad (4.37)$$

ce qui, d'après (4.16) et en effectuant le changement de variable $q = -\frac{1}{2} b(\zeta' - \zeta)$, aboutit à l'expression :

$$\mathcal{E}_{h(\mathbf{K})}(r, z) = \frac{3i\omega b}{16cn_h} \left(\frac{3}{2\pi}\right)^3 \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathcal{E}_{f0}^3 e^{i3\vec{K}r} \int_{\zeta_0}^{\zeta} d\zeta'' e^{-\frac{ib}{2} \left(3K_h + \Delta K - 3K_z - \frac{3}{2} \frac{K_x^2 + K_y^2}{K_h} \right) (\zeta'' - \zeta)}$$
(4.38)

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dx' \int_{-\infty}^{+\infty} dy' \int_{-\infty}^{+\infty} dz' \frac{e^{3iK_f z'}}{(1+i\zeta')^3} e^{-i3\vec{K} \vec{r}'} e^{\frac{-3K_f r'^2}{b(1+i\zeta')}} Q(z')$$

Connaissant l'expression de l'onde $\mathcal{E}_{h(\mathbf{K})}$ engendrée par l'onde plane et paraxiale de polarisation $\mathcal{P}_{3\mathbf{K}}^{(3)}$, on construit la valeur globale du champ électrique harmonique en ajoutant les champs relatifs aux différentes ondelettes harmoniques générées par chaque polarisation $\mathcal{P}_{3\mathbf{K}}^{(3)}$:

$$\mathcal{E}_h(r, z) = \int_{-\infty}^{+\infty} dK'_x \int_{-\infty}^{+\infty} dK'_y \int_{-\infty}^{+\infty} dK'_z \mathcal{E}_{h(\mathbf{K}')} (r, z) \quad (4.39)$$

En remplaçant $\mathcal{E}_{h(\mathbf{K}')}$ par sa valeur donnée en (4.38), on aboutit à l'expression du champ harmonique global :

$$\varepsilon_h(r, z) = \frac{3i\omega b}{16cn_h} \left(\frac{3}{2\pi}\right)^3 \epsilon_0 \chi^{(3)} \varepsilon_{f0}^3 \int_{-\infty}^{+\infty} dK'_x \int_{-\infty}^{+\infty} dK'_y \int_{-\infty}^{+\infty} dK'_z \int_{\zeta_0}^{\zeta} d\zeta'' e^{-\frac{ib}{2} \left(3K_h + \Delta K - 3K'_z - \frac{3}{2} \frac{K'_x{}^2 + K'_y{}^2}{K_h} \right) (\zeta'' - \zeta)} \quad (4.40)$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dx' \int_{-\infty}^{+\infty} dy' \int_{-\infty}^{+\infty} dz' \frac{e^{i3K_f z'}}{(1+i\zeta')^3} e^{-\frac{3K_f r'^2}{b(1+i\zeta')}} e^{-i3\vec{K}'(\vec{r}' - \vec{r})} Q(z')$$

L'intérêt physique du calcul se termine en ce point. Néanmoins, on peut simplifier cette dernière expression en trois étapes /Bjorklund 1975/ :

- on s'intéresse tout d'abord à l'intégration sur la variable K'_z :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dK'_z e^{i3K'_z \left((z-z') + \frac{b}{2}(\zeta'' - \zeta) \right)} \quad (4.41)$$

Celle-ci fait intervenir une exponentielle portant sur les variables conjuguées K'_z et z' ; cette intégrale est égale à la fonction de Dirac :

$$\frac{2\pi}{3} \delta \left[(z-z') + \frac{b}{2}(\zeta'' - \zeta) \right] \quad (4.42)$$

Pour la suite, ceci a pour conséquence de remplacer dans l'expression (4.40) toutes les variables ζ' par ζ'' , z' par $z + \frac{b}{2}(\zeta'' - \zeta)$ et de faire disparaître l'intégration sur la variable z' .

* la double somme sur les variables d'espace x' et y' s'écrit désormais :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dx' \int_{-\infty}^{+\infty} dy' e^{-i3(K'_x x' + K'_y y')} e^{-3K_f \frac{x'^2 - y'^2}{b(1+i\zeta'')}} \quad (4.43)$$

Cette expression se ramène au produit des deux intégrales simples du type :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dx' e^{-i\alpha x'} e^{-i\beta x'^2} \quad (4.44)$$

qui, à condition que la partie imaginaire du facteur β soit négative, se met sous la forme simple /Kleinman et al 1966/ :

$$\sqrt{\frac{\pi}{i\beta}} e^{\frac{i\alpha^2}{4\beta}} \quad (4.45)$$

* la dernière étape concerne l'intégration sur les variables K'_x et K'_y :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dK'_x \int_{-\infty}^{+\infty} dK'_y e^{-i3\omega(K'_x x + K'_y y)} e^{-\frac{3}{4}b \left(\frac{1+i\zeta''}{K_f} + \frac{\zeta'' - \zeta}{iK_h} \right) (K'_x{}^2 + K'_y{}^2)}$$

(4.46)

Moyennant l'approximation des faibles désaccords de phase, c'est-à-dire en posant $K_h \approx 3K_f$, on peut réutiliser une seconde fois la forme (4.44) afin de calculer cette expression.

Finalement, le calcul d'amplitude de l'onde harmonique générée à partir d'un faisceau laser TEM_{00} , d'amplitude \mathcal{E}_{f0} , effectué dans l'approximation des faisceaux paraxiaux, aboutit à l'expression établie par Ward et New /1969/ :

$$\mathcal{E}_h(r, z) = \frac{3i\omega b}{16n_h c} \frac{n_f}{n_h} \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathcal{E}_{f0}^3 \frac{e^{i3K_f z}}{1+i\zeta}$$

$$e^{-\frac{3K_f r^2}{b(1+i\zeta)}} \int_{\zeta_0}^{\zeta} d\zeta'' \frac{e^{-\frac{ib}{2} \Delta K(\zeta'' - \zeta)}}{(1+i\zeta'')^2} \quad (4.47)$$

En se référant à l'expression (4.15), on constate que la forme (4.47) correspond, au terme $(1+i\zeta'')^2$ près, au champ électrique de l'onde TEM_{00} ; les paramètres confocaux des ondes fondamentale et harmonique sont identiques, par contre le diamètre du "waist" et la divergence de l'onde harmonique sont réduits d'un facteur $\sqrt{3}$.

IV 1.2.2 Expression de la puissance harmonique

L'intensité I_h de l'onde harmonique à la coordonnée (r, z) nous est fournie par l'expression (4.10). La puissance harmonique se déduit de cette dernière en intégrant l'intensité sur la section du faisceau :

$$P_h(z) = \int_0^{\infty} dr \, 2\pi r \, I_h(r, z) \quad (4.48)$$

Après calcul des puissances harmonique et fondamentale, on exprime la puissance transportée par l'onde harmonique en sortie du milieu non-linéaire :

$$P_h(L) = \frac{3\omega^4}{16\pi^2 c^6 \epsilon_0^2} \left(\frac{n_f}{n_h} \right)^2 |X^{(3)}|^2 P_f^3 F\left(b\Delta K, \frac{b}{L}, \frac{f}{L}\right) \quad (4.49)$$

Le facteur d'adaptation de phase F est sans dimension. Il ne dépend que des paramètres de focalisation $\frac{f}{L}$ et $\frac{b}{L}$ ainsi que du paramètre d'accord de phase $b\Delta K$:

$$F\left(b\Delta K, \frac{b}{L}, \frac{f}{L}\right) = \left| \int_{-\frac{2f}{b}}^{\frac{2(L-f)}{b}} d\zeta'' \frac{e^{-\frac{ib}{2} \Delta K \zeta''}}{(1 + i\zeta'')^2} \right|^2 \quad (4.50)$$

IV 1.2.3 Facteur d'adaptation de phase : faisceau faiblement focalisé

Le laser est dit faiblement focalisé lorsque les dimensions transversales du faisceau varient peu sur la longueur d'interaction du milieu (faisceau collimaté). Ceci revient à poser :

$$b \gg L \quad (4.51)$$

Dans ces conditions, la variable ζ'' restant petite dans les limites du domaine d'intégration, elle peut être négligée au dénominateur de l'expression (4.50). L'intégration s'effectue alors sans aucune difficulté et conduit au terme d'adaptation de phase dans le cas limite des faibles focalisations :

$$F_{b \gg L} \left(b\Delta K, \frac{b}{L}, \frac{f}{L} \right) = \frac{4L^2}{b^2} \left(\frac{\sin \left[\left(\Delta K + \frac{4}{b} \right) \frac{L}{2} \right]}{\left(\Delta K + \frac{4}{b} \right) \frac{L}{2}} \right)^2 \quad (4.52)$$

L'expression est similaire à celle calculée dans le paragraphe IV 1.1.3. Toutefois, une nuance apparaît dans la mesure où l'accord de phase optimum n'est plus réalisé pour $(\Delta KL)_{opt} = 0$ mais désormais pour une valeur :

$$(\Delta KL)_{opt} = - \frac{4L}{b} \simeq 0 \quad (4.53)$$

En fait, dans le cas de faisceaux gaussiens, l'accord de phase entre l'onde harmonique et l'onde fondamentale ne signifie plus que les vecteurs de propagation de chaque onde soient identiques. La focalisation des faisceaux, si faible soit-elle, introduit un terme de phase supplémentaire dans l'expression des champs. Ainsi, lorsque l'accord de phase est parfait, le déphasage positif, lié à la focalisation entre les deux ondes, compense le déphasage négatif dû au phénomène de propagation lui-même.

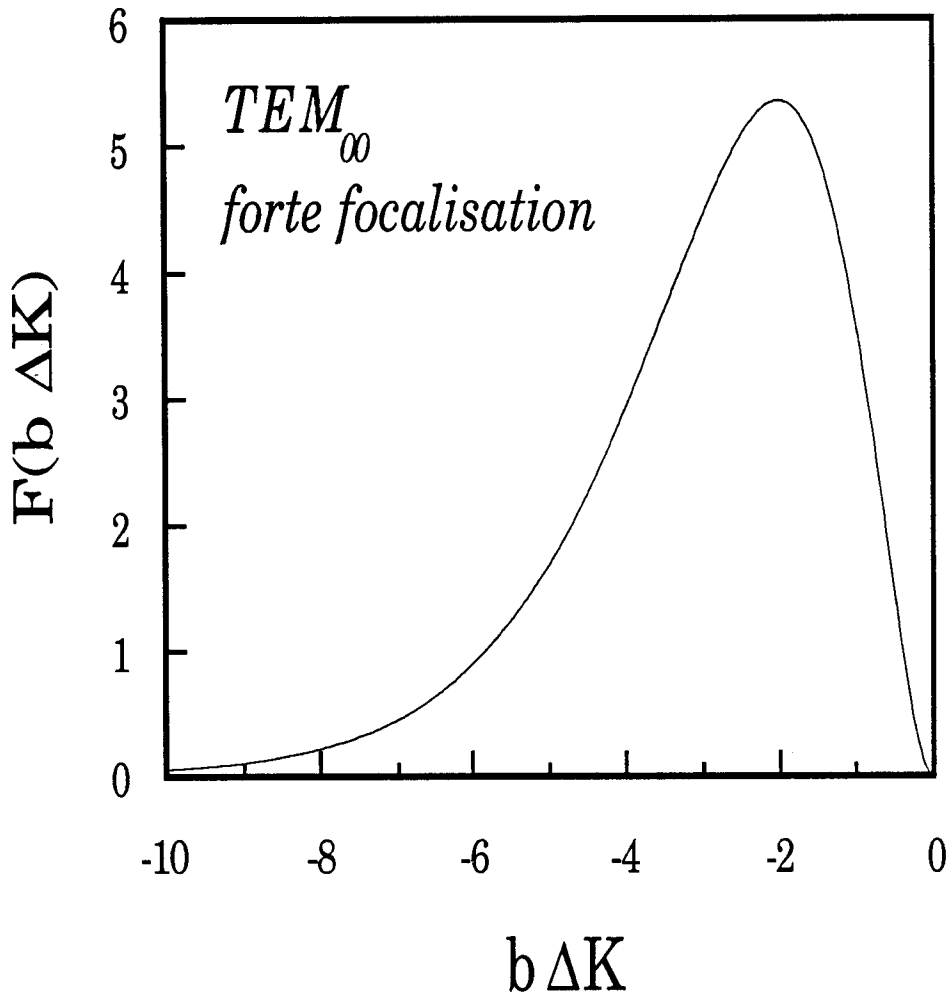


Figure IV.3

Courbe d'adaptation de phase calculée en régime de forte focalisation ($b/L \ll 1$) ou en milieu non linéaire de longueur L infinie. b représente le paramètre confocal du faisceau TEM_{00} . Le triplement de fréquence n'est réalisable que dans un milieu possédant une dispersion d'indice négative : $n(3\omega) < n(\omega)$.

**IV 1.2.4 Facteur d'adaptation de phase : faisceau
fortement focalisé.**

Dans ce régime de focalisation, les paramètres confocaux des faisceaux sont largement inférieurs à la dimension du milieu non-linéaire :

$$b \ll L \quad (4.54)$$

L'expression (4.50) se calcule alors en prolongeant le domaine d'intégration entre $-\infty$ et $+\infty$. Dans ces conditions, on montre que F s'exprime alors par :

$$F_{b \ll L} \left(b\Delta K < 0, \frac{b}{L}, \frac{f}{L} \right) = \Pi^2 (b\Delta K)^2 e^{b\Delta K} \quad (4.55)$$

$$F_{b \ll L} \left(b\Delta K \gg 0, \frac{b}{L}, \frac{f}{L} \right) = 0$$

Dans le cas d'une conversion harmonique en faisceau fortement focalisé et/ou en milieu infiniment long, la conversion n'est possible que dans les milieux possédant une dispersion d'indice négative ($n_h < n_f$).

D'après la figure IV.3, dans laquelle on a représenté le facteur d'adaptation de phase pour différentes valeurs de $b\Delta K$, on constate que l'onde harmonique est maximale pour un $(b\Delta K)_{opt}$ valant :

$$b\Delta K_{opt} \simeq -2 \quad (4.56)$$

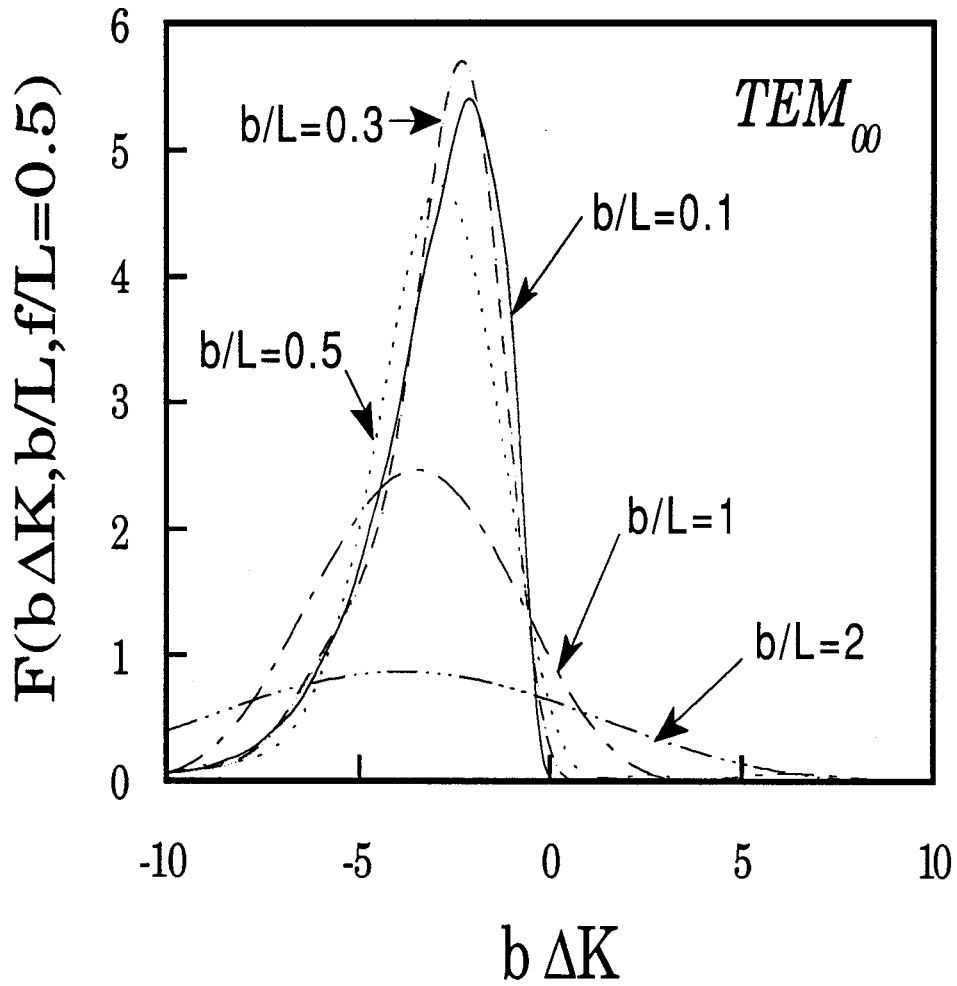


Figure IV.4

Evolution des courbes d'adaptation de phase en fonction des différents régimes de focalisation b/L .

IV 1.2.5 Facteur d'adaptation de phase : cas général.

Pour des régimes de focalisation intermédiaire où la taille des paramètres confocaux est comparable à la longueur du milieu non-linéaire ($b \simeq L$), le facteur d'adaptation de phase doit être évalué numériquement.

On a reporté figure IV.4 les courbes d'adaptation de phase pour différentes configurations expérimentales allant des régimes de faible focalisation ($b \gg L$) aux régimes de forte focalisation ($b \ll L$). Ces courbes appellent les commentaires suivants :

- le facteur d'adaptation de phase atteint sa valeur maximale dans le cas limite des fortes focalisations. Dans cette configuration, où l'adaptation de phase est représentée par une courbe étroite et centrée sur des valeurs négatives de ΔK , la réalisation et le maintien d'un bon accord de phase posent de sérieuses contraintes expérimentales (le milieu doit présenter une dispersion négative ou dite "dispersion anormale" d'indice);
- en faisceau faiblement focalisé, le facteur d'adaptation est certes nettement plus faible qu'en forte focalisation; néanmoins, la marge de manoeuvre, quant à la réalisation de l'accord de phase, est bien plus ample dans ce cas de figure.

Les résultats présentés dans cette partie sont soumis à une restriction : les ondes se propagent dans le milieu suivant le mode fondamental TEM_{00} . D'un point de vue expérimental, cette situation se trouve être peu réaliste, dans la mesure où les expériences d'optique non-linéaire sont gourmandes de fortes puissances laser. Les performances de puissance d'une source laser allant souvent au détriment des qualités géométriques du faisceau émis, les expériences de conversion de fréquence sont généralement réalisées à partir de lasers pulsés multimodes.

IV 1.3 Triplement de fréquence en faisceau gaussien de mode d'ordre élevé

Les calculs présentés précédemment ont été généralisés à la génération de troisième harmonique pour des modes gaussiens cylindriques d'ordres élevés /Yiu et al 1979/.

Plus récemment, Aguilon /1989²/ a traité le calcul de l'adaptation de phase pour la génération directe d'une onde harmonique d'ordre quelconque à partir d'un laser émettant un mode gaussien rectangulaire TEM_{pq} .

Les conclusions, quant à l'incidence de la structure du faisceau sur la conversion de fréquence, étant similaires que le mode soit cylindrique ou rectangulaire, nous nous limiterons à donner les résultats obtenus pour le triplement de fréquence en mode gaussien TEM_{pq} .

IV 1.3.1 Expression du champ harmonique

Partant d'une onde fondamentale de mode rectangulaire TEM_{pq} :

$$E_f(r, z) = E_{f0} H_p \left(\frac{\sqrt{2Kb}}{b(1+i\zeta)} x \right) H_q \left(\frac{\sqrt{2Kb}}{b(1+i\zeta)} y \right) \quad (4.57)$$

$$\left(\frac{1-i\zeta}{1+i\zeta} \right)^{\frac{1}{2}(p+q)} \frac{e^{iK_f z}}{1+i\zeta} e^{-\frac{K_f r^2}{b(1+i\zeta)}}$$

où H_p et H_q sont les polynomes d'Hermite que l'on écrira sous la forme :

$$H_n(x) = \sum_{m=0}^n c_m x^m \quad (4.58)$$

on aboutit, par une méthode semblable à celle utilisée dans la partie précédente et compte tenu des propriétés des polynomes d'Hermite /Abramowitz et Stegun 1970/, à une onde harmonique s'écrivant sous la forme :

$$E_h(r, z) = \frac{3^4 i\omega b}{2^7 \pi^3 n_h c} \epsilon_0 x^{(3)} E_{f0}^3 \frac{e^{i3K_f z}}{(1+i\zeta)} e^{-\frac{3K_f r^2}{b(1+i\zeta)}} \quad (4.59)$$

$$\int_{\zeta_0}^{\zeta} d\zeta'' \frac{e^{-\frac{ib}{2} \Delta K(\zeta'' - \zeta)}}{b(1+i\zeta'')^2} \mathfrak{R}_p(x, \zeta'') \mathfrak{R}_q(y, \zeta'')$$

On montre que les $\mathfrak{R}_{p,q}(\alpha, \zeta'')$ s'expriment en fonction des polynomes d'Hermite à travers la relation :

$$\mathfrak{R}_s(\alpha, \zeta'') = \sum_{n=0}^{3s} \lambda_{n,s} \left(\frac{1-i\zeta''}{1+i\zeta''} \right)^{\frac{1}{2} (3s-n)} \quad (4.60)$$

$$\left(\frac{1}{6(1+i\zeta)} - \frac{1}{6(1+i\zeta'')} \right)^{\frac{n}{2}} H_n \left(\sqrt{\frac{3K_f}{i(\zeta''-\zeta)}} \alpha \right)$$

Les facteurs $\lambda_{n,s}$ introduits ci-dessus interviennent dans l'expression de la puissance cubique du polynome d'Hermite :

$$(H_n(x))^3 = \sum_{m=0}^n \lambda_{n,m} x^m \quad (4.61)$$

Leurs valeurs sont données dans le tableau 1 pour les trois premiers ordres n.

	x^0	x^1	x^2	x^3	x^4	x^5	x^6
$(H_0(x))^3$	1						
$(H_1(x))^3$				8			
$(H_2(x))^3$	-8		48		-96		64

Tableau IV.1

Coefficients $\lambda_{n,m}$ non-nuls introduits dans l'expression (4.61)

En comparant les expressions (4.57) et (4.59), il apparaît que l'onde harmonique possède une structure multimode, dont le plus haut mode représenté est le mode TEM_{3p3q} .

IV 1.3.2 Puissance harmonique et facteur d'adaptation de phase

Connaissant la puissance transportée par le faisceau fondamental de mode $TEM_{p,q}$ et d'amplitude E_{f0} :

$$P^{(p,q)} = \frac{\epsilon_0 c \pi b n_f}{K_f} p! q! 2^{p+q-2} E_{f0}^2 \quad (4.62)$$

on peut déduire l'expression de la puissance harmonique de la relation :

$$P_h^{(p,q)} = \frac{1}{2} \epsilon_0 c n_h \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} |E_h(r, z)|^2 dx dy \quad (4.63)$$

ce qui aboutit à une expression identique à (4.49) si on prend le soin de définir comme suit le facteur d'adaptation de phase pour un mode $TEM_{p,q}$:

$$F^{(p,q)} \left(b\Delta K, \frac{b}{L}, \frac{f}{L} \right) = \frac{12bK_f}{\pi (p! q! 2^{p+q})^3 (b^2 + 4(L-f)^2)} \int_{-\infty}^{+\infty} dx \int_{-\infty}^{+\infty} dy \quad (4.64)$$

$$\left| \int_{-\frac{2f}{b}}^{\frac{2(L-f)}{b}} d\zeta'' \frac{e^{-\frac{ib}{2} \Delta K (\zeta'' - \zeta)}}{(1+i\zeta'')^2} \mathfrak{R}_p(x, \zeta'') \mathfrak{R}_q(y, \zeta'') \right|^2$$

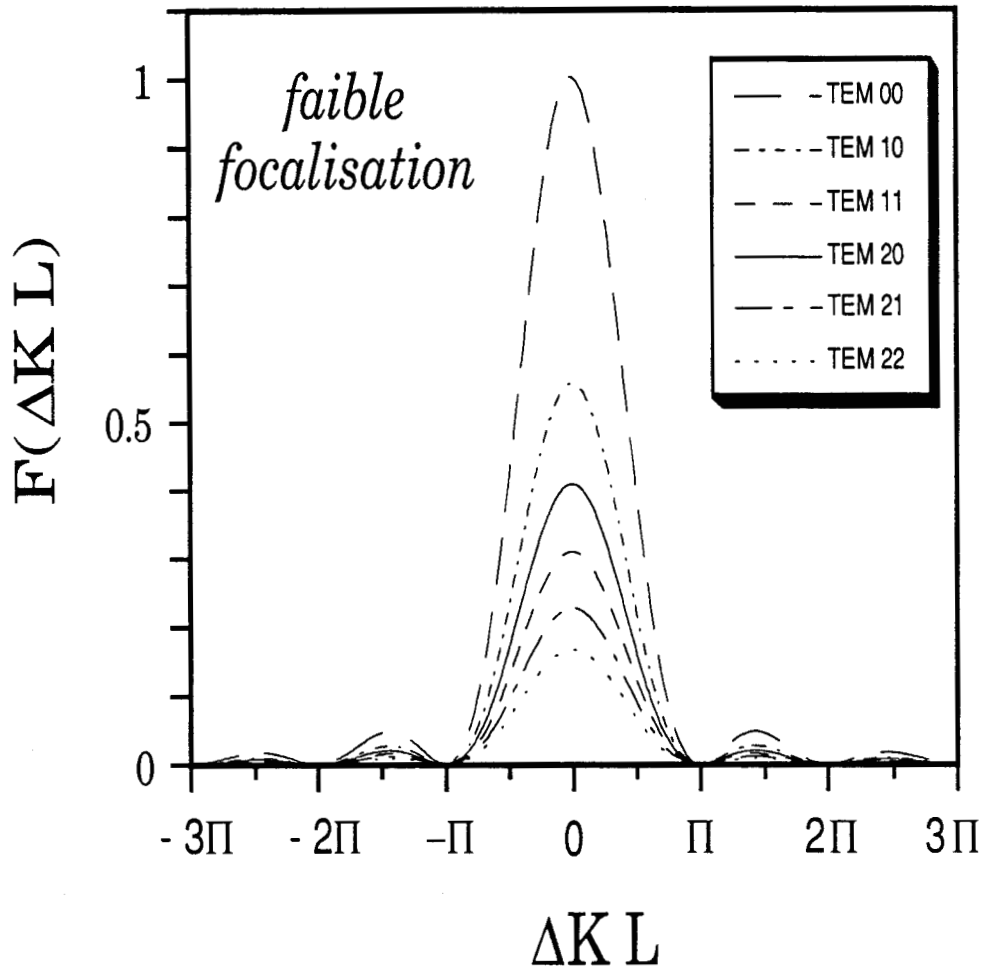


Figure IV.5

Variation du facteur d'adaptation de phase défini en (4.65) dans le cas limite des ondes planes. Ces courbes reflètent l'influence de chaque mode rectangulaire du laser vis à vis de la génération de troisième harmonique. Le mode laser TEM_{00} conduit au meilleur taux de conversion et de plus a la particularité de générer une onde harmonique mono-mode TEM_{00} .

Par conséquent, la modification du rendement de conversion, liée à l'utilisation d'un laser émettant un rayonnement de mode différent du mode fondamental TEM_{00} , est entièrement décrite par ce facteur d'adaptation de phase.

Comme précédemment, l'intégrale triple peut être mise sous forme analytique dans les deux cas extrêmes de focalisation.

IV 1.3.3 Régime de faible focalisation

Dans le cas où l'onde laser est faiblement focalisée ($b \gg L$), on montre que $F^{(pq)}$ s'exprime alors par la relation :

$$F_{b\Delta K \gg 1}^{(pq)} \left(b\Delta K, \frac{b}{L}, \frac{f}{L} \right) = \frac{4L^2}{b^2} \left(\frac{\sin\left(\frac{\Delta KL}{2}\right)}{\frac{\Delta kL}{2}} \right)^2 \mathfrak{R}_p \mathfrak{R}_q \quad (4.65)$$

Afin d'obtenir cette relation, on a fait l'approximation $\frac{L}{b} = 0$ (ceci revient à traiter l'onde fondamentale comme une onde quasi-plane).

Les coefficients \mathfrak{R}_p et \mathfrak{R}_q sont définis par une expression du type :

$$\mathfrak{R}_s = (s! 2^s)^{-3} \sum_{n=0}^{3s} \sum_{n'=0}^{3s} 12^{-\frac{n+n'}{2}} \left(\lambda_{n,s} \lambda_{n',s} \frac{(n+n')!}{\left(\frac{n+n'}{2}\right)!} \right) \quad (4.66)$$

Des courbes d'adaptation de phase sont représentées figure IV.5 pour quelques modes gaussiens.

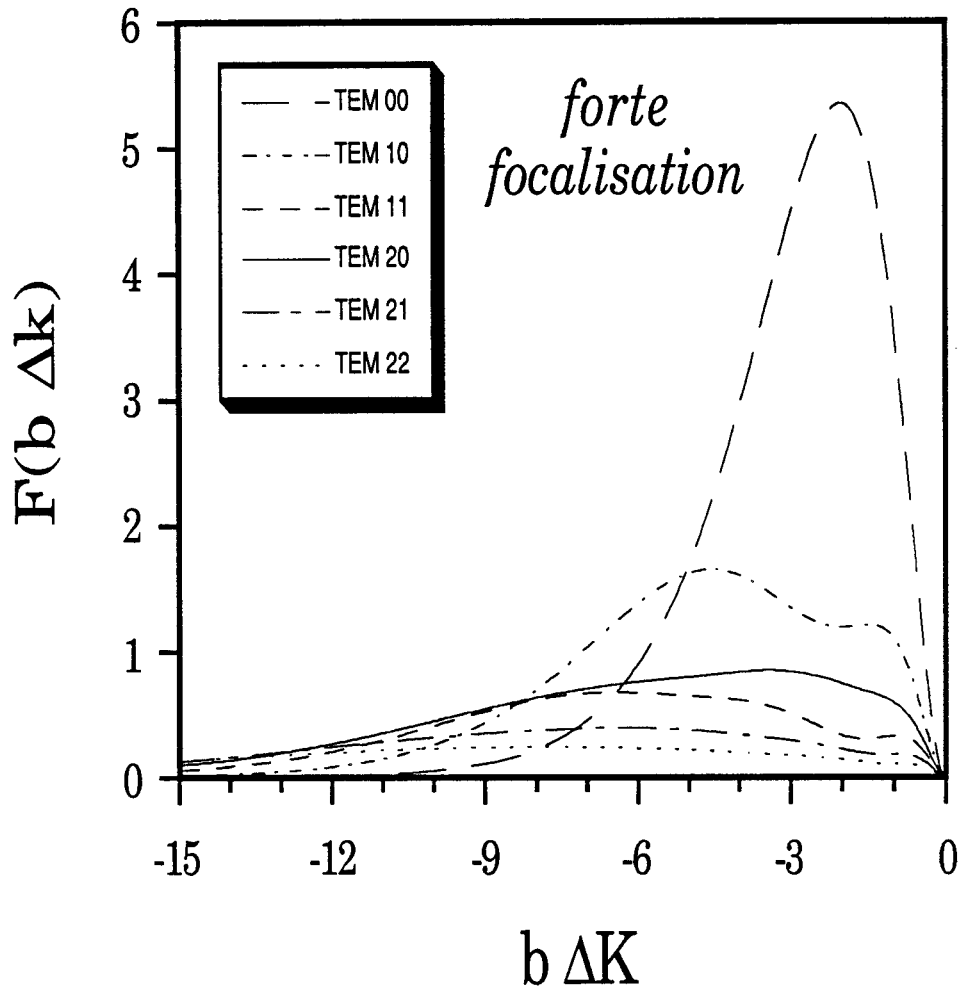


Figure IV.6

Evolution du facteur F en fonction du paramètre d'accord de phase $b\Delta K$. Cette figure résume les résultats obtenus pour le calcul du facteur d'adaptation de phase en mode gaussien TEM_{pq} dans le cas limite d'une forte focalisation. Ces courbes, tracées pour les six premiers modes rectangulaires, démontrent que le mode fondamental est de loin le plus efficace vis à vis de la création et de la propagation de l'onde harmonique. On constate que certains modes (TEM_{10} , TEM_{11}) se distinguent des autres par l'apparition d'un début de structure .

IV 1.3.4 Régime de forte focalisation

Pour ce qui est des fortes focalisations ($b \ll L$), l'expression (4.64) s'écrit :

$$F_{b \ll L}^{(p,q)} \left(b\Delta K \geq 0, \frac{b}{L}, \frac{f}{L} \right) = 0$$

$$F_{b \ll L}^{(p,q)} \left(b\Delta K < 0, \frac{b}{L}, \frac{f}{L} \right) = \frac{4\pi^2}{(p!q!2^{p+q})^3} e^{b\Delta K}$$

$$\sum_{j,j',m,m'=0}^{3p} \sum_{l,l',n,n'=0}^{3q} \sum_{L=P-Q-1}^{P-1} \sum_{L'=P'-Q'-1}^{P'-1} (b\Delta K)^{L+L'} \quad (4.67)$$

$$(-1)^{\binom{J+J'-2M}{2}} \binom{-J-J'-3M-3M'}{2} \binom{-J-J'}{3}$$

$$f(P,Q,L) f(P',Q',L') \frac{(m+m')!(n+n')!}{\left(\frac{m+m'}{2}\right)! \left(\frac{n+n'}{2}\right)!}$$

$$\lambda_{p,j} \lambda_{p,j'} \lambda_{q,l} \lambda_{q,l'} C_{j,m} C_{j',m'} C_{l,n} C_{l',n'}$$

où les différentes quantités $J, M, P, Q, f(P,Q,L)$ sont définies comme suit :

$$J = \frac{j+1}{2}$$

$$M = \frac{m+n}{2}$$

$$P = 2 - M + \frac{3}{2}(p+q) \quad (4.68)$$

$$Q = \frac{3}{2}(p+q) - J$$

$$f(P,Q,L) = \frac{(-1)^P 2^{-P+Q+1} Q!}{(P-L-1)! L! (L+Q+1-P)!}$$

Les courbes d'adaptation de phase calculées pour les différents modes gaussiens en régime de forte focalisation sont représentées figure IV.6.

On constate, d'après celle-ci, que le facteur F évolue différemment selon la nature du mode gaussien. Pour les modes non-fondamentaux, les courbes font apparaître un début de structure. Au fur et à mesure que le mode du laser s'éloigne du mode TEM_{00} , le maximum des courbes d'adaptation de phase diminue en amplitude et se déplace vers des valeurs de $b\Delta k$ de plus en plus négatives.

IV 1.3.5 Cas général

Pour des domaines de focalisation intermédiaire ($b \approx L$), il faut entreprendre un calcul numérique de l'intégrale triple figurant dans (4.64).

Notons que la quantité \mathfrak{R}_p fait apparaître un polynôme complexe en x de degré $3p$ (expression 4.60). De ce fait, par un changement de variable adéquat, le carré du module de l'intégrale portant sur la variable x se transforme en l'intégrale sur une expression de la forme $P_{(6p)}(x) e^{-f(\xi'')x^2}$, où $P_{(6p)}$ est un polynôme d'ordre $6p$ et $f(\xi'')$ est une fonction qui ne dépend que de ξ'' . Le calcul numérique de cette intégrale s'effectue aisément à l'aide de la méthode de Gauss-Hermite /Krylov 1962/. Par raison de symétrie, la démarche est identique pour calculer l'intégrale portant sur la variable y . Enfin, la quadrature de Gauss-Legendre /Krylov 1962/ permet d'intégrer sur la variable ξ'' .

Le résultat de ce calcul est présenté en figure IV.7, où l'évolution du facteur d'adaptation de phase, pour différents régimes de focalisation b/L , est calculée pour les 6 premiers modes rectangulaires TEM_{00} , TEM_{10} , TEM_{11} , TEM_{20} , TEM_{21} et TEM_{22} .

IV 1.4 Le facteur d'adaptation de phase dans le cas d'un laser hautement multimode.

Les expériences de triplement de fréquence sont généralement réalisées à l'aide de lasers multimodes. Cependant, les résultats déduits de ces expériences sont bien souvent interprétés en supposant le laser monomode TEM_{00} ! Cette approximation, pour le moins surprenante, est très fréquemment utilisée dans l'interprétation des expériences de conversion de fréquences. Ayant nous-mêmes fait le choix de son utilisation, on se propose d'en justifier le fondement.

Lorsque la conversion de fréquence est réalisée à partir d'un laser multimode, le calcul du facteur d'adaptation de phase de la conversion nécessite une bonne connaissance de la répartition des modes à l'intérieur de la cavité laser. Par répartition, on entend pouvoir définir - pour chacune des impulsions du laser - le nombre de modes représentés dans le faisceau ainsi que la nature et la phase relative de chacun de ces modes. Il va sans dire qu'il est assez rare, voire impossible, d'obtenir autant d'informations, surtout lorsque le laser est très fortement multimode.

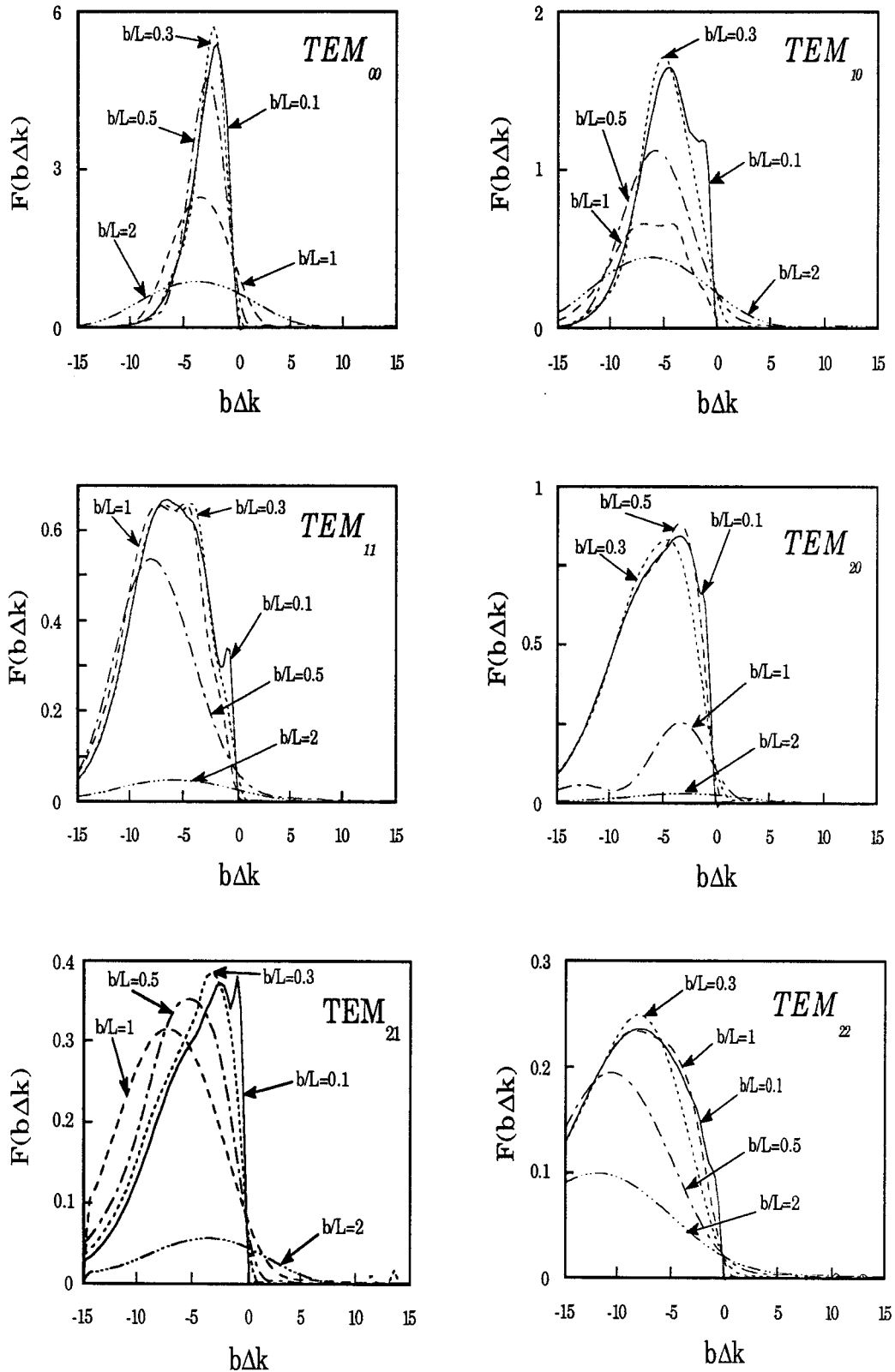


Figure IV.7

Représentation du facteur d'adaptation de phase calculé pour les différents régimes de focalisation b/L et ce pour les six premiers modes gaussiens TEM_{pq} du laser.

Toutefois, si le calcul exact du facteur d'adaptation de phase en faisceau multimode n'est pas faisable, on peut toujours, grâce à des considérations qualitatives, tenter d'en estimer l'allure ainsi que le comportement.

En effet, les calculs menés dans le paragraphe précédent montrent - figures IV.5 à IV.7 - que la prise en compte d'un mode laser d'ordre élevé $TEM_{p,q}$ se traduit, dans tous les cas, par un déplacement de la courbe d'adaptation de phase vers les $b\Delta K$ négatifs et par une diminution de son amplitude (et dans certains cas, par l'apparition de faibles structures dans la courbe d'adaptation de phase). Dans la mesure où le laser n'est pas monomode mais au contraire hautement multimode, la contribution d'un grand nombre de modes ne peut avoir pour conséquence que de lisser les effets de chaque mode et de donner lieu ainsi à une courbe d'adaptation de phase en forme de "cloche", dont le maximum se trouve atteint pour un $b\Delta K$ très négatif. Une approximation consiste donc à dire que cette courbe d'adaptation de phase a la même allure que celle calculée à partir d'un mode $TEM_{0,0}$ en surestimant la valeur absolue du produit $b\Delta K$. Ainsi, la variation de $F^{\text{multimode}}\left(b\Delta K, \frac{b}{L}, \frac{f}{L}\right)$ en fonction de $b\Delta K$ peut être évaluée par celle de $F^{(0,0)}\left(b'\Delta K', \frac{b'}{L}, \frac{f}{L}\right)$ en fonction de $b'\Delta K' = \alpha(b\Delta K)$, où α est de l'ordre de quelques unités. Bien entendu, l'amplitude du facteur d'adaptation de phase en faisceau multimode est plus faible qu'en faisceau monomode.

Cependant, dans la mesure où l'on se limite à des mesures relatives, cette différence de hauteur est sans conséquence.

Pour une longueur finie du milieu non-linéaire, le fait de surestimer seulement b ou seulement ΔK n'est pas équivalent : $F^{(00)}\left(b(\alpha\Delta K), \frac{b}{L}, \frac{f}{L}\right)$ et $F^{(00)}\left((\alpha b)\Delta K, \frac{(\alpha b)}{L}, \frac{f}{L}\right)$ peuvent être très différents l'un de l'autre.

Dans un laser multimode, la distance sur laquelle l'onde harmonique est générée est beaucoup plus grande que le paramètre confocal b du faisceau TEM_{00} ; il semble donc naturel de surévaluer le paramètre b plutôt que le paramètre ΔK . De façon générale, l'expérience confirme que surestimer la valeur du paramètre confocal b est la solution qui conduit aux meilleures interprétations lorsqu'on utilise l'approximation du laser TEM_{00} .

Pour la suite, bien que notre laser soit fortement multimode, nos facteurs d'adaptation de phase seront calculés à l'aide de l'approximation du laser TEM_{00} . Le paramètre confocal b' sera pris égal à celui qui a été mesuré dans la région focale du faisceau.

IV 2 ADAPTATION DE PHASE EN MILIEU INHOMOGENE

La finalité de ce paragraphe est d'étudier le comportement du facteur d'adaptation de phase lorsque le triplement de fréquence a lieu dans la détente d'un jet supersonique continu (schéma 2).

Le faisceau laser est supposé se propager suivant une direction z perpendiculaire à l'axe x du jet supersonique.

Le point de focalisation du faisceau est localisé à l'intérieur de la "zone de silence" sur l'axe même du jet supersonique.

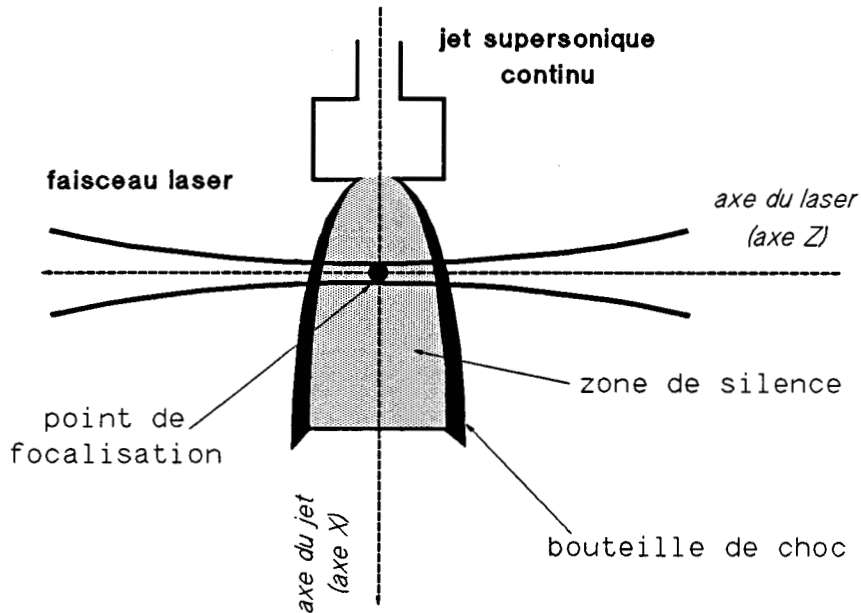


schéma 2: focalisation du laser au sein de la zone de silence du jet supersonique

Dans cette configuration, les inhomogénéités du milieu suivant l'axe y et x du jet peuvent être négligées vis à vis de l'inhomogénéité dans la direction de propagation du faisceau laser. Cette hypothèse est raisonnable dans la mesure où les caractéristiques de la détente varient peu sur une distance aussi courte que la dimension du point de focalisation du laser, du moins tant que le laser n'est pas focalisé trop près de la tuyère.

Par conséquent, on considère que le jet supersonique est "vu" par le laser comme un milieu ne possédant qu'une unique inhomogénéité suivant l'axe optique z.

IV 2.1 Etudes antérieures

Puell et al /1976/ ont étudié la génération de troisième harmonique dans des milieux possédant ces mêmes caractéristiques. Leur but était d'interpréter les phénomènes liés à la conversion de fréquence dans les sources d'évaporation de vapeurs métalliques. Ces sources, couramment utilisées comme milieux non-linéaires, ont en effet la particularité de créer des gradients de pression et de densité à la périphérie du milieu.

Ce modèle a été repris par Bethune et Rettner /1987/ afin de l'étendre à l'étude du triplement de fréquence d'un laser focalisé sur l'axe d'un jet pulsé. Ils ont donné une expression intégrale du facteur d'adaptation de phase qui a l'avantage de décrire clairement les mécanismes de la conversion :

$$F^{(00)} = \frac{4}{b^2} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dz \frac{\exp\left(-\int_{-\infty}^z dz' 3\left(iK_f + \frac{\alpha_f}{2}\right) - \int_z^{+\infty} dz' \left(iK_h + \frac{\alpha_h}{2}\right)\right)}{\left(1 - 2i\frac{z-f}{b}\right)^2} S(z) \right|^2 \quad (4.69)$$

Les vecteurs d'onde K_f , K_h ainsi que les coefficients d'absorption α_f , α_h sont désormais fonctions de la position z dans le milieu. Le facteur $S(z)$ représente le profil de densité du jet le long de l'axe optique z .

Le dénominateur de l'expression (4.69) est directement relié au fait que le laser est focalisé. Le numérateur, quant à lui, laisse clairement apparaître que l'onde harmonique correspond à la somme des ondelettes générées aux différentes abscisses z : la propagation de $-\infty$ à z est celle du laser (ou plus exactement de l'onde de polarisation générée par le laser); elle dépend des quantités α_f et K_f - le taux de conversion au point z est relié à la quantité $S(z)$ - enfin la propagation de l'onde harmonique entre z et $+\infty$ est gouvernée par les quantités α_h et K_h .

A partir de (4.69), Bethune et al ont démontré que l'efficacité de la conversion est relativement insensible à la forme du profil $S(z)$. Par conséquent, le jet libre peut être considéré comme un milieu homogène de longueur L variable. Cette longueur L correspond à la largeur de la "zone de silence"; elle dépend donc de la distance X qui sépare la tuyère du point de focalisation du laser.

Plus récemment, Lago et al /1987/ ont présenté une étude relativement complète afin d'analyser les effets paramétriques mettant en jeu différents lasers focalisés dans un milieu inhomogène unidirectionnel. L'application principale en a été l'étude de triplement de fréquence en jet supersonique.

Dans ce but, ils se sont intéressés à l'évolution du facteur d'adaptation de phase et à la fonction G représentée par le produit $(b\Delta K)^2 F(b\Delta k)$ (cette dernière quantité se déduit de l'expression (4.49) sachant que les termes $\chi^{(3)}$ et ΔK sont tous deux proportionnels à N); le facteur G est en effet la

quantité à considérer lorsque l'on cherche à optimiser la conversion dans un milieu où la densité varie. Lago et al ont ainsi montré qu'à la différence du facteur F , qui atteint son maximum pour un régime de forte focalisation ($\frac{b}{L} \ll 1$), la fonction G est optimale pour un régime de focalisation intermédiaire ($\frac{b}{L} \approx 1$).

L'originalité de leur étude a été de s'intéresser aux conséquences liées au déplacement du foyer laser en dehors de l'axe du jet. Le maximum de conversion peut être atteint pour des positions symétriques du foyer par rapport à l'axe du jet. En effet, pour des valeurs de $b\Delta K$ trop négatives, par rapport à la valeur $(b\Delta K)_{opt}$ qui rend le facteur F maximum, il est nécessaire de se déplacer dans des régions de densités plus faibles afin d'atteindre la valeur optimale $(b\Delta K)_{opt}$.

Un autre aspect de leur étude est la prise en compte de l'autoabsorption de l'onde harmonique. Les résultats démontrent que la conversion est plus efficace si l'on déplace le point de focalisation au-delà de l'axe du jet dans le sens de propagation des ondes. Ceci réalise en fait un compromis entre réduire l'épaisseur optique du milieu et donc favoriser la propagation de l'onde harmonique et augmenter la densité du milieu afin de générer plus de photons harmoniques.

IV 2.2 Triplement de fréquence dans la "zone de silence" d'un jet supersonique continu

On se propose de déterminer le facteur d'adaptation de phase pour un milieu non-linéaire constitué par un jet libre supersonique continu. Pour différentes zones du jet définies par la distance réduite foyer laser-tuyère X/D , le calcul sera mené sur la base des considérations suivantes :

- le laser délivre un rayonnement monomode TEM_{00} de paramètre confocal $b = 1,5$ cm;
- l'absorption sur les ondes fondamentale et harmonique est négligée;
- le milieu non-linéaire est constitué uniquement par la "zone de silence" du jet (figure III.1); la contribution du gaz résiduel n'est pas prise en considération. Cette limitation volontaire sur l'étalement du profil $S(z)$, qui fixe en fait la longueur d'interaction du milieu avec le laser, peut paraître d'autant moins fondée que l'on se rapproche de la tuyère. En effet, pour toutes les valeurs foyer laser - tuyère X/D correspondant à des largeurs du milieu inférieures au paramètre confocal b , on néglige le phénomène de conversion au-delà de la "zone de silence", c'est-à-dire dans le gaz résiduel lui-même. Cette approximation est en fait acceptable dans la mesure où l'intensité de l'onde harmonique évolue comme le carré de la densité.

En effet, à proximité de la tuyère, les densités à l'intérieur du jet sont nettement supérieures aux densités du gaz résiduel (de l'ordre de 10^{24} molécules/m³ contre 10^{21} molécules/m³); le laser est en présence d'un milieu géométriquement fin mais très dense.

Par contre, loin de la tuyère, le diamètre du jet est bien supérieur au paramètre confocal du laser; la conversion de fréquence prend donc place essentiellement à l'intérieur de la "zone de silence". De plus, dans le cas d'une conversion résonnante avec une transition moléculaire, le refroidissement dû à

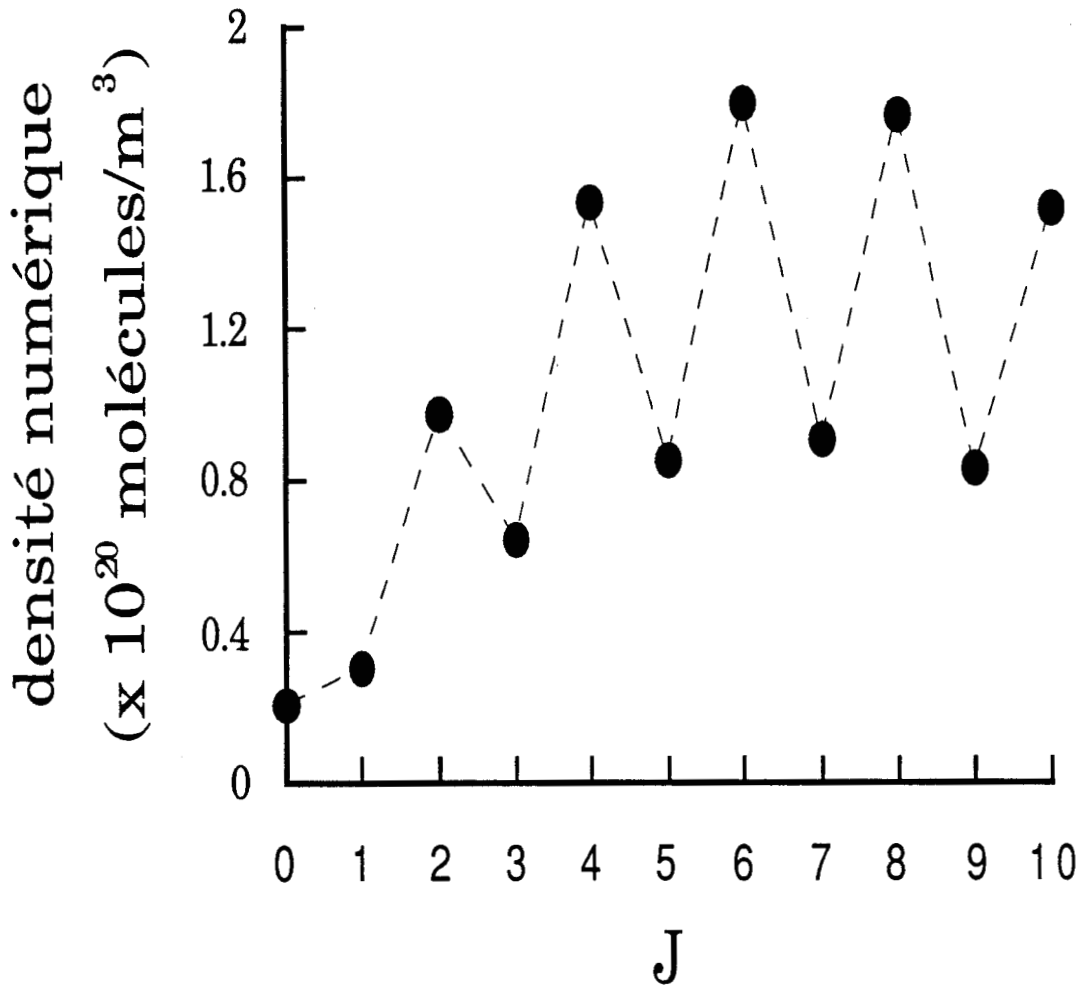


Figure IV.8

Calcul de la densité de molécules dans les états rotationnels $J=0$ à $J=10$ du niveau fondamental de la molécule d'azote dans le gaz résiduel (densité totale du gaz résiduel: $N_1=3.10^{21}$ molécules/m³; température du gaz résiduel: $T_1=300$ K).

la détente concentre la population totale de l'état électronique fondamental vers les états rotationnels d'énergies les plus faibles ; les états résonnants sont toujours plus peuplés dans le jet que dans le gaz résiduel. Cette particularité est illustrée par les figures IV.8 et IV.9 où l'on a calculé la densité numérique de molécules des états résonnants dans le gaz résiduel et dans le jet, pour des conditions expérimentales typiques;

- la conversion de fréquence dans l'épaisseur même de l'onde de choc, qui délimite la "zone de silence", n'est pas traitée. Dans nos conditions expérimentales, cette onde de choc est de très forte densité mais extrêmement mince. Cependant, la présence de cette structure peut influencer la conversion de façon non négligeable lorsque le laser est focalisé très près de la tuyère ($X/D \approx 0$).

Si l'on veut représenter l'évolution du facteur d'adaptation de phase le long du jet, il nous faut alors tenir compte du gradient de densité qui tend à diminuer la valeur du ΔK dans le sens de la détente.

Notre méthode consiste à choisir un paramètre $b\Delta K$ variant à l'intérieur d'un intervalle de référence; par exemple, on peut définir celui-ci à la position X/D au-delà de laquelle nos mesures seront effectuées, c'est-à-dire à $X/D=5$. En chaque point X/D de la détente, la courbe d'adaptation de phase sera calculée pour des valeurs de $b\Delta K$ déduites, via le gradient de densité, des valeurs initiales définies à $X/D=5$.

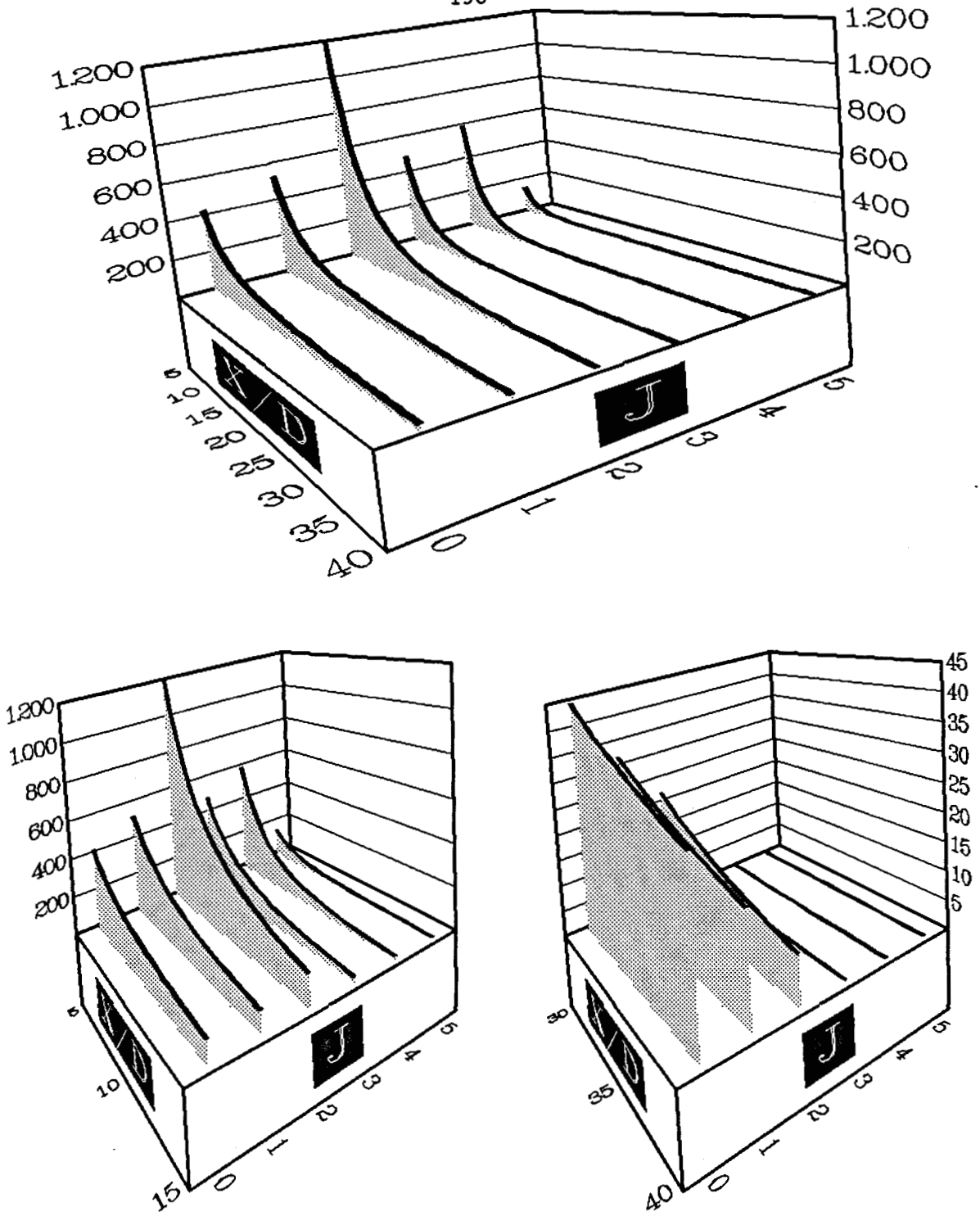


Figure IV.9

Evolution en jet de la densité axiale de molécules dans les états rotationnels $J=0,1,2,3,4$ et 5 du niveau fondamental de la molécule d'azote. L'échelle verticale est graduée en 10^{20} molécules/m³. Le calcul est effectué sur la base d'une détente isentropique (chapitre III) où l'on suppose que la répartition des populations de la molécule suit la loi de Boltzmann. Le jet est calculé pour une pression génératrice $P_0=4,2$ bars et une tuyère de diamètre $D=275 \mu\text{m}$.

Compte tenu de ce qui précède, le facteur d'adaptation de phase est calculé à partir de l'expression (4.69) (termes d'absorption négligés). Le profil de densité $S(z)$ utilisé est celui décrit par l'équation (3.23). Le paramètre $b\Delta K$ suit la loi d'évolution de la densité axiale du jet telle qu'elle est introduite en (3.19).

Il nous paraît judicieux de présenter les résultats de ce calcul en envisageant deux cas extrêmes :

- le premier, illustré figure IV.10, correspond à une situation où le paramètre $b\Delta K$ prend des valeurs assez faibles ($-10 < b\Delta K < +10$) en début de détente. Dans ce cas de figure, on constate que le facteur d'adaptation de phase calculé à un X/D donné est relativement constant;
- le second, où l'on se place dans des conditions initiales telles que les valeurs de $b\Delta K$ soient comprises entre -10 et $+10$ en fin de détente ($X/D=40$), est représenté figure IV.11. A l'opposé du cas précédent, le facteur d'adaptation de phase est maintenant fortement dépendant du paramètre d'accord de phase $b\Delta K$.

Nous verrons aux chapitres VII et VIII comment tirer parti de ce calcul selon que le milieu possède une faible ou une forte dispersion d'indice.

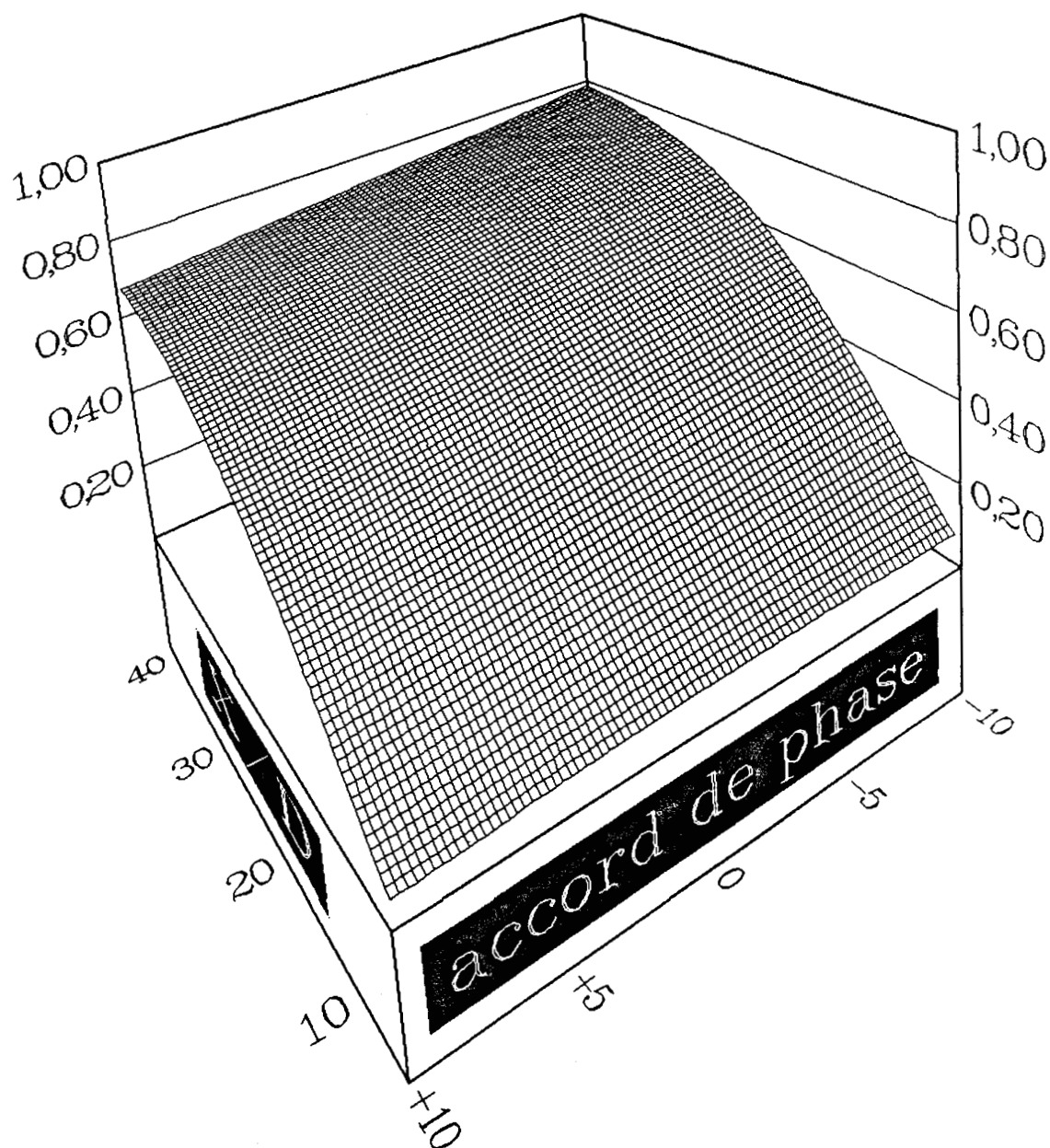


Figure IV.10

Evolution du facteur d'adaptation de phase sur l'axe du jet supersonique en fonction du paramètre d'accord de phase $b\Delta K$. Dans le cas d'un milieu peu dispersif, où l'on considère que $b\Delta K$ varie tout d'abord entre -10 et +10 en début de détente ($X/D=5$), puis évolue en diminuant au fur et à mesure que l'on progresse dans la détente ($5 < X/D < 40$), le facteur d'adaptation de phase est relativement indépendant de $b\Delta K$.

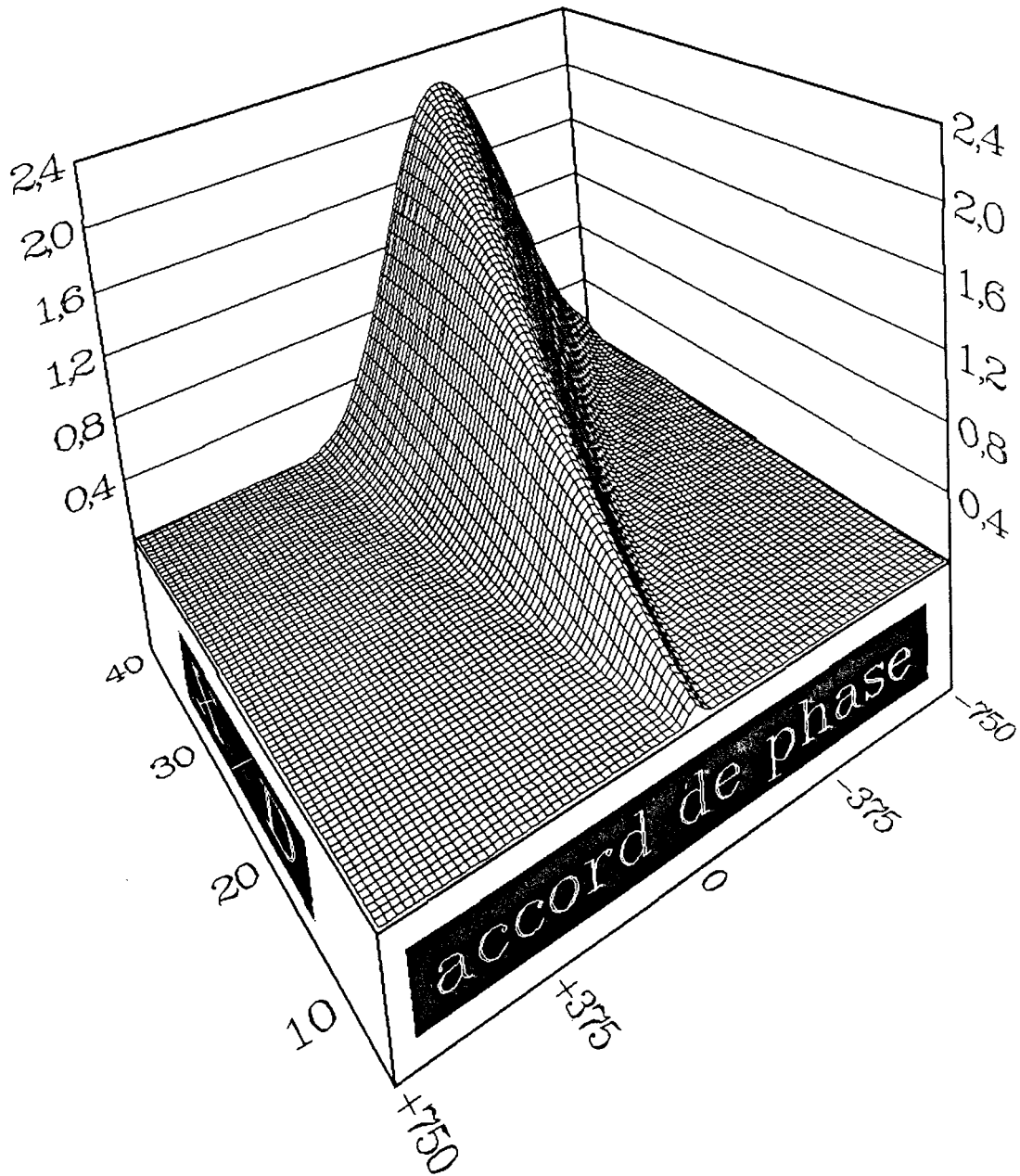


Figure IV.11

Evolution du facteur d'adaptation de phase sur l'axe du jet supersonique en fonction du paramètre d'accord de phase $b\Delta K$. Dans ce cas de figure le milieu est fortement dispersif. En effet, pour $X/D=40$, malgré l'intense raréfaction du milieu, le paramètre $b\Delta K$ varie tout de même entre -10 et +10 (ce qui équivaut à une variation entre -750 et +750 pour $X/D=5$).

IV 3 CONCLUSION

Ce chapitre a permis d'introduire le facteur d'adaptation de phase et de le définir dans des expériences de triplement de fréquence réalisées en milieux homogène et inhomogène.

Des calculs menés tout d'abord en ondes planes, puis en ondes gaussiennes TEM_{00} et enfin en ondes gaussiennes TEM_{pq} , ont démontré que l'efficacité de la conversion est étroitement reliée à la géométrie du faisceau laser. Ainsi, au fur et à mesure que le mode du laser s'éloigne du mode fondamental TEM_{00} , on constate que le facteur d'adaptation de phase a tendance à diminuer en amplitude et à se déplacer vers des valeurs de $b\Delta K$ de plus en plus négatives.

A la suite de ces calculs d'ordre général, on s'est intéressé plus particulièrement à l'étude du facteur d'adaptation de phase dans le cadre de nos expériences; c'est-à-dire lorsqu'un laser multimode est focalisé dans un milieu non-linéaire inhomogène constitué par la "zone de silence" d'un jet supersonique continu. Après avoir modélisé notre laser multimode par un faisceau gaussien TEM_{00} , et en justifiant cette approximation par des considérations qualitatives, nous avons évalué les variations du facteur d'adaptation de phase en différents stades de la détente supersonique. Dans ce calcul, ont été envisagés deux cas typiques : celui du milieu peu dispersif (faible densité et/ou faible absorption) et celui du milieu fortement dispersif (forte densité et/ou absorption importante). Dans le milieu peu dispersif, le facteur d'adaptation de phase est insensible à la valeur du paramètre $b\Delta K$ et ce, quelle que soit la position du laser dans la détente. Par contre, dans le cas du milieu fortement dispersif, les conditions d'adaptation de phase dépendent fortement de $b\Delta K$.

Le travail effectué dans ce chapitre se montrera très utile lors de l'analyse des résultats expérimentaux qui feront l'objet des chapitres suivants.

CHAPITRE V

Dispositif expérimental



V 1 LA CHAINE LASER

V 1.1 Laser pulsé Nd:YAG

V 1.2 Laser à colorant

V 1.3 Asservissement du doubleur de fréquence

V 1.4 Séparation et focalisation du faisceau UV

V 2 LE JET SUPERSONIQUE

V 2.1 Générateur "haute pression"

V 2.2 Système de pompage

V 3 LA DETECTION ET LE TRAITEMENT DU SIGNAL

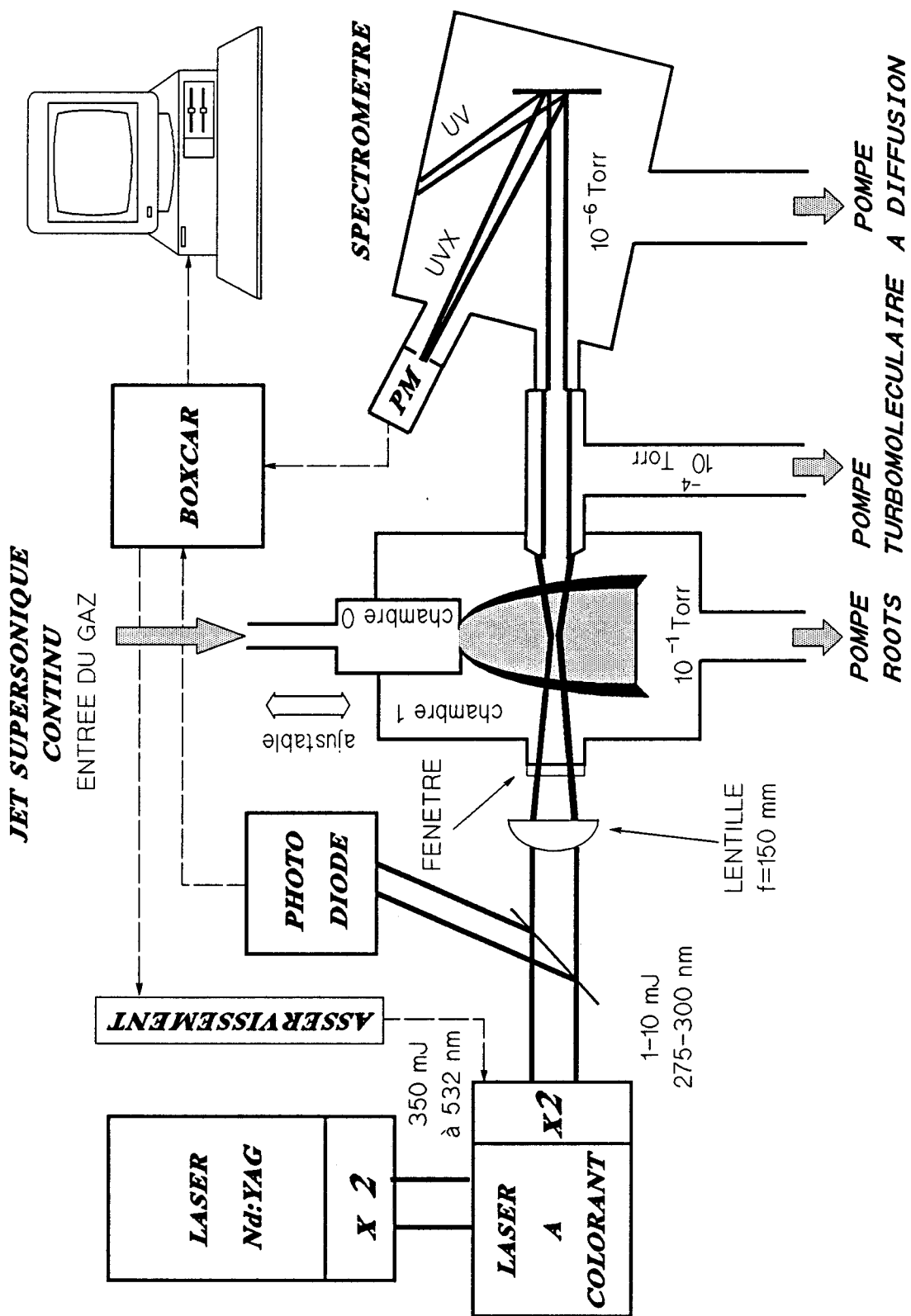


schéma 1 : montage expérimental

CHAPITRE V

Ce chapitre décrit l'ensemble du dispositif expérimental qui a permis de réaliser les expériences de triplement de fréquence.

Le schéma 1 présente une vue générale du montage expérimental dont la structure peut être séparée en trois parties distinctes, qui sont :

- la chaîne laser;
- le jet moléculaire;
- la détection et le traitement du signal.

V 1 LA CHAÎNE LASER

L'élément de base de la chaîne laser est un laser pulsé Nd:YAG fonctionnant en mode déclenché (Quantel YG 481) dont le rayonnement est doublé en fréquence par un cristal de KDP. L'énergie délivrée est utilisée afin de pomper une cavité à colorant accordable en fréquence (Quantel TDL IV) munie d'un système asservi de doublage de fréquence. La source de rayonnement ainsi constituée, délivre donc un photon UV (275-300 nm) à partir de deux photons visibles du laser à colorant correspondant à deux photons verts (532 nm)

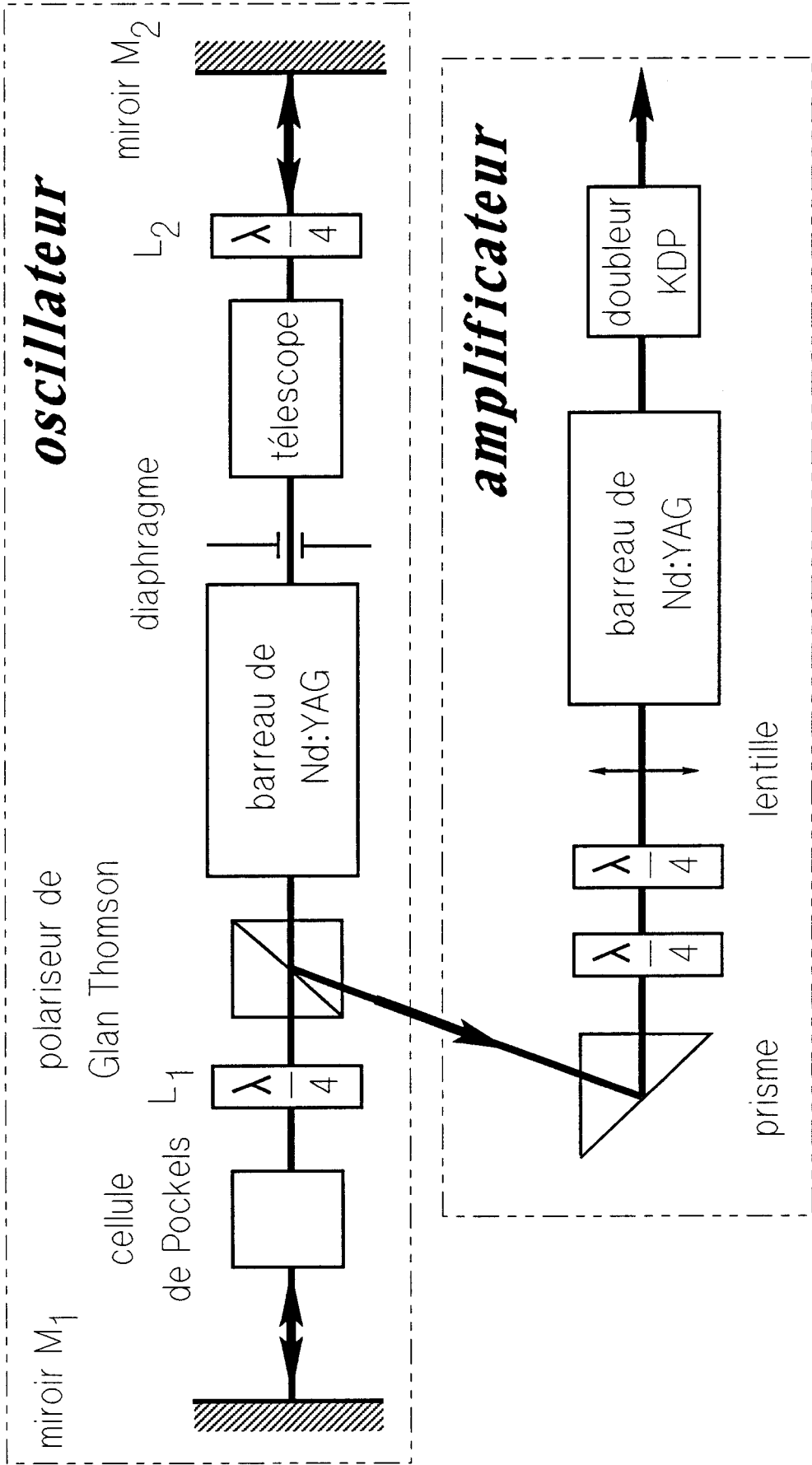


schéma 2 : laser Nd:YAG

du YAG doublé, soit encore quatre photons IR ($1,064 \mu\text{m}$) du YAG lui-même (bien entendu ceci n'exprime pas le rendement du dispositif).

V 1.1 Laser pulsé Nd:YAG

Le schéma de principe de notre laser Nd:YAG est présenté schéma 2.

La cavité oscillatrice est composée de :

- deux miroirs de réflexion maximale à $1,06 \mu\text{m}$. Le miroir M_1 est plan tandis que le miroir M_2 est faiblement divergent (rayon de courbure : 3 mètres);
- en guise de milieu amplificateur, un barreau de YAG dopé à 1% de Nd^{3+} (7 mm de diamètre sur 115 mm de long) optiquement pompé par deux lampes flash;
- un interrupteur électro-optique (cellule de Pockels) qui fait office de lame quart-d'onde lorsqu'une tension lui est appliquée;
- un prisme de Glan-Thomson agissant en tant que polariseur;
- une première lame quart-d'onde L_1 qui, associée à la cellule de Pockels, permet de contrôler l'ouverture de la cavité et une deuxième L_2 servant à l'extraction d'une partie du rayonnement à travers le prisme de Glan-Thomson;

- un télescope et un diaphragme qui, associés au miroir M_2 , permettent d'exploiter tout le volume du milieu amplificateur et d'extraire un faisceau de faible divergence.

L'ensemble de ces éléments est organisé afin de permettre au laser de fonctionner en régime déclenché. Lorsqu'aucune tension n'est appliquée aux bornes de la cellule de Pockels, l'association de celle-ci et de la lame quart-d'onde L_1 fait tourner la polarisation de $\Pi/2$ à la suite d'un aller et retour du faisceau dans la cavité. Ainsi, un photon polarisé de manière à traverser le prisme de Glan-Thomson dans un sens de propagation se voit éjecté de la cavité par ce même prisme après réflexion sur le miroir M_1 : la cavité est ouverte. Au contraire, lorsqu'une tension est appliquée à la cellule de Pockels, la polarisation après réflexion sur le miroir M_1 reste inchangée : la cavité est fermée.

La deuxième lame quart-d'onde L_2 placée à l'autre extrémité de la cavité permet, quant à elle, suivant son orientation par rapport à la direction de polarisation du laser, de rendre plus ou moins elliptique la polarisation de l'onde réfléchie par le miroir M_2 . La composante verticale de la polarisation peut ainsi être extraite par le prisme de Glan-Thomson, alors que la composante horizontale est maintenue dans la cavité afin d'entretenir l'effet laser.

Le faisceau infra-rouge extrait de l'oscillateur est réfléchi par un prisme en direction de deux lames quart-d'onde qui font tourner sa polarisation. Il est ensuite remis en forme par une lentille afin de compenser l'effet de lentille thermique introduit par le barreau amplificateur. Enfin, le rayonnement est amplifié par un

deuxième barreau de Nd:YAG identique au précédent avant d'être doublé en fréquence par le cristal de KDP.

Ce laser délivre, en sortie du cristal doubleur (à 532 nm), une énergie de 350 mJ/impulsion à raison d'un taux de récurrence de 9 Hz. La durée d'une impulsion étant de l'ordre de 10 ns, cette valeur correspond à une puissance crête de 35 MWatt.

V 1.2 Laser à colorant

La description du laser à colorant est fournie par le schéma 3.

Le faisceau vert (à 532 nm) de 350 mJ/impulsion, émis par le laser Nd:YAG, est réparti en énergie afin d'assurer le pompage optique du colorant dans :

- l'oscillateur via un miroir de coefficient de réflexion 2% : énergie de pompage de 7 mJ;
- le premier amplificateur via un miroir de coefficient de réflexion 11% : énergie de pompage de 40 mJ;
- le deuxième amplificateur via un miroir de coefficient de réflexion 22% : énergie de pompage de 65 mJ;
- le dernier amplificateur via un miroir de coefficient de réflexion 99.9% : énergie de pompage de 240 mJ;

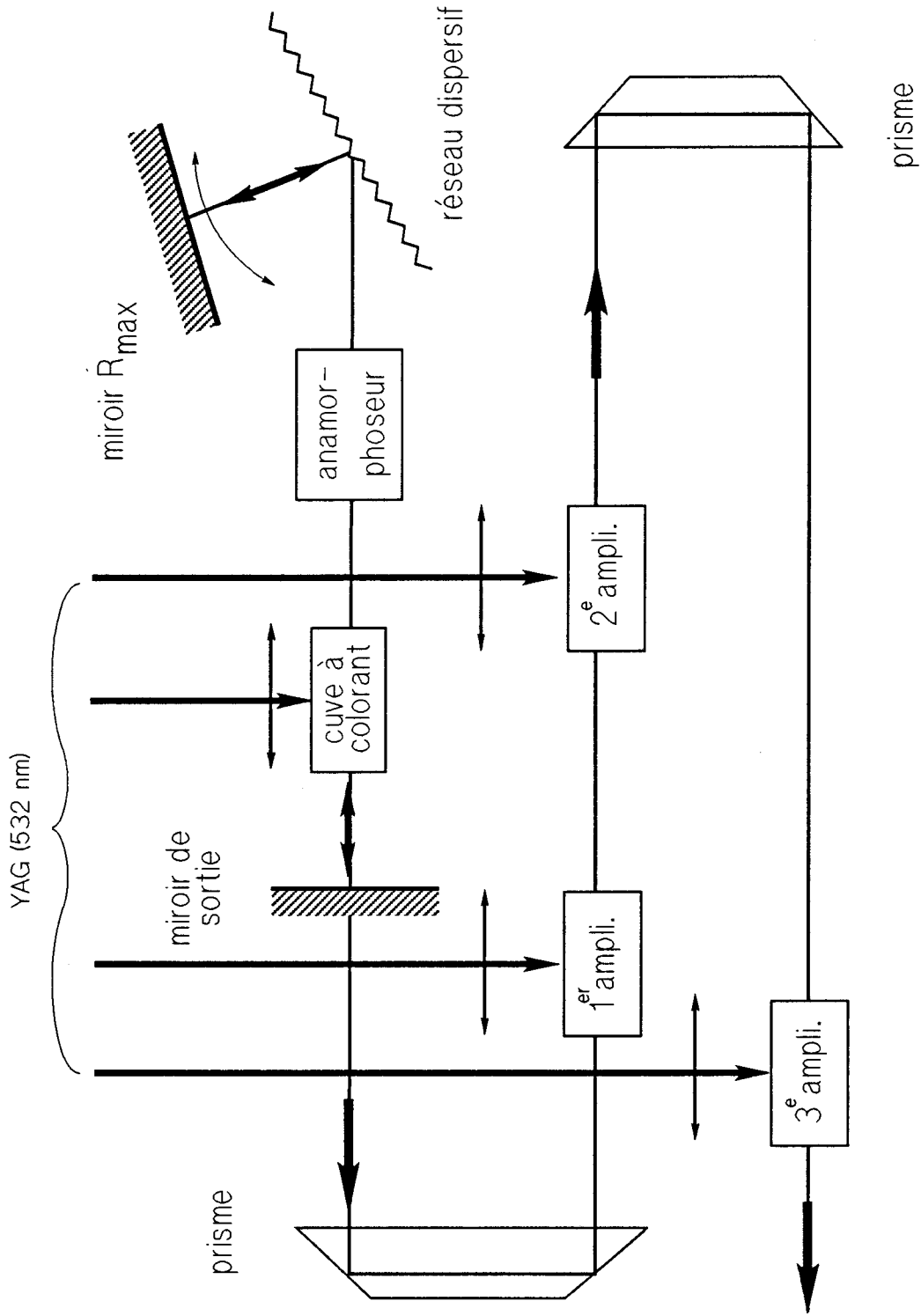


schéma 3 : laser à colorant

Le pompage des cuves à colorant s'effectue en géométrie transversale; il est amélioré grâce à l'emploi d'une lentille cylindrique qui focalise le faisceau à l'intérieur de chaque capillaire.

L'oscillateur est une cavité de Hänsch constituée :

- d'une cuve capillaire de 2 mm de diamètre dans laquelle circule le colorant;
- d'un miroir de sortie plan en silice dont le pouvoir de réflexion est de 4%. Le gain de l'oscillateur étant très important, l'énergie de la cavité se trouve extraite après seulement un aller et retour du faisceau à travers le milieu actif;
- d'un système de sélection en fréquence assuré par un réseau dispersif éclairé en incidence rasante et utilisé au premier ordre de diffraction en double passage. C'est un réseau holographique de 76 mm de large comptant 1800 traits/mm;
- d'un miroir de fond de cavité plan et totalement réfléchissant. Il est monté sur un support qui tourne par rapport au réseau afin de permettre l'accord en fréquence de la cavité;
- d'un système de prisme anamorphoseur qui éclaire totalement le réseau et permet ainsi d'obtenir un rayonnement de meilleur monochromaticité.

Après extraction de l'oscillateur, le faisceau traverse successivement les trois capillaires qui servent à l'amplification. En sortie du dernier étage amplificateur, l'énergie par impulsion vaut 100 mJ (à la fréquence d'émission correspondant au maximum de la courbe de gain de la Rhodamine 590, qui se trouve être le colorant le plus efficace). La durée de l'impulsion et le taux de répétition sont les mêmes que pour le laser de pompe; la largeur spectrale de l'émission est de l'ordre de $0,12 \text{ cm}^{-1}$ (3,6 GHz) à 600 nm.

Dans le paragraphe IV 1.3, on a pu constater que l'efficacité d'une expérience de conversion harmonique de fréquence repose énormément sur la géométrie du faisceau laser. A ce titre, ce type de laser possède un inconvénient important lié à un pompage asymétrique des milieux actifs (oscillateur et amplificateurs) par le faisceau de pompe qui entre par un côté unique du capillaire; la répartition de l'énergie dans le plan transverse du faisceau laser est inhomogène.

Afin de compléter la description de la chaîne laser, il nous reste à décrire le système de doublage de fréquence qui permet de générer un rayonnement UV proche et accordable en fréquence. Ce système repose sur l'emploi d'un cristal de KDP plongé dans un liquide d'indice. A la différence du KDP utilisé pour le laser Nd:YAG, on doit ajuster l'accord de phase en fonction de la fréquence de manière à maintenir une énergie délivrée constante. En effet, nos expériences nécessitent couramment une excursion de la fréquence laser de 0.3 nm dans l'UV proche tandis que la largeur à mi-hauteur de la courbe d'accord de phase à cristal fixe ne dépasse pas 0,05 nm !

V 1.3 Asservissement du doubleur de fréquence

/Galy 1987/

L'accord de phase est réalisé de manière angulaire en faisant varier, à l'aide d'un moteur à courant continu, l'angle entre l'axe optique du cristal et la direction de propagation des faisceaux. Afin de compenser la déviation du faisceau qui dépend de la position du cristal, on introduit sur le trajet optique un cristal factice de mêmes caractéristiques géométriques et optiques que le précédent. Il est couplé au mouvement du KDP de telle sorte que la rotation de celui-ci laisse inchangée la position du faisceau laser après traversée des deux cristaux.

L'adaptation de phase est asservie en fréquence par une boucle de contre-réaction à partir de la mesure de l'énergie du rayonnement laser après doublage. Ainsi, le rayonnement issu du KDP (visible+UV) est réfléchi par un prisme à réflexion totale. On récupère, derrière celui-ci, la diffusion qui correspond à une infime partie du rayonnement et que l'on filtre de manière à ne conserver que la partie UV. Une photo-diode rapide, reliée à un intégrateur à porte, se charge d'en mesurer l'énergie sur la durée d'une impulsion laser. Par cette méthode, on obtient une tension électrique proportionnelle à l'énergie UV du laser, qui est comparée à une tension de référence par un amplificateur différentiel. La tension d'erreur ainsi déduite permet, après amplification, d'alimenter le moteur continu qui ajuste le cristal doubleur à sa position correcte.

V 1.4 Séparation et focalisation du faisceau UV

La méthode utilisée pour séparer le rayonnement UV de la forte proportion de rayonnement visible consiste à utiliser un prisme de Pelin-Broca.

Le faisceau UV, une fois isolé, est focalisé par une lentille plan-convexe sphérique de focale 150 mm (diamètre 50 mm). Un ordre de grandeur du paramètre confocal a été estimé en mesurant la taille de la tache déposée par le laser sur un papier photographique en différentes abscisses autour du point focal. Ainsi, on a évalué un paramètre confocal de 15 mm pour un foyer laser de 100 μm de diamètre environ.

Au terme de cette partie, on récapitule les caractéristiques de notre laser UV :

- * durée de l'impulsion : 10 ns (mesurée);
- * fréquence de tir : 9 Hz (mesurée);
- * énergie par impulsion : 5 - 10 mJ (énergie typique mesurée lorsque le colorant utilisé est la Rhodamine 590);
- * puissance par impulsion : 0,5 - 1 MWatt (calculée en considérant que l'énergie est répartie uniformément sur la durée de l'impulsion laser);
- * puissance moyenne : 0,05 - 0,1 Watt (calculée)

- * **largeur spectrale** : $0,17 \text{ cm}^{-1}$ (calculée sachant que le constructeur indique une largeur spectrale avant doublage de $0,12 \text{ cm}^{-1}$);
- * **paramètre confocal** : 15 mm (mesuré)
- * **diamètre du faisceau au point focal** : $100 \text{ }\mu\text{m}$ (mesuré)

V 2 LE JET SUPERSONIQUE

V 2.1 Générateur "haute pression"

Le jet supersonique utilisé est un générateur continu de type "haute pression" composé d'une chambre génératrice (chambre 0) dans laquelle est contenu le gaz à température ambiante et une chambre de détente (chambre 1) où le jet est formé au sein du gaz résiduel. Cette source a été construite selon les standards qui lui assurent une très grande flexibilité : changement aisé de la tuyère, compatibilité avec les autres générateurs très performants construits au laboratoire tels que le four à 3000 K /Campargue et al 1979/, /Gaveau 1984/, la source atomique comme celle utilisée par A. Lebéhot, J. Marx et S. Drawin /Marx et al 1985/, /Marx 1986/, /Lebéhot et al 1990/, /Drawin 1990/ et enfin la source d'oxygène atomique à très haute énergie (1 à 5 eV) qui est en cours d'exploitation et sur laquelle travaillent A. Lebéhot, R. Campargue et C. Meis /Asselin et al 1991/.

Le faisceau laser UV, perpendiculaire à l'axe du jet, est focalisé au coeur de la zone de silence du jet, sur l'axe lui-même. Le réglage de la distance foyer laser-tuyère s'effectue en reculant ou en avançant la tuyère du jet, ce qui présente l'avantage d'être très précis et d'éviter des désalignements optiques qui risquent de survenir lorsque la lentille est elle-même déplacée. Les jets construits au Laboratoire des Jets Moléculaires nous permettent ce type de réglage étant donné qu'ils sont équipés, à l'origine, d'un dispositif très précis de translation de la tuyère sans qu'il soit besoin de casser le vide ni-même d'interrompre l'écoulement du jet.

Le dispositif expérimental, tel qu'il est décrit ci-dessus, peut, par le biais d'une simple modification, être transformé de manière à utiliser le jet moléculaire non plus en tant que tel mais comme une demi-cellule. Pour ce faire, il suffit de substituer à la fenêtre d'entrée du faisceau une enceinte comportant une arrivée de gaz sous faible pression, une fenêtre d'entrée et un trou de sortie débouchant sur la chambre 1. En choisissant un trou de sortie de taille suffisante pour permettre le passage du faisceau laser, on réalise ainsi une demi-cellule dont le pompage est assuré par la chambre de détente du jet. Le positionnement du point de focalisation dans la demi-cellule se règle alors en déplaçant la lentille parallèlement à la direction de propagation du laser.

Enfin, avant de clore cette partie, notons qu'il est possible, sur la base de cette dernière configuration, de se replacer dans une expérience de jet en échangeant le trou de sortie de la demi-cellule par un trou de très faible diamètre (tuyère) et en augmentant la pression dans la demi-cellule (rebaptisée chambre génératrice); la détente du jet s'opère désormais sur l'axe du faisceau laser.

Bien qu'ayant mené des expériences dans les trois types de configuration (demi-cellule, jet perpendiculaire au laser, jet parallèle au laser), l'essentiel des résultats exposés dans ce mémoire a été obtenu pour une géométrie où l'axe optique et l'axe du jet forment un angle droit.

V 2.2 Système de pompage

La chambre de détente est maintenue sous une pression résiduelle d'environ 0,1 torr grâce à un banc de pompage, placé en sous sol, qui compte :

- une pompe Roots d'un débit de $2000 \text{ m}^3/\text{h}$ (Sogev, modèle 2000), connectée directement sur la chambre 1 du jet. Son démarrage se fait automatiquement dès que la pression à l'admission atteint 2 Torr;
- une pompe Roots d'un débit de $350 \text{ m}^3/\text{h}$ (Sogev, modèle 350), dont l'admission est effectuée au niveau du refoulement de la pompe Roots 2000. La Roots 350 démarre automatiquement avant la Roots 2000 à partir de l'instant où sa pression d'admission est inférieure à 50 Torr;
- une pompe à palette d'un débit de $200 \text{ m}^3/\text{h}$ (Alcatel), qui ramène à la pression atmosphérique les gaz refoulés par la pompe Roots 350.

La pression en chambre génératrice est mesurée par un manomètre à lame de type Blondelle. En ce qui concerne la chambre de détente, on a utilisé une jauge de Pirani (Sogev Médiovac) et une jauge capacitive (Datametrics).

V 3 LA DETECTION ET LE TRAITEMENT DU SIGNAL

Après focalisation du laser UV au coeur du jet, l'onde harmonique générée dans l'UV lointain (UVX) et l'onde fondamentale UV non convertie se propagent colinéairement suivant l'axe du faisceau laser. La dernière partie de notre montage expérimental a pour rôle de séparer l'onde harmonique de l'onde fondamentale et d'effectuer ensuite une mesure du nombre de photons UVX créés durant le temps d'émission du laser.

Les tâches dévolues à notre chaîne de détection sont :

- d'opérer le filtrage des photons harmoniques sachant que ceux-ci ne représentent qu'une infime partie de la totalité des photons (UV + UVX) présents; dans des conditions de faible taux de conversion, la détection doit être suffisamment sensible pour remarquer un photon UVX perdu parmi pas moins d'un billion de photons UV;
- de fonctionner sous vide, puisque le rayonnement UVX est fortement absorbé par tous les matériaux. Le fluorure de lithium (LiF) est transparent au dessus de 106 nm; dans le domaine des longueurs d'onde UVX, c'est-à-dire en dessous de 106 nm, il n'existe aucun matériau optique transparent.

Le filtrage est assumé par un spectromètre (McPherson modèle 225) maintenu sous vide (10^{-6} Torr) à l'aide de sa propre pompe à diffusion d'huile. La fente d'entrée du spectromètre est réglée sur une ouverture fine (0,1 mm) tandis que celle de sortie est grande ouverte (2 mm). Cette configuration confère au spectromètre un rôle de filtre passe-bande qui nous permet de faire varier la longueur d'onde harmonique sur un intervalle de 0,3 nm sans pour cela devoir réajuster la position du réseau (l'enregistrement de la fonction d'appareil du spectromètre est représenté figure V.1).

La détection du photon UVX est réalisée par un multiplicateur d'électrons (Intertechnique XP1600) utilisé comme photomultiplicateur sur lequel on a pris soin d'ôter l'enveloppe de verre.

Les impulsions du laser étant de très courte durée, le traitement des signaux est réalisé grâce à des intégrateurs à porte (Stanford Research System, boxcar SR250) dont le rôle est à la fois de définir une porte synchronisée sur l'impulsion laser, d'intégrer le signal d'entrée sur la largeur de cette porte et de délivrer en sa sortie une tension proportionnelle à la valeur de la dernière intégrale calculée. En résumé, l'intégrateur à porte sert de lien entre la partie électronique rapide (photomultiplicateur, photo-diode) et la partie lente (convertisseur analogique/digital, asservissement du cristal doubleur, table XY).

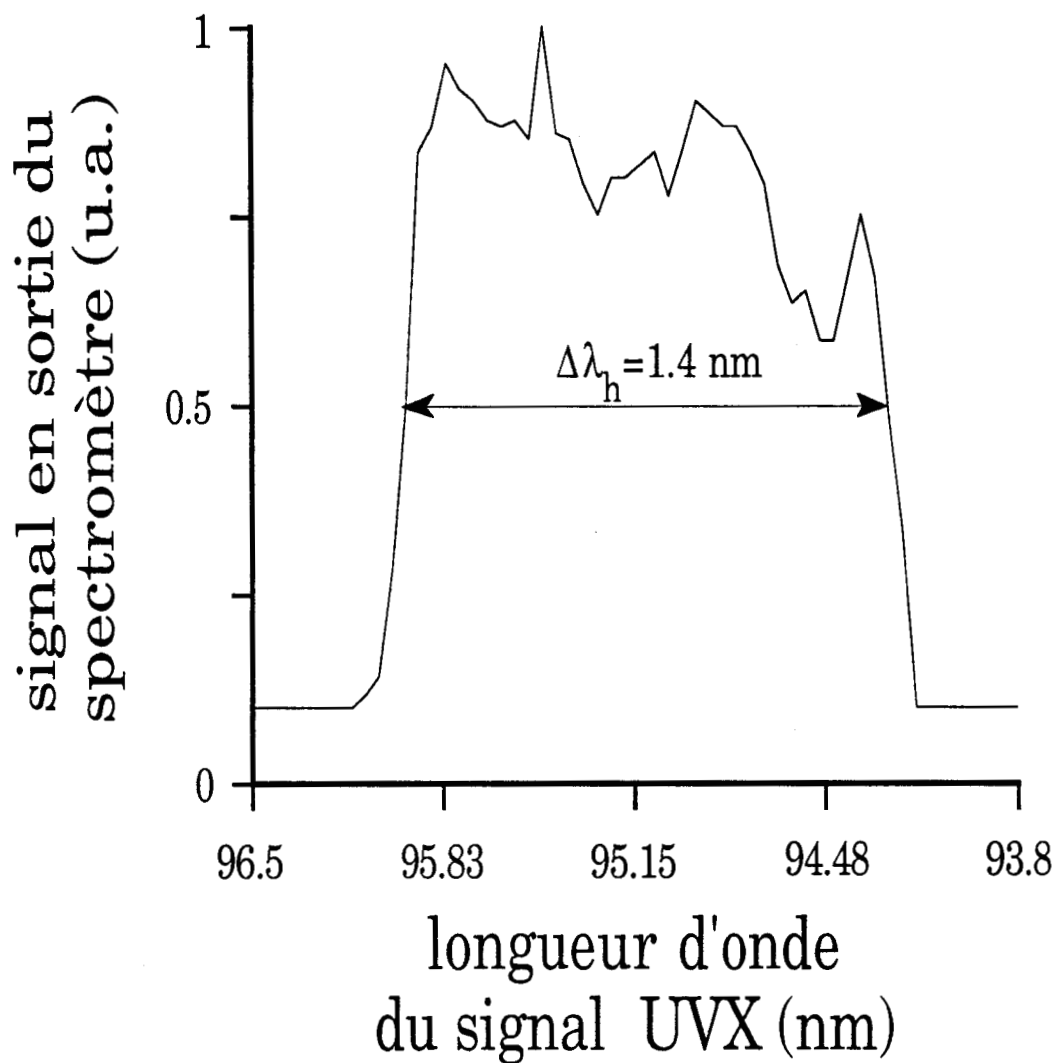


Figure V.1

Fonction d'appareil du spectromètre enregistrée lorsque la fente d'entrée est de 0,1 mm pour une fente de sortie de 2 mm. Le fait que le sommet du rectangle ne soit pas régulier est dû aux fluctuations de puissance du laser.

Enfin, le balayage de la fréquence laser, la surveillance en temps réel du dispositif d'asservissement du cristal doubleur, l'acquisition et l'archivage des données sont gérés par un micro-ordinateur qui pilote le déroulement d'un enregistrement et effectue la mise en forme des résultats /Aguillon 1989¹/.

Les chapitres suivants sont consacrés à l'étude expérimentale du triplement de fréquence sans ou avec amplification par résonance à deux photons puis à trois photons.

CHAPITRE VI

Etude expérimentale

VI 1 ETALONNAGE DES ENREGISTREMENTS

VI 1.1 Principe

VI 1.2 Discussion

VI 2 RENDEMENT DE CONVERSION ET FACTEUR DE MERITE

VI 3 ATLAS DE SPECTRES DE TRIPLEMENT DE FREQUENCE

**VI 4 LES QUALITES ET LES AVANTAGES DU JET SUPERSONIQUE DANS
LES EXPERIENCES DE CONVERSION DE FREQUENCES**

CHAPITRE VI

Ce chapitre est un préambule à l'étude expérimentale du triplement de fréquence en jet supersonique qui sera traitée aux chapitres VII et VIII. Après avoir introduit les problèmes liés à l'étalonnage de notre chaîne de mesure, nous discuterons des qualités du jet en tant que milieu non-linéaire dans les expériences de conversion des fréquences.

VI 1 ETALONNAGE DES ENREGISTREMENTS

Le principe d'étalonnage en puissance de la chaîne de détection est basé sur la mesure du nombre de photons UVX détectés par le multiplicateur d'électrons en sortie du spectromètre (chapitre V, schéma 1). Cette quantité ne représente pas la totalité du nombre de photons harmoniques créés au point de focalisation à l'intérieur du jet, mais seulement une partie de celle-ci.

VI 1.1 Principe

Le rayonnement harmonique, émis au sein du jet lors d'une impulsion laser, véhicule une énergie W_h . Le nombre de photons UVX créés vaut donc :

$$\frac{W_h}{h\nu_h} \quad (6.1)$$

Ces photons sont collectés par le spectromètre à travers une fente d'entrée de surface "s" sur laquelle le faisceau harmonique forme une tache de surface S. Faute de moyen d'analyse de cette tache, nous supposerons que la densité d'énergie y est uniforme; il pénètre donc

$$\frac{W_h}{h\nu_h} \frac{s}{S} \quad (6.2)$$

photons harmoniques dans le spectromètre.

Après réflexion par le réseau (pouvoir de réflexion R) et conversion par la photocathode du photomultiplicateur (rendement quantique ρ), le nombre de photo-électrons détectés vaut :

$$\frac{W_h}{h\nu_h} \frac{s}{S} R \rho \quad (6.3)$$

La quantité n_e d'électrons à la sortie du photomultiplicateur dépend du gain électronique G de ce dernier :

$$n_e = \frac{W_h}{h\nu_h} \frac{s}{S} R \rho G \quad (6.4)$$

Ce nombre d'électrons, délivré pour une impulsion laser, se mesure aisément connaissant les caractéristiques électriques du signal (durée τ , tension U sous une résistance de charge R_c) par la relation :

$$n_e = \frac{U \tau}{R_c q} \quad (6.5)$$

où q est la charge de l'électron.

A l'aide de (6.4) et (6.5), on peut calculer la puissance harmonique générée durant une impulsion laser :

$$P_h = \frac{U \tau S}{R_c} \frac{1}{s R \rho G} \frac{h\nu_h}{q} \quad (6.6)$$

VI 1.2 Discussion

Les grandeurs U , τ , R_c , s , G et ν_h sont mesurées. S peut raisonnablement être estimé en l'assimilant à la surface du faisceau laser au niveau de la fente d'entrée du spectromètre. Par contre, l'efficacité quantique ρ du photomultiplicateur et le pouvoir de réflexion R du réseau sont difficiles à mesurer compte tenu du matériel disponible. De ce fait, nous sommes obligés de nous fier aux indications fournies par les constructeurs, qui sont $R \approx 10\%$, $\rho \approx 12\%$.

Etant donné la pollution causée par les huiles d'évaporation du système de pompage du spectromètre, les quantités R et ρ peuvent en fait être beaucoup plus faibles que les valeurs optimales correspondant à un matériel propre. Cependant, la puissance harmonique mesurée étant une fonction décroissante de R et ρ , on ne pourra que la sous estimer en ne tenant pas compte de la dégradation par l'huile de la détectivité du système de mesure.

VI 2 RENDEMENT DE CONVERSION ET FACTEUR DE MERITE

Connaissant l'énergie harmonique délivrée durant l'impulsion laser, et donc la puissance harmonique P_h générée pour une puissance de pompe P_f , on détermine le rendement de conversion :

$$\eta = \frac{P_h}{P_f} \quad (6.7)$$

Puisque le phénomène est non-linéaire, on caractérisera plus volontiers la conversion par une quantité qui rend compte de la qualité de l'expérience indépendamment de la puissance du laser. On est ainsi appelé à définir un facteur de mérite qui s'exprime par :

$$F = \frac{P_h}{P_f^3} \quad (6.8)$$

Celui-ci reflète essentiellement l'amplitude de la réponse non-linéaire du milieu et les conditions d'adaptation de phase de l'expérience en l'absence de phénomènes de saturation.

VI 3 ATLAS DE SPECTRES DE TRIPLEMENT DE FREQUENCE

Nous présentons, à la fin de ce paragraphe, une série de spectres de triplement de fréquence enregistrés à des longueurs d'onde harmoniques comprises entre 93,16 nm et 95,66 nm (ceci correspond à une plage d'accordabilité de la fréquence harmonique de 2804 cm^{-1}). Dans ces expériences, le rayonnement harmonique est créé en focalisant le faisceau laser dans une demi-cellule. Celle-ci contient de l'azote maintenu sous une pression allant de 5 Torr à 30 Torr selon les enregistrements considérés.

Puisqu'il n'existe pas de matériaux transparents aux longueurs d'onde situées en dessous de 106 nm (domaine de

coupure du LiF), la seule méthode permettant d'extraire une onde UVX générée au sein d'une cellule consiste à réaliser un pompage différentiel entre la cellule et la chambre d'expérience maintenue sous une pression de l'ordre de 10^{-6} Torr; une demi-cellule est donc une cellule dont la fenêtre de sortie est remplacée par un diaphragme de faible diamètre derrière lequel un système de pompage permet de réaliser un vide relativement bas.

La cellule ou la demi-cellule constitue une source de gaz très utilisée dans les expériences de conversion de fréquences réalisées dans les gaz rares :

- **Xe** : /Compton et Miller 1985, Miller et al 1985, Ganeev et al 1986, Garrett et al 1986, Blazewicz et al 1986, Salamero et al 1987, Munakata et al 1987, Mertens et Bogen 1987/;
- **Kr** : /Pummer et al 1982, Bonin et McIlrath 1985, Proctor et al 1987, Mertens et Bogen 1987, Hilber et al 1987/;
- **Ar** : /Reintjes 1980, Pummer et al 1982, Hilbig et Wallenstein 1983, Wildenauer 1987/;
- **Ne** : /Hilbig et al 1984, Lago et al 1988/;
- **He** : /Reintjes et She 1978/;

et dans les molécules :

- **N₂** : /Hellner et Lukasik 1984/;
- **CO** : /Glownia et Sander 1982, Pummer et al 1982, Vallée et Lukazik 1982, Vallée et al 1982, Vallée et al 1985, Aguilon et al 1987/;
- **NO** : /Innes et al 1976, Wallace et Innes 1980, Tsukiyama et al 1990²/;

- I₂ : /Tai et Wu 1986, Tai et al 1988, Chu et al 1989/;
- H₂ : /Pummer et al 1982, Srinivasan et al 1983/.

Pour chacun des spectres représentés en fin de chapitre, nous avons noté la puissance harmonique délivrée, le rendement de conversion η et le facteur de mérite F correspondant. Rappelons que ces quantités représentent des valeurs minimales. En outre, ces expériences n'ont pas été réalisées dans le but d'obtenir des taux de conversion élevés, ce qui nécessiterait pour chaque longueur d'onde, d'une part, une puissance laser optimale, et d'autre part, un ajustement des paramètres de pression, de distance focale de la lentille et de position du foyer dans la demi-cellule! On ne s'étonnera donc pas de trouver une différence considérable entre les rendements obtenus ici dans des conditions moyennes (et de plus probablement sous-estimés) et les rendements correctement évalués dans des conditions optimisées.

Etant donné l'importance du domaine spectral parcouru par l'onde harmonique, on peut relever sur les enregistrements trois catégories de spectres :

- des spectres de conversion de fréquence effectués sans amplification par résonance; l'énergie cumulée de un, deux ou trois photons du laser ne correspond à aucun état stationnaire de la molécule d'azote (chapitre II);
- un spectre de conversion par résonance à deux photons sur la transition $a^1\Pi_g - X^1\Sigma_g^+$ (94,33 nm - 94,5 nm);

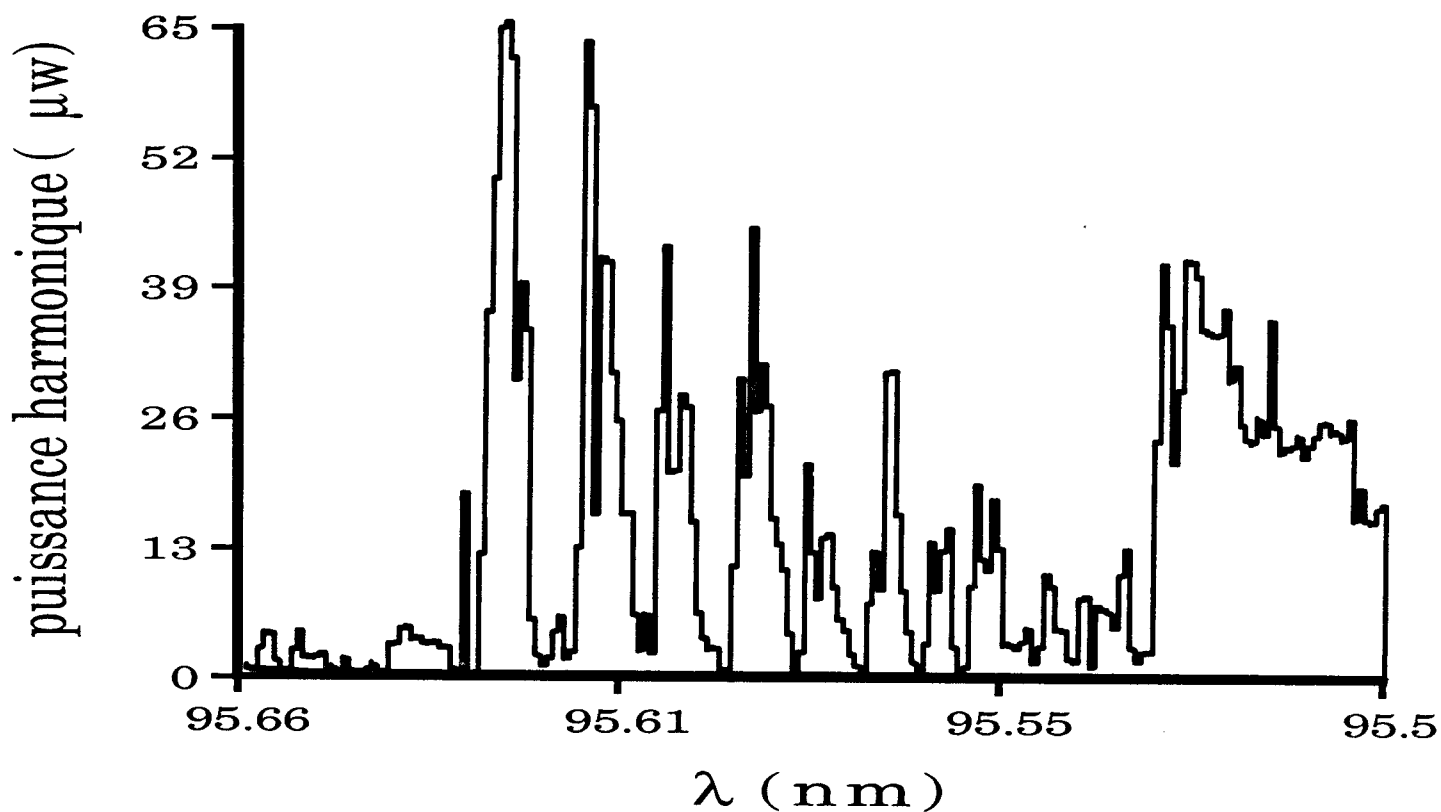
- des spectres de conversion par résonance à trois photons sur les états Rydberg et non-Rydberg de l'azote (pas moins de neuf transitions résonantes).

Tous ces enregistrements présentent cependant l'inconvénient majeur d'être très difficiles, voire impossibles, à interpréter de manière quantitative.

Ceci est dû au fait que la demi-cellule est une source gazeuse où le milieu non-linéaire est mal défini. En effet, son utilisation nécessite de focaliser le faisceau laser très près du trou de sortie de la cellule de manière à minimiser autant que possible l'auto-absorption du rayonnement UVX. De ce fait, la conversion de fréquence s'effectue dans une zone où, à cause du gradient de pression qui existe au voisinage du trou de sortie, on ne connaît pas la répartition de densité et de température du milieu non-linéaire. En conséquence on ne peut, sans une connaissance précise de la géométrie du milieu non-linéaire, calculer les conditions d'adaptation de phase de l'expérience. Bien sûr, il est toujours possible de focaliser le faisceau laser largement en amont du trou de sortie tout en diminuant le taux d'auto-absorption de l'onde UVX par un abaissement de la pression dans la demi-cellule. Cependant, une telle manoeuvre conduit généralement à diminuer le taux de conversion de l'onde harmonique étant donné que l'amplitude de celle-ci dépend du carré de la densité du gaz.

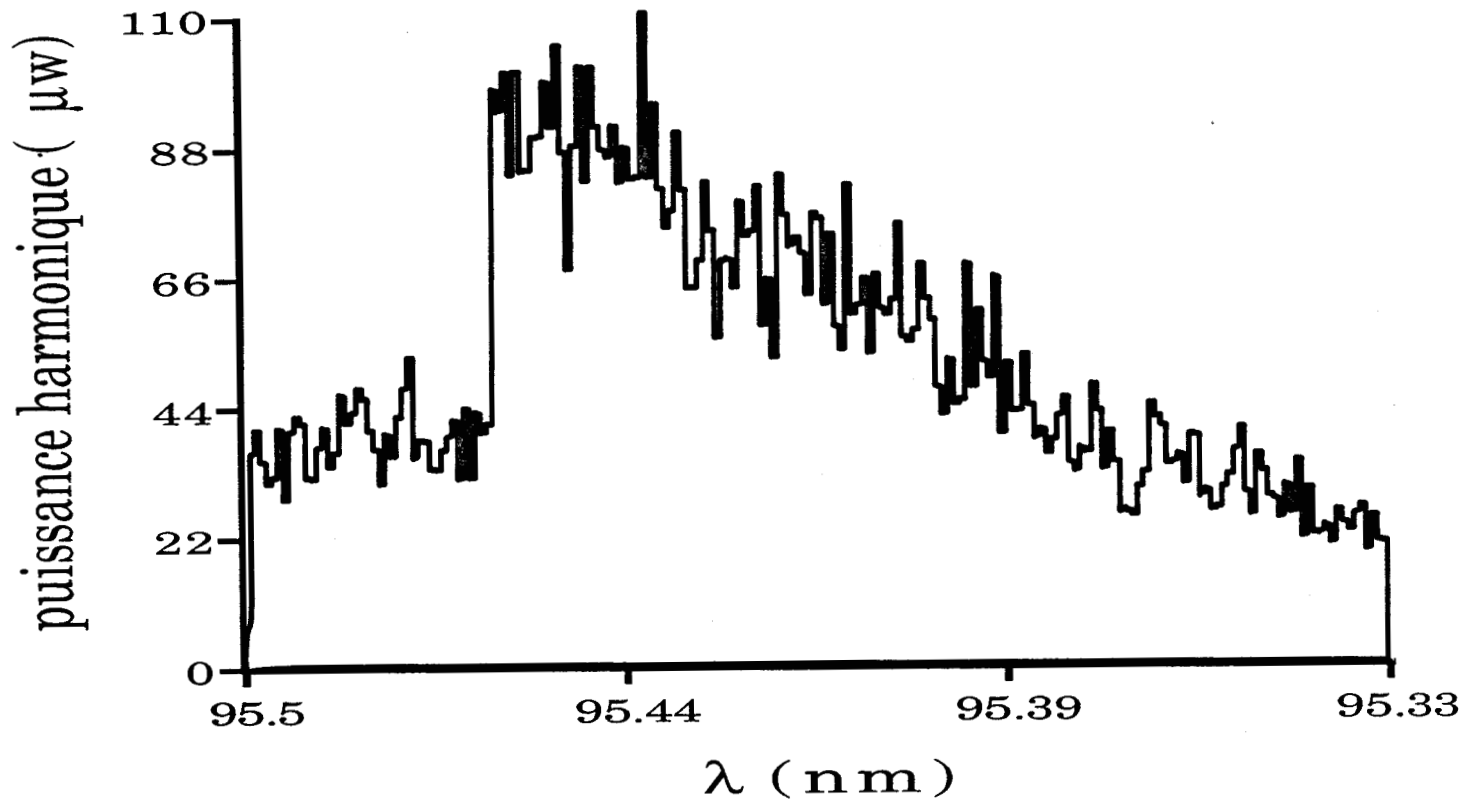
A la lumière de ces considérations, une source idéale serait un milieu gazeux, à la fois dense et optiquement fin, de géométrie bien définie; le jet supersonique possède ces propriétés.

$$\eta = 3,3 \cdot 10^{-10}$$
$$F = 7,5 \cdot 10^{-21} \text{ W}^{-2}$$



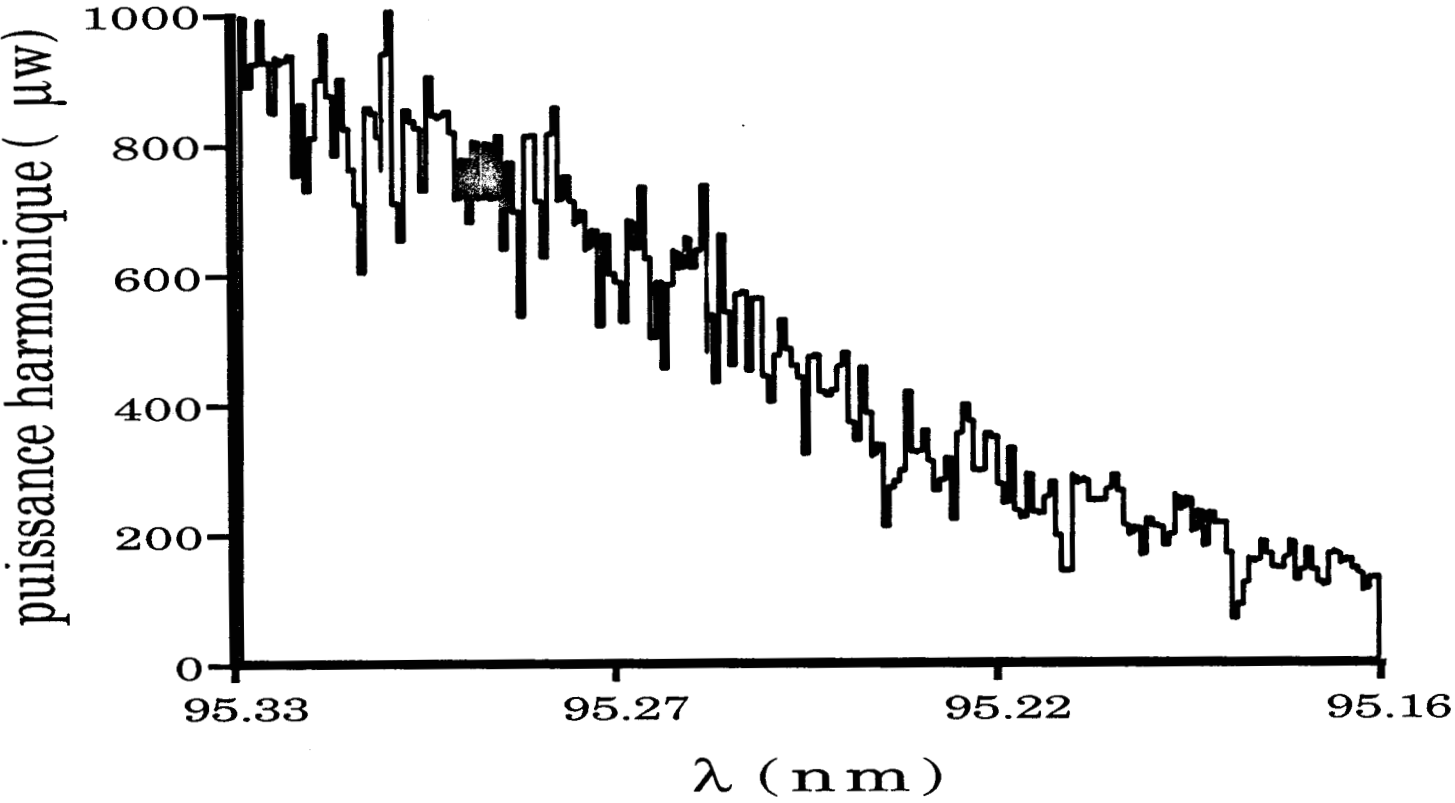
**résonance à 3 photons
sur la transition**
 $b^1\Pi_u (v'=5) - X^1\Sigma_g^+ (v''=0)$

$\eta = 4,4 \cdot 10^{-10}$
 $F = 7 \cdot 10^{-21} \text{ W}^{-2}$



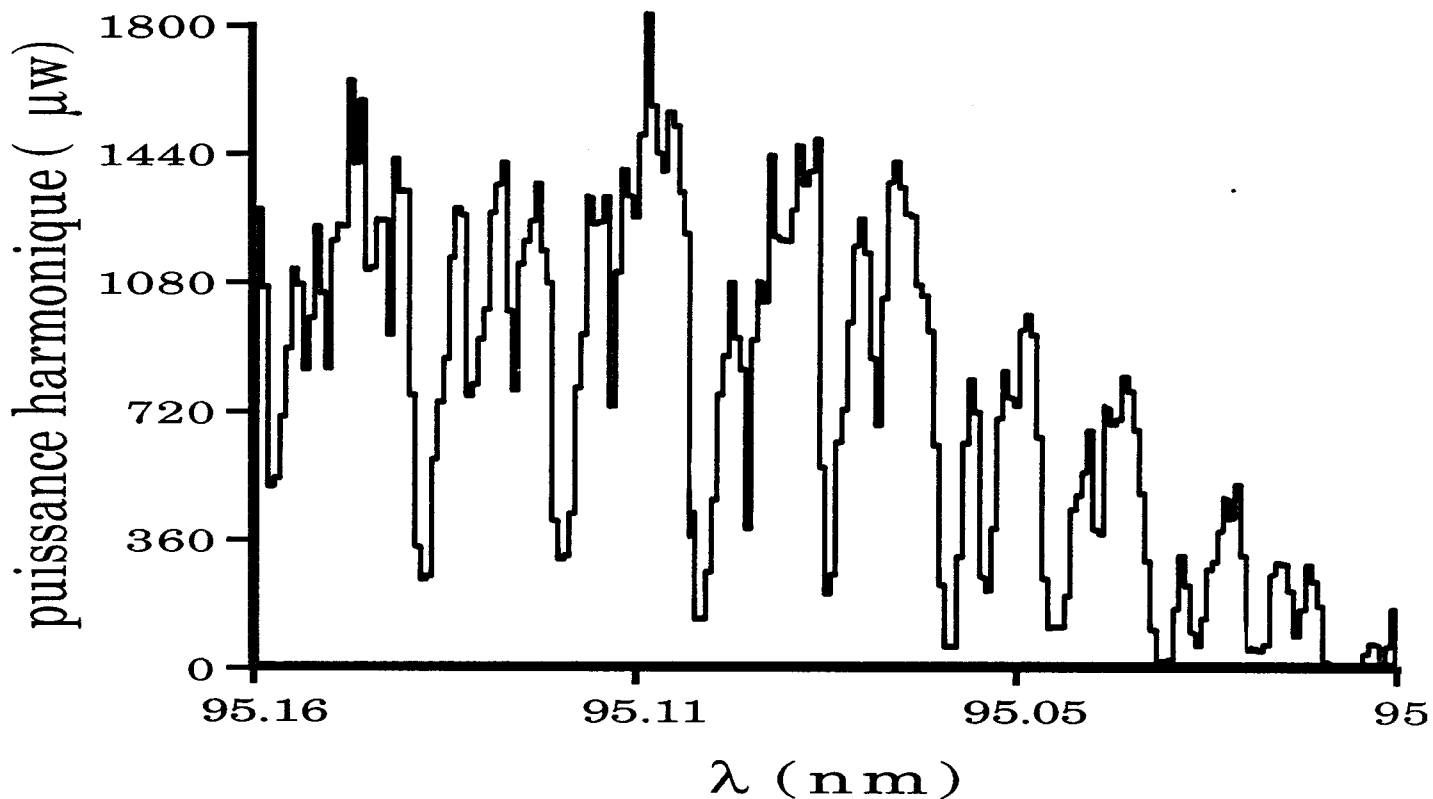
hors r sonance

$\eta = 2,5 \cdot 10^{-9}$
 $F = 1,6 \cdot 10^{-20} \text{ W}^{-2}$



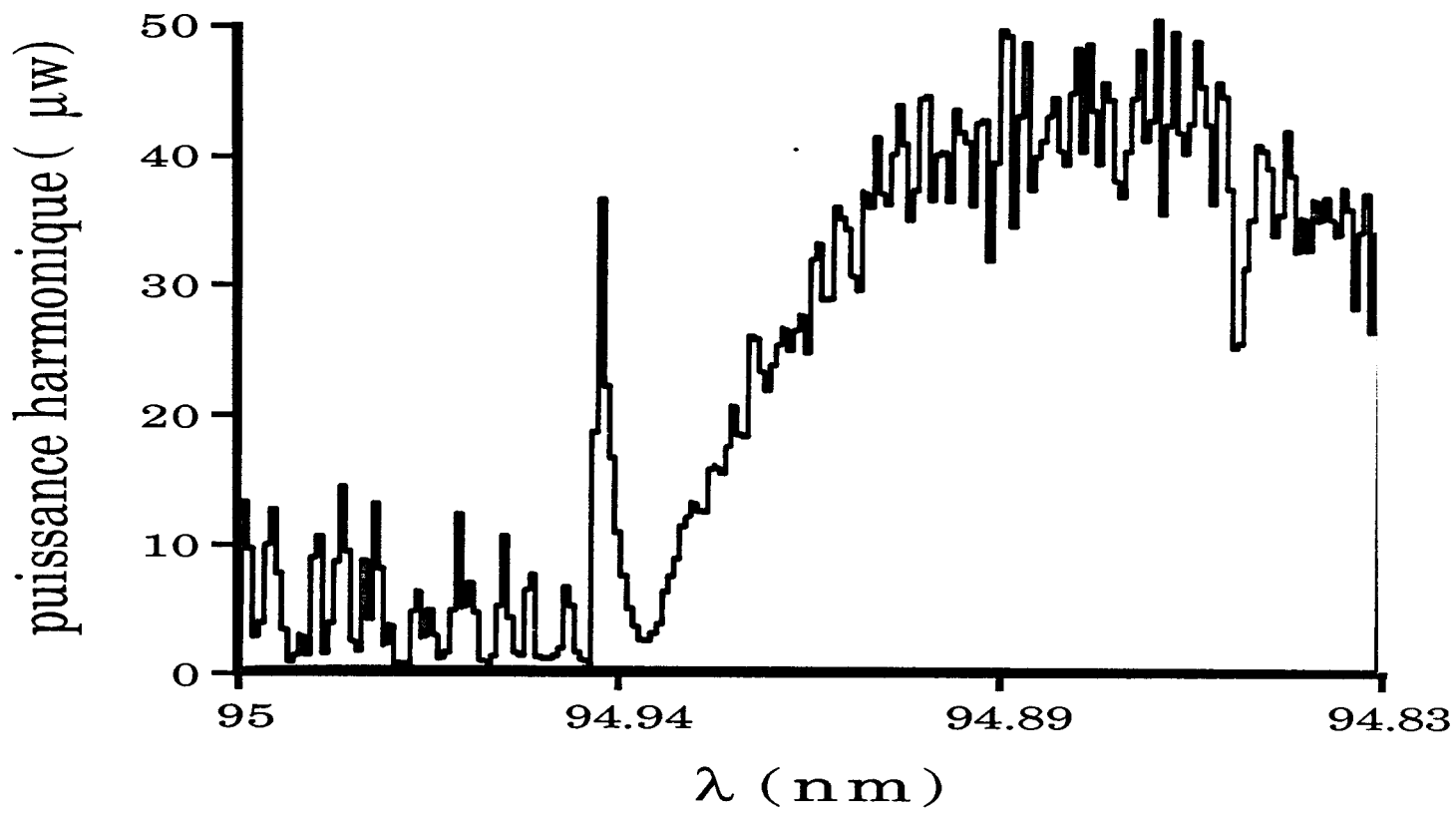
hors résonance

$\eta = 4 \cdot 10^{-9}$
 $F = 2 \cdot 10^{-20} \text{ W}^{-2}$



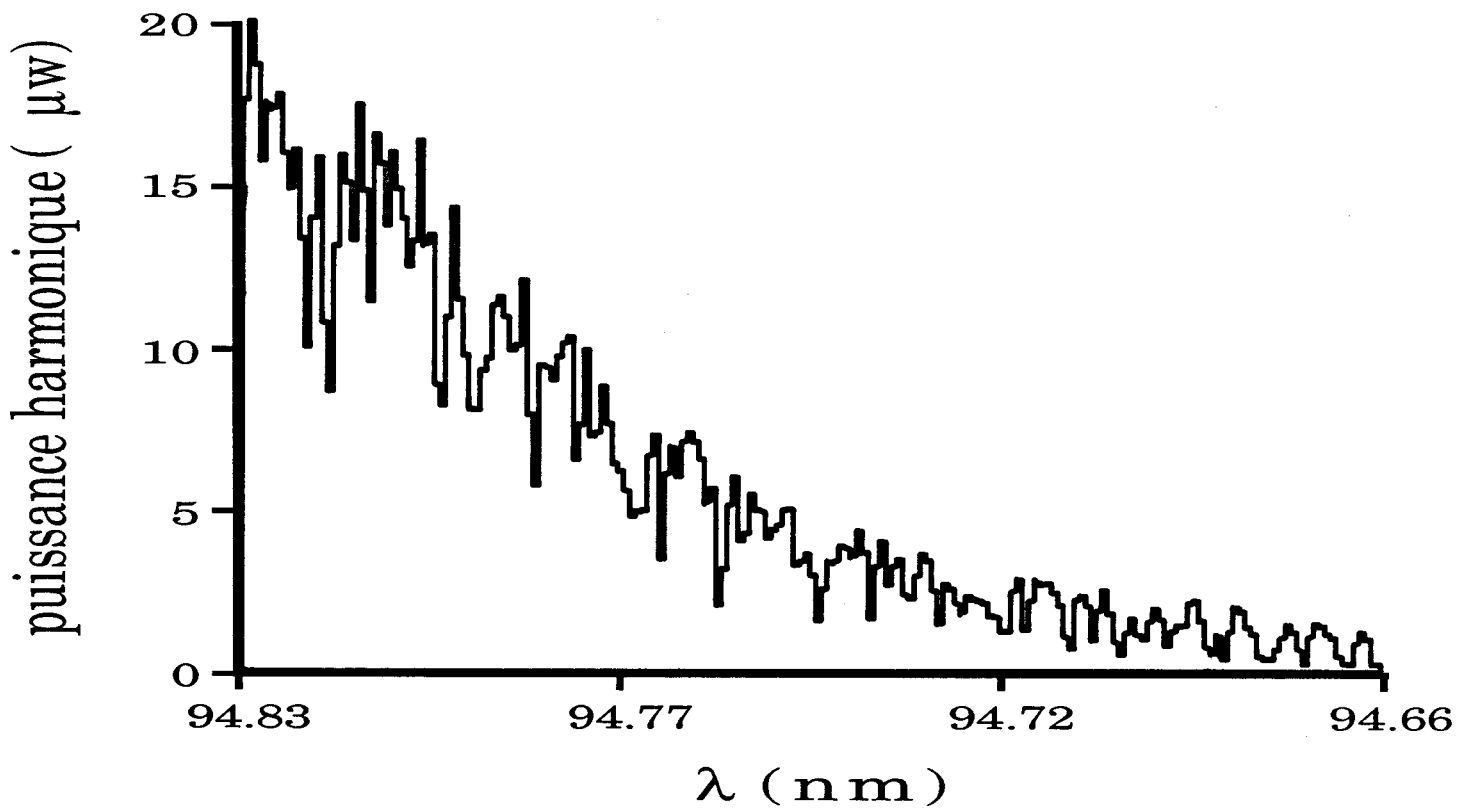
**résonance à 3 photons
sur la transition
 $b^1\Pi_u (v'=6) - X^1\Sigma_g^+ (v''=0)$**

$\eta = 7 \cdot 10^{-11}$
 $F = 1,4 \cdot 10^{-22} \text{ W}^{-2}$



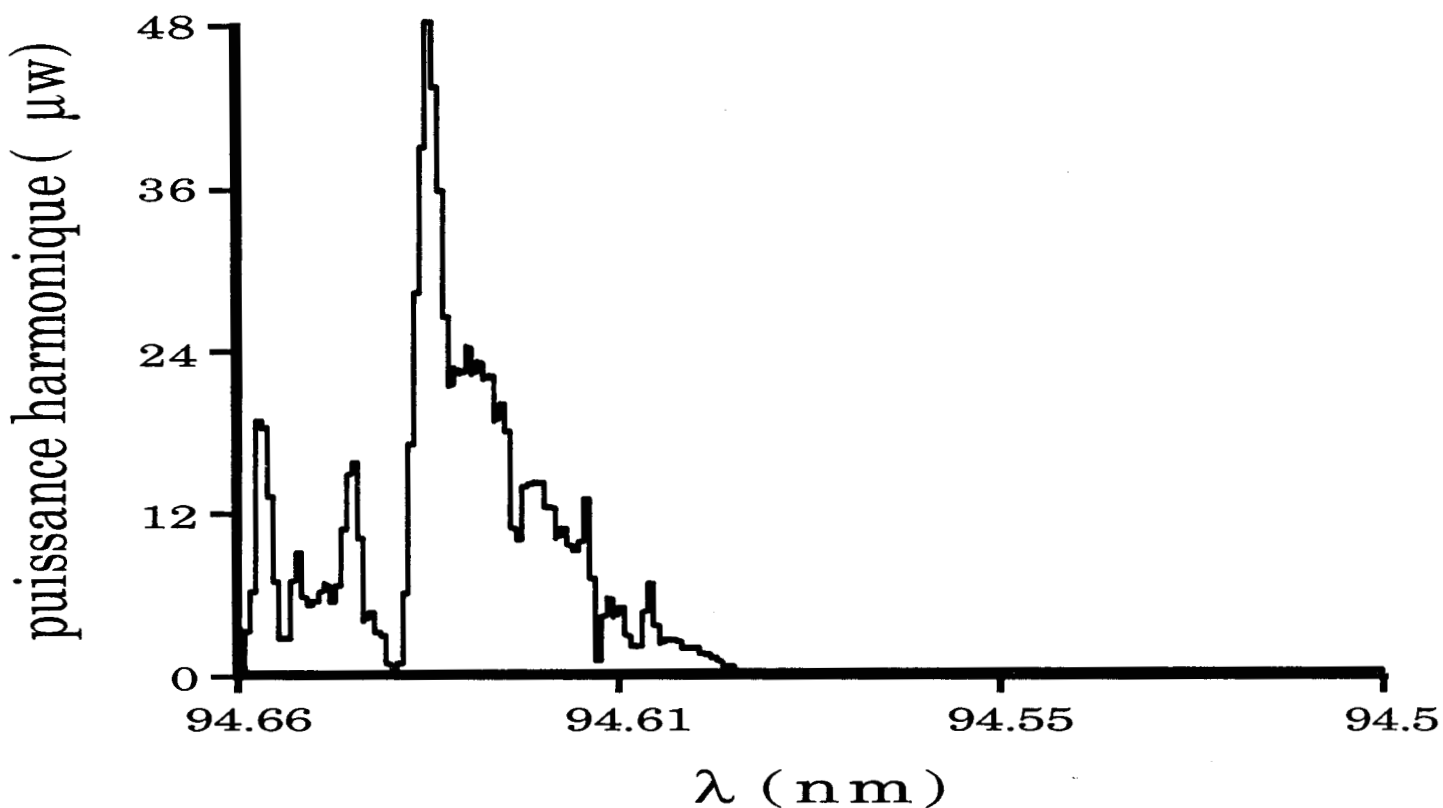
**résonance à 3 photons
sur la transition
 $b^1\Pi_u (v'=6) - X^1\Sigma_g^+ (v''=0)$**

$\eta = 2,9 \cdot 10^{-11}$
 $F = 5,6 \cdot 10^{-23} \text{ W}^{-2}$



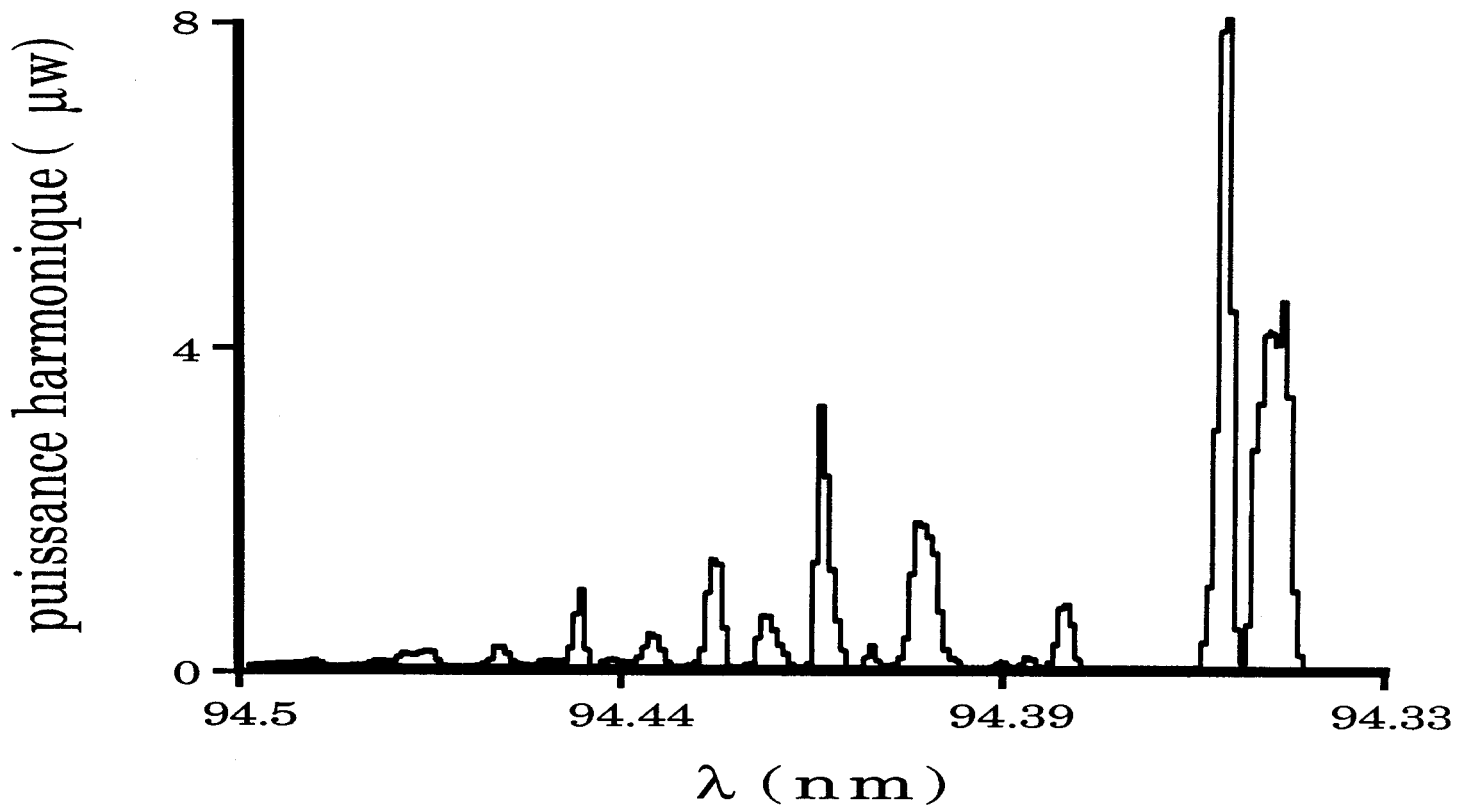
hors résonance

$\eta = 6,2 \cdot 10^{-11}$
 $F = 1,1 \cdot 10^{-22} \text{ W}^{-2}$

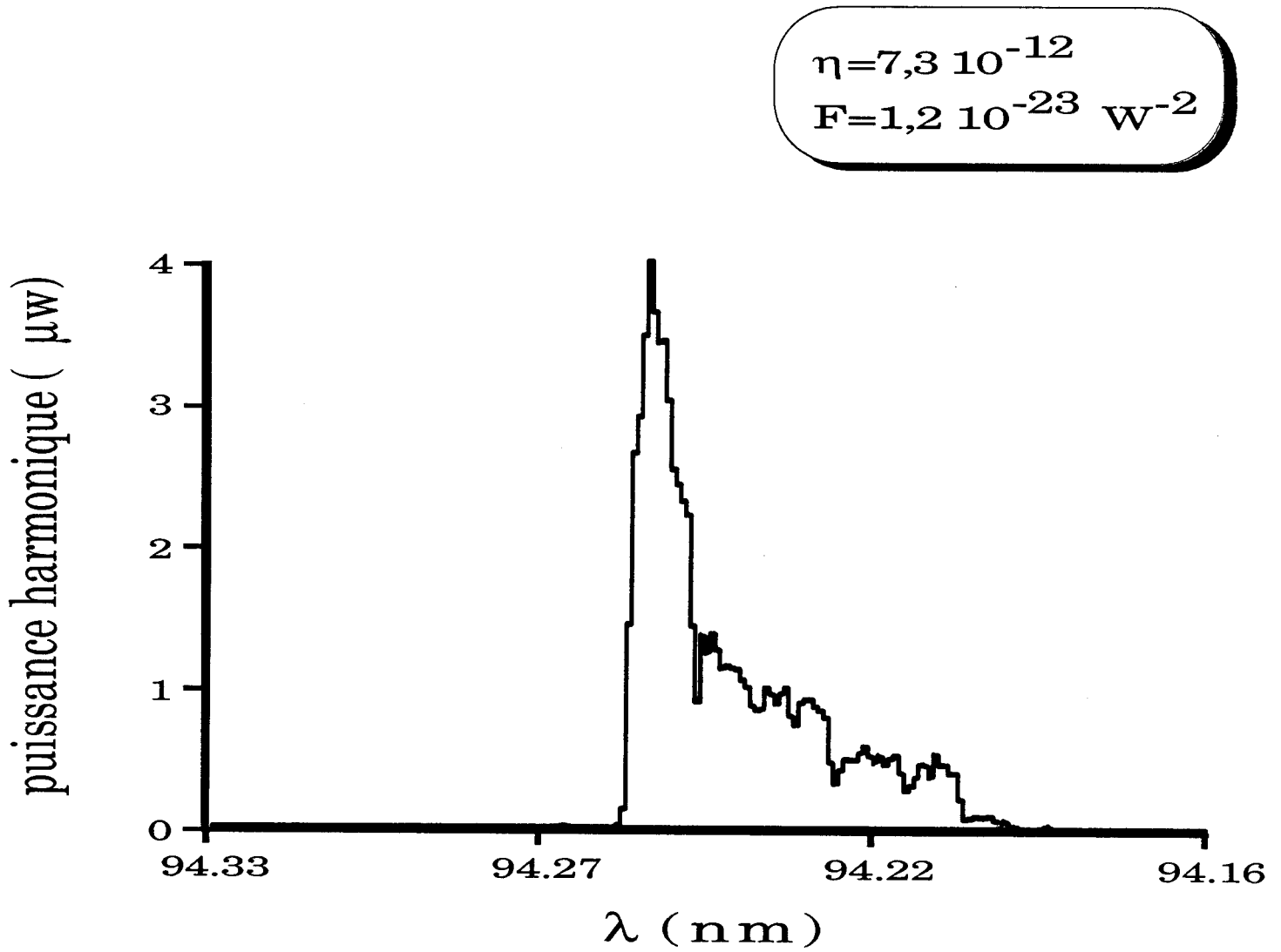


**résonance à 3 photons
sur la transition**
 $\text{o } ^1\Pi_u (v'=0) - \text{X } ^1\Sigma_g^+ (v''=0)$

$\eta=1 \cdot 10^{-11}$
 $F=1,8 \cdot 10^{-23} \text{ W}^{-2}$

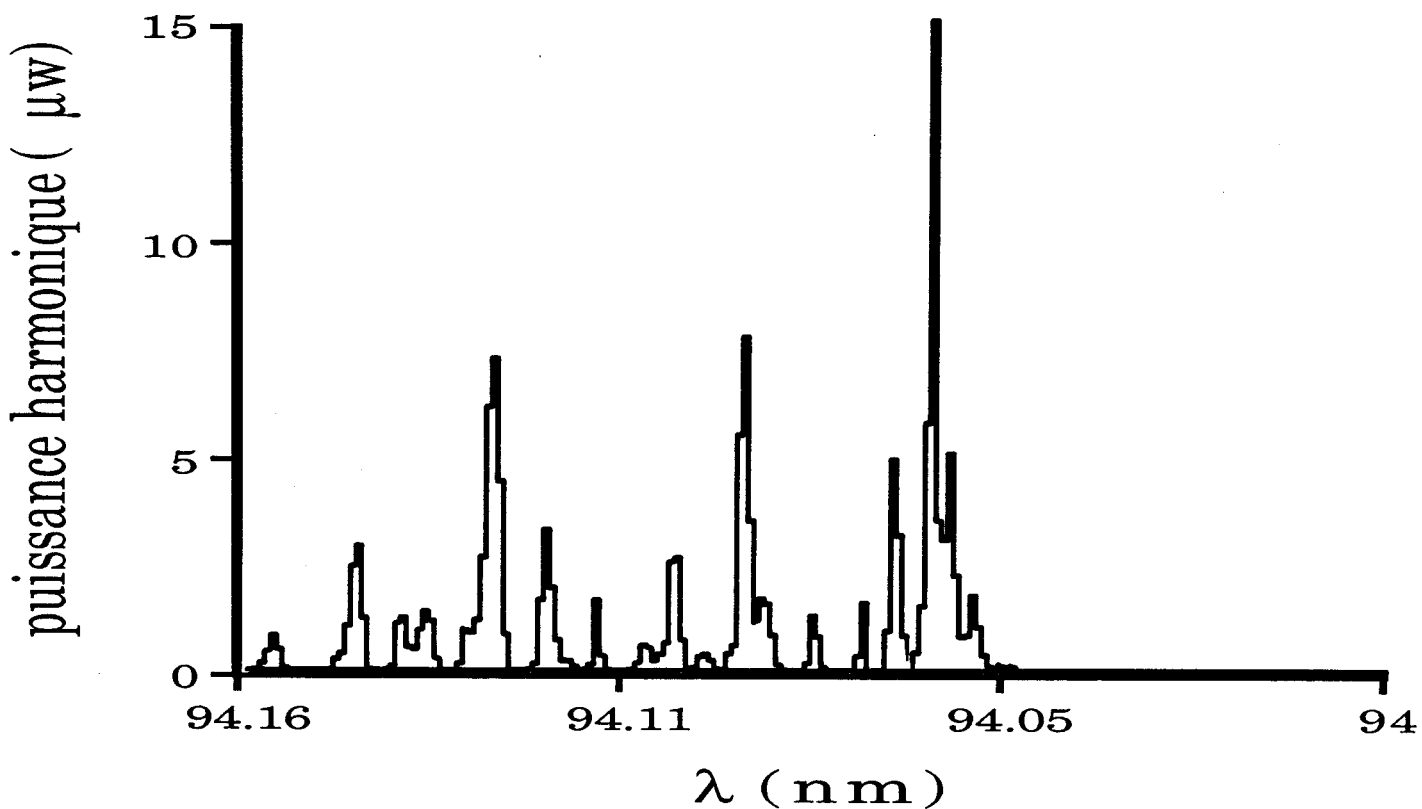


**résonance à 2 photons
sur la transition
 $a \ ^1\Pi_g (v'=1) - X \ ^1\Sigma_g^+ (v''=0)$**



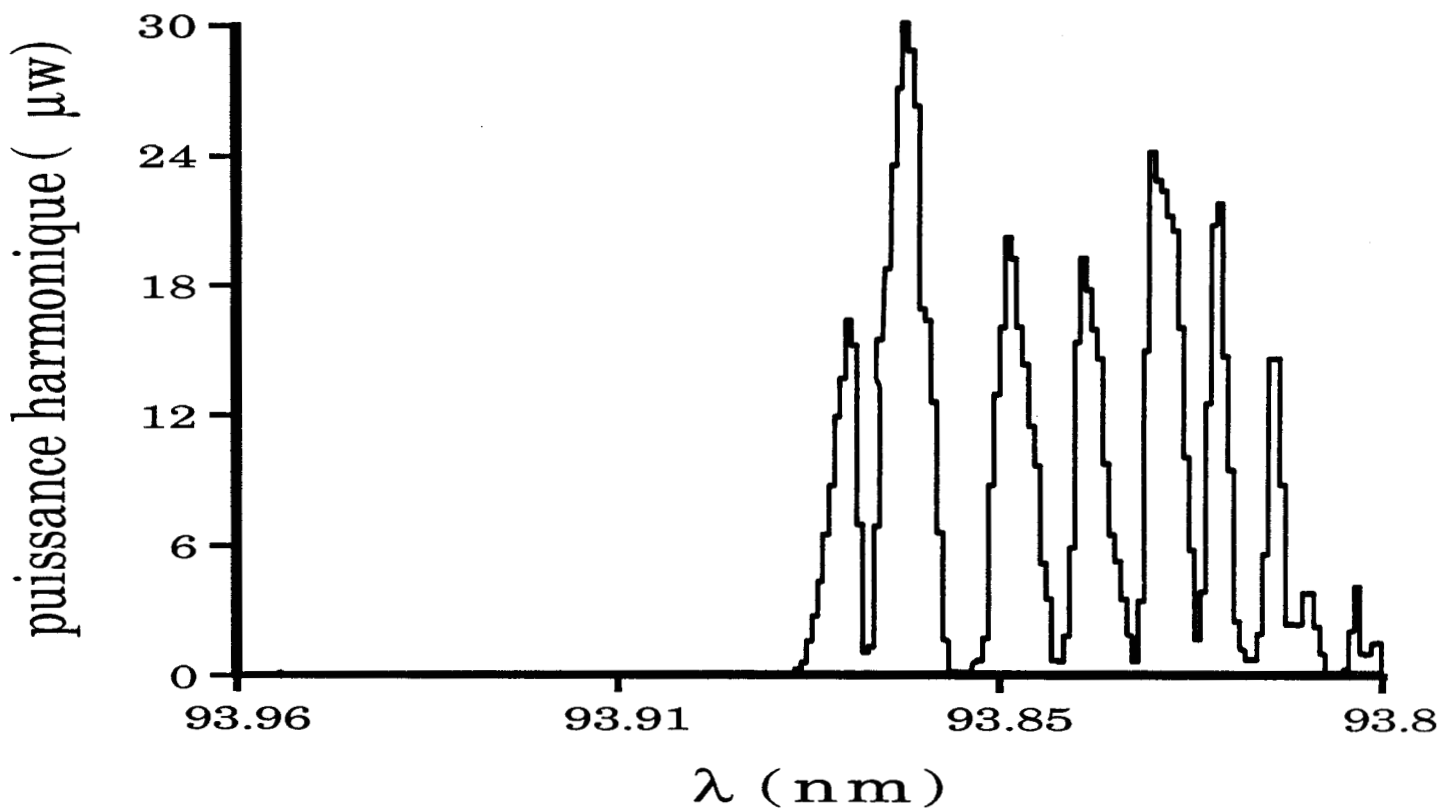
**résonance à 3 photons
sur la transition**
 $b^1\Pi_u(v'=7) - X^1\Sigma_g^+(v''=0)$

$\eta = 2 \cdot 10^{-11}$
 $F = 3,6 \cdot 10^{-23} \text{ W}^{-2}$



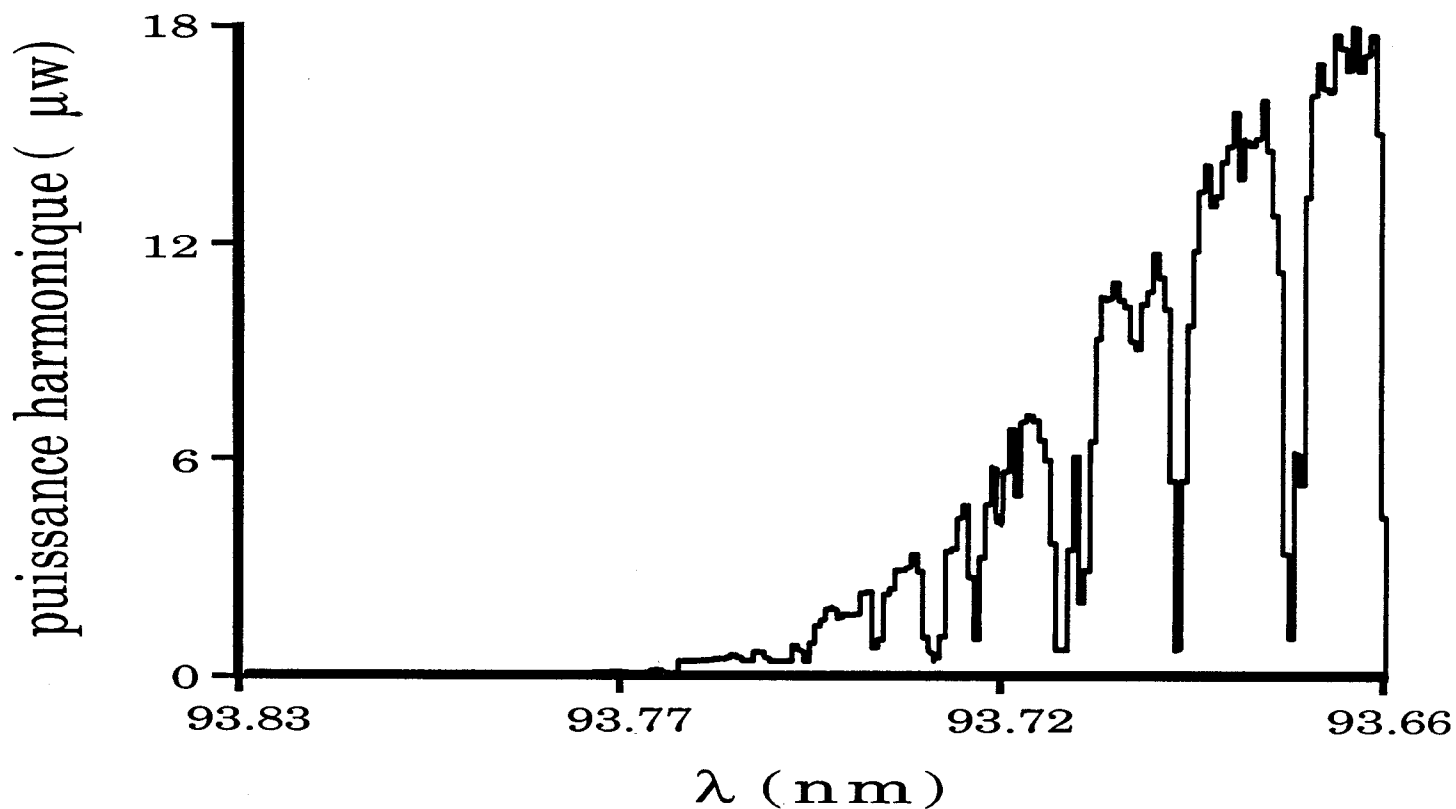
**résonance à 3 photons
sur la transition**
 $4p\sigma_u (v'=1) - X^1\Sigma_g^+ (v''=0)$

$\eta = 4 \cdot 10^{-11}$
 $F = 7,1 \cdot 10^{-23} \text{ W}^{-2}$



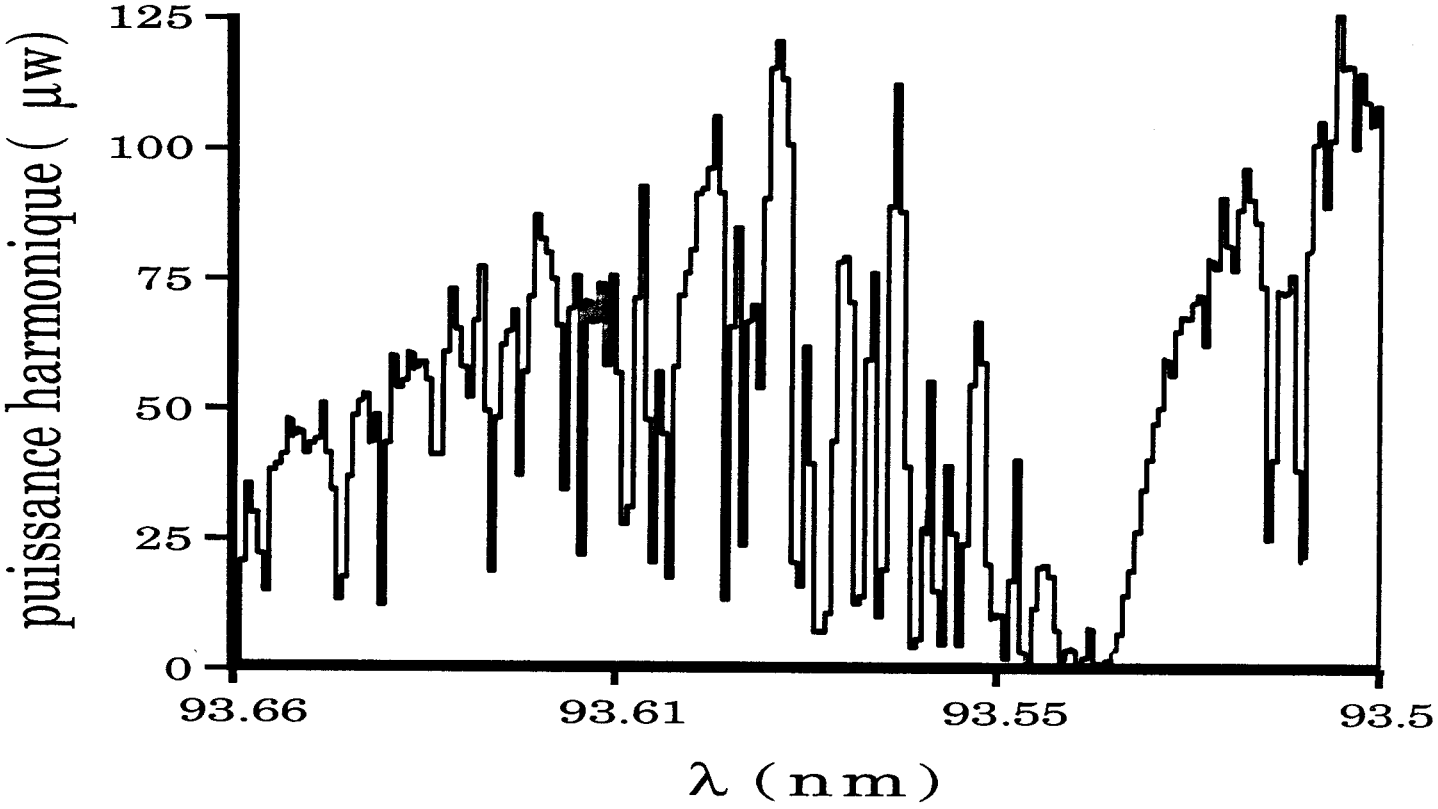
**résonance à 3 photons
sur la transition**
 $3p\Pi_u (v'=1) - X^1\Sigma_g^+ (v''=0)$

$$\eta = 5,3 \cdot 10^{-11}$$
$$F = 4,2 \cdot 10^{-22} \text{ W}^{-2}$$



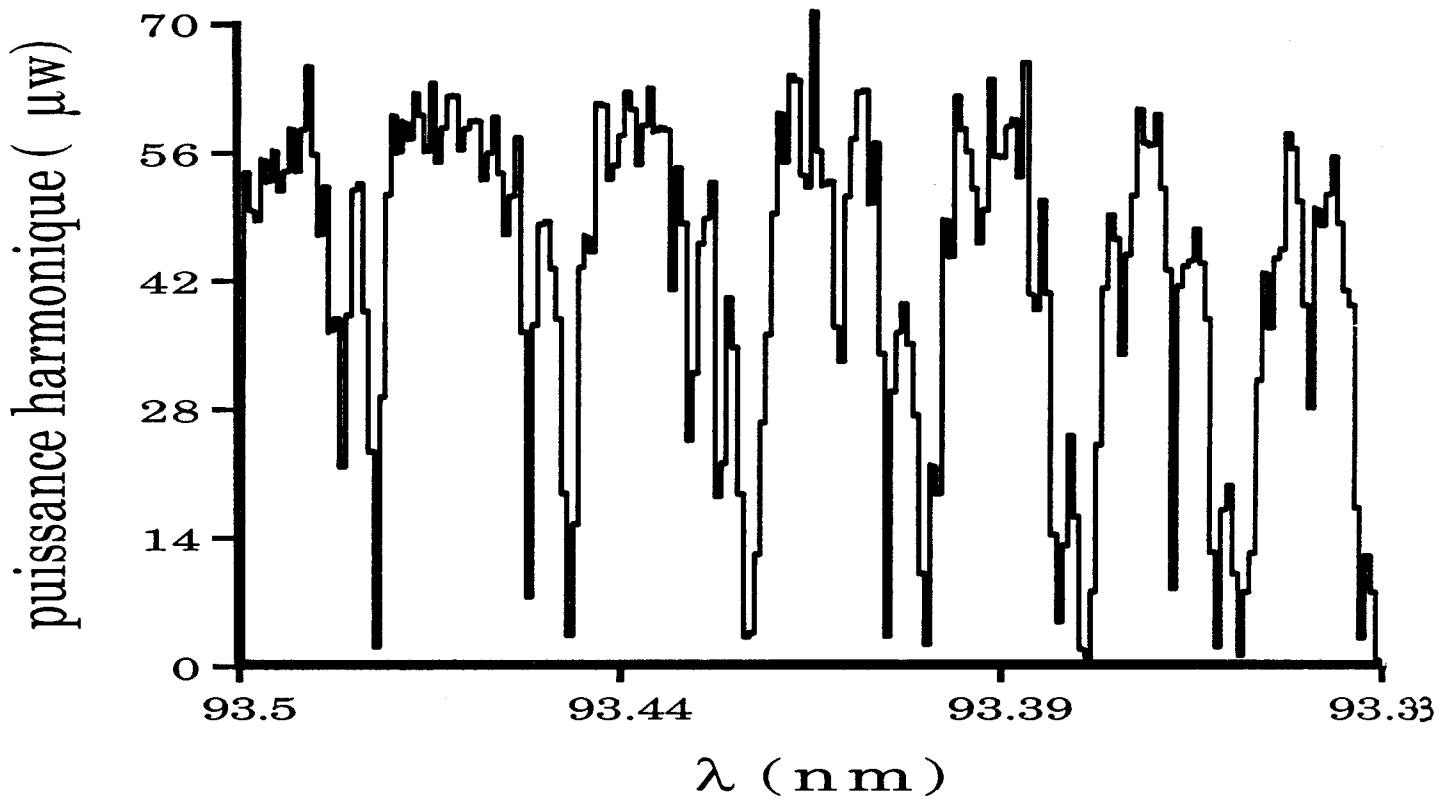
**résonance à 3 photons
sur la transition**
 $b'1\Sigma_u^+ (v'=4) - X1\Sigma_g^+ (v''=0)$

$\eta=3,5 \cdot 10^{-10}$
 $F=2,9 \cdot 10^{-21} \text{ W}^{-2}$



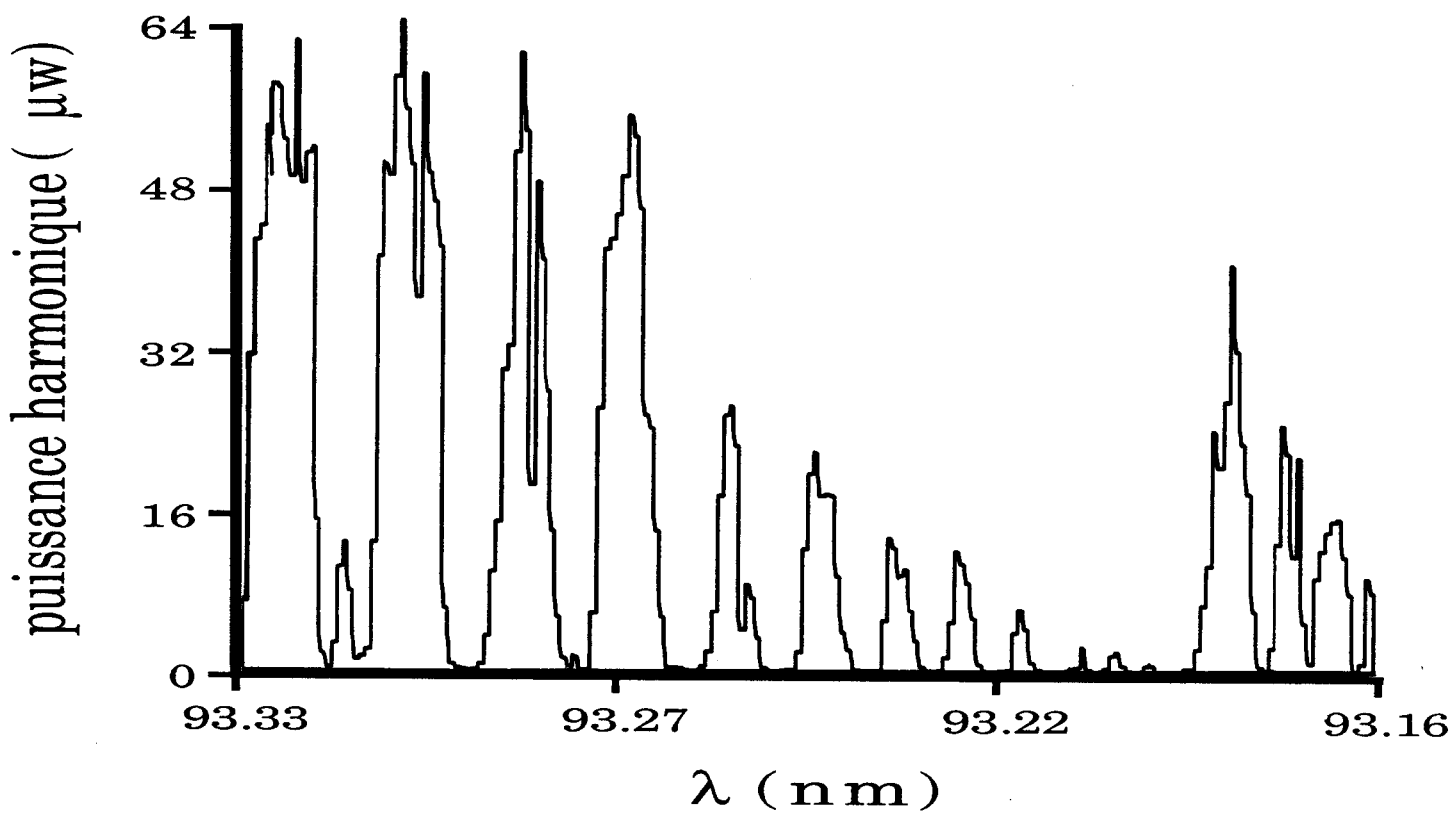
**résonance à 3 photons
sur la transition
 $b^1\Pi_u (v'=8) - X^1\Sigma_g^+ (v''=0)$**

$$\eta = 2,7 \cdot 10^{-10}$$
$$F = 4,4 \cdot 10^{-21} \text{ W}^{-2}$$



**résonance à 3 photons
sur la transition**
 $b' 1\Sigma_u^+ (v'=5) - X 1\Sigma_g^+ (v''=0)$

$\eta = 2,5 \cdot 10^{-10}$
 $F = 4 \cdot 10^{-21} \text{ W}^{-2}$



**résonance à 3 photons
sur la transition**
 $b'1\Sigma_u^+ (v'=5) - X1\Sigma_g^+ (v''=0)$

VI 4 LES QUALITES ET LES AVANTAGES DU JET SUPERSONIQUE
DANS LES EXPERIENCES DE CONVERSION DE FREQUENCES

Les avantages liés à l'utilisation, comme milieu non-linéaire, d'un jet supersonique plutôt que d'une simple demi-cellule, ont été largement discutés par Kung /1983/, Rettner et al /1984/, Bethune et Rettner /1987/, Page et al /1987/, Lago et al /1987/, Aguillon /1989¹/.

A titre de référence, on peut citer les conversions de fréquences réalisées à l'aide de jets supersoniques de gaz rares :

- **Xe** : /Kung 1983, Rettner et al 1984, McPherson et al 1987, Page et al 1987, Bethune et Rettner 1987, L'Huillier et al 1988, Miyazaki et al 1989, Lompré et al 1990;
- **Kr** : /McPherson et al 1987, Page et al 1987, Bethune et Rettner 1987, Miyazaki et al 1989/;
- **Ar** : /Marinero et al 1983, McPherson et al 1987, Page et al 1987, Rosman et al 1988/;
- **Ne** : /Rosman et al 1988/;
- **He** : /Bokor et al 1983/;

et de jets supersoniques de gaz diatomiques :

- **N₂** : /Page et al 1987, Aguillon 1989¹, Campargue et al 1989, Faucher et Campargue 1990, Faucher et al 1991, Faucher et al 1991/;
- **CO** : /Rettner et al 1984, Page et al 1987, Aguillon et al 1987, Merkt et Softley 1990¹, Merkt et Softley 1990², Tsukiyama et al 1990¹/.

Les quatre points forts du jet supersonique sont :

- **la forte densité du milieu gazeux :**

dans notre cas, la densité sur l'axe du jet est de l'ordre de $5 \cdot 10^{25}$ molécules/m³ au voisinage de la tuyère pour une pression de 4,2 bars;

- **une géométrie du milieu bien définie :**

dans nos conditions expérimentales, la largeur du jet varie selon X/D entre 0,3 mm et 30 mm pour une longueur du jet de 45 mm (figure III.1);

- **la bonne connaissance de l'état interne du gaz :**

la détente isentropique, dont les limites seront discutées au chapitre suivant, permet de définir les caractéristiques du jet (températures et densités) avec une bonne approximation;

- **la faible épaisseur optique du milieu :**

dans la grande majorité des cas, les expériences de conversion sont menées en géométrie perpendiculaire, c'est-à-dire en focalisant le faisceau laser sur l'axe du jet perpendiculairement à celui-ci.

On présentera donc, par la suite, des expériences de triplement de fréquence en jet supersonique obtenues avec résonance à deux ou trois photons, ou sans résonance.

Parmi ces trois types de conversion, deux (sans résonance et avec résonance à deux photons) sont assez simples à interpréter; ceux-ci permettront de réaliser des diagnostics sur le jet lui-même et feront l'objet du chapitre VII.

Les phénomènes d'auto-absorption rendent l'interprétation quantitative de la résonance à trois photons nettement plus difficile à réaliser et celle-ci a d'ailleurs été bien souvent négligée dans la littérature; nous verrons au chapitre VIII que l'utilisation du jet supersonique en permet une interprétation assez précise.

CHAPITRE VII

Diagnostic sur la détente du jet libre
supersonique

VII 1 MESURE DE LA DENSITE D'ETAT

VII 1.1 Choix et nature de la transition résonnante

VII 1.2 Spectre de resonance à deux photons

VII 1.3 Mesure de la densité d'état du niveau
rotationnel $J=0$

VII 1.3.1 Facteur d'adaptation de phase

VII 1.3.2 Résultats

VII 2 MESURE DE LA DENSITE TOTALE

VII 3 DISTRIBUTION ROTATIONNELLE

VII 3.1 Principe de la mesure

VII 3.2 Dépendance rotationnelle de la susceptibilité
non-linéaire

VII 3.3 Facteur d'adaptation de phase

VII 4 RESULTATS ET DISCUSSION

VII 4.1 Ecart à l'équilibre - résultats antérieurs

VII 4.2 Modèle de la détente isentropique

VII 4.3 Distribution rotationnelle mesurée

VII 4.4 Densités mesurées

VII 5 CONCLUSION



CHAPITRE VII

Ce chapitre VII est consacré à l'utilisation de la technique de triplement de fréquence comme outil de diagnostic permettant de sonder les états internes de la molécule d'azote lors de la détente supersonique. Dans ce but, nous exploiterons les deux méthodes de conversion, résonnante et non-résonnante, afin d'obtenir des résultats quantitatifs sur l'évolution de la densité ainsi que sur la distribution de population des niveaux d'énergie de la molécule au cours de la détente. Ces résultats seront comparés à ceux qui sont obtenus à partir du modèle isentropique souvent utilisé comme modèle de référence pour décrire la détente supersonique /Campargue et al 1984/.

VII 1 MESURE DE LA DENSITE D'ETAT*

VII 1.1 Choix et nature de la transition résonnante

Le choix de l'état résonnant à deux photons, dans le cas de la génération de troisième harmonique dans l'azote, est évident. La molécule étant homopolaire, les règles de sélection n'autorisent des transitions à deux photons

** Une fois pour toutes, nous définissons la densité d'état comme étant le nombre de molécules par unité de volume qui se trouvent dans un état d'énergie donnée. A ne pas confondre avec l'appellation réservée au nombre d'états par unité d'énergie.*

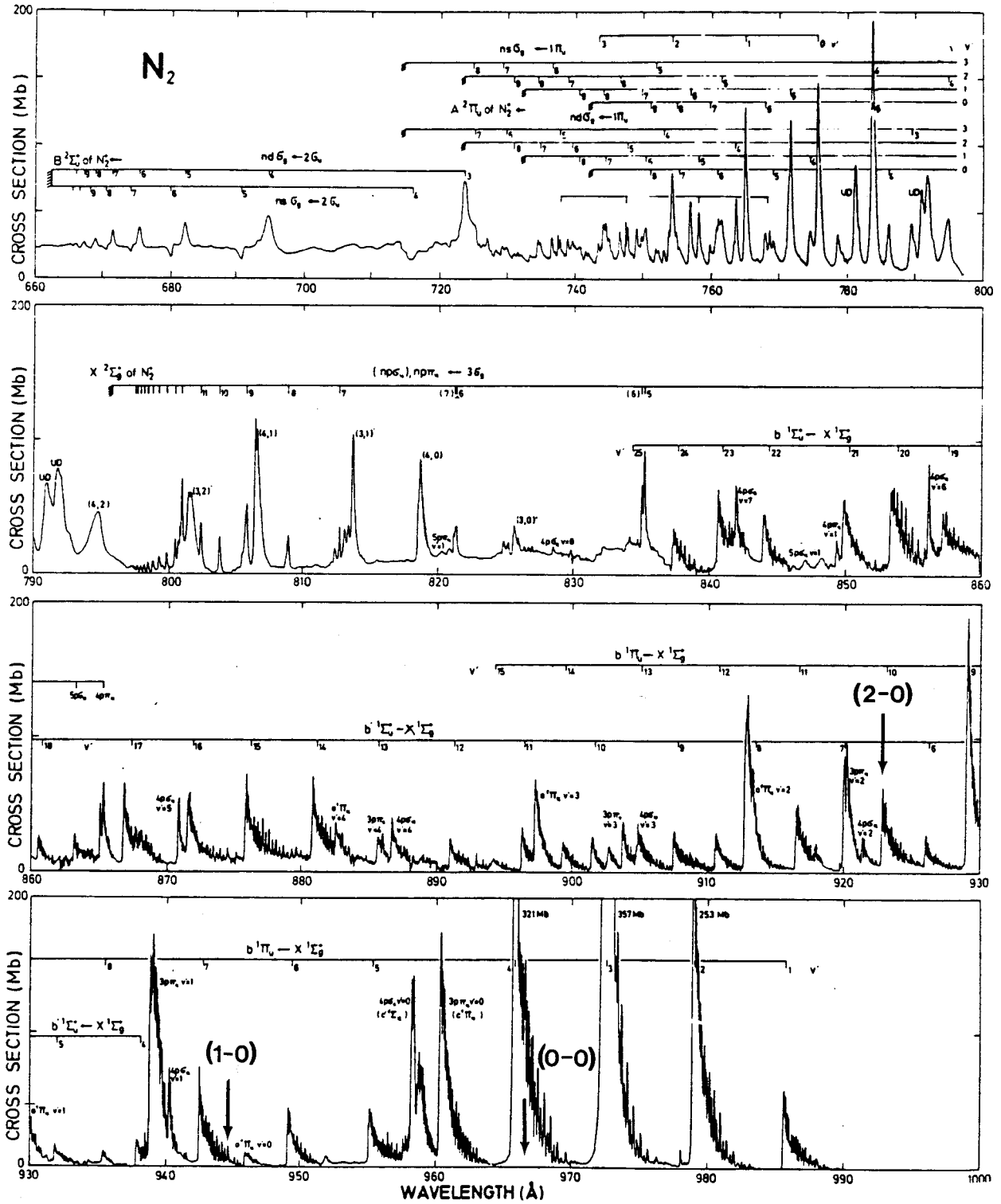


Figure VII.1

Spectre de la molécule d'azote dans le domaine 66 nm-99 nm (UVV-UVX). Cette figure est tirée de l'article de Görtler et al /1977/ où les sections efficaces d'absorption de N_2 sont déterminées à l'aide du rayonnement synchrotron DORIS (Hamburg). Les trois flèches indiquent la position des bandes de résonance à deux photons.

qu'entre états électroniques de même parité (parité au sens de la symétrie (g) ou de l'antisymétrie (u) de la fonction d'onde électronique par rapport à la permutation des noyaux); l'état fondamental de l'azote étant l'état $X^1\Sigma_g^+$, le premier état excité qui satisfasse cette condition est l'état électronique $a^1\Pi_g$.

Par contre, nous sommes libres du choix de la bande de vibration. La candidate la mieux adaptée à nos besoins s'est avérée être la bande (1-0). En effet, celle-ci possède une probabilité de transition importante (facteur Franck-Condon de 0,118) et surtout elle correspond à une onde harmonique générée loin des têtes de bandes d'absorption à trois photons (figure VII.1). Ceci a d'abord pour effet de limiter l'auto-absorption de l'onde harmonique. Par ailleurs, on évite ainsi les variations rapides du facteur d'adaptation de phase lors du balayage en fréquence du laser. En effet, toute évolution du laser conduisant à une excursion de la fréquence fondamentale ou harmonique à l'intérieur d'une bande d'absorption implique une variation correspondante de l'indice de réfraction du milieu; qui dit variation d'indice dit variation de phase des ondes se propageant dans le milieu et donc modification des conditions d'adaptation de phase entre l'onde fondamentale et l'onde harmonique (chapitre IV).

VII 1.2 Spectre de résonance à deux photons

On présente Figure VII.2 un spectre de triplement de fréquence par résonance à deux photons sur la transition $a^1\Pi_g - X^1\Sigma_g^+$ de l'azote. Cet enregistrement correspond à une configuration expérimentale pour laquelle le faisceau du

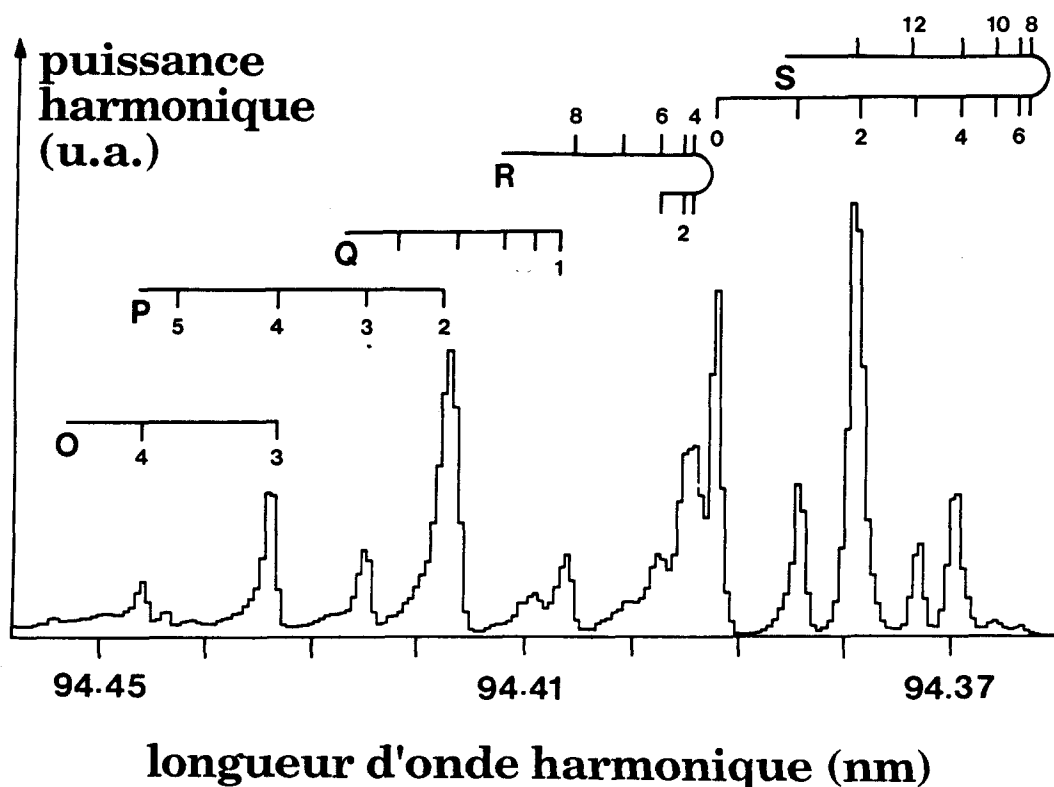


Figure VII.2

Evolution de la puissance harmonique en fonction de la longueur d'onde UVX du rayonnement harmonique généré. Le signal harmonique est créé sur l'axe du jet supersonique d'azote à une distance foyer laser-tuyère $X/D=5$. La structure rotationnelle est due à la présence de l'état résonnant à deux photons $a^1\Pi_g$ qui réalise l'amplification du rayonnement harmonique. On reconnaît sur ce spectre la signature caractéristique des molécules homopolaires par l'alternance des intensités entre les états ortho (J pairs pour l'azote) et les états para (J impairs).

laser est focalisé sur l'axe du jet (schéma 2 - chapitre III, schéma 1 - chapitre V) à une distance foyer laser-tuyère $X/D = 5$.

L'allure de ce spectre nous rappelle que le triplement de fréquence peut être vu comme un processus mettant en jeu quatre photons : les trois photons ultraviolets du laser et le photon UVX émis par la molécule. En conversion amplifiée par résonance à deux photons, le triplement de fréquence se ramène à une succession de deux transitions à deux photons. Lors du balayage en fréquence du laser pompe, la génération de l'onde harmonique se trouve exaltée à chaque fois qu'apparaît une coïncidence entre l'énergie d'une transition à deux photons et l'énergie de ces deux photons. Par conséquent, la structure rotationnelle du spectre de triplement de fréquence ressemble fortement à la structure rotationnelle d'un spectre d'absorption à deux photons.

Les cinq branches O, P, Q, R et S correspondent respectivement aux transitions rovibroniques $\Delta J = -2, -1, 0, 1$ et 2 , permises par les règles de sélection relatives aux transitions à deux photons. Les constantes spectroscopiques qui ont permis l'identification des raies sont déduites de l'article de Vanderslice et al /1965/.

Le triplement de fréquence étant un phénomène cohérent, l'intensité du signal harmonique évolue comme le carré de la densité d'états résonnants (expressions (4.49) et (2.39)). L'alternance d'intensité entre les transitions ortho-ortho (J_f pair pour l'azote) et les transitions para-para (J_f impair) est donc plus accentuée dans un spectre de triplement de fréquence que dans un spectre incohérent. De même, la variation d'intensité des raies de rotation en fonction du nombre quantique de l'état fondamental J_f est plus rapide dans un spectre de triplement de fréquence que dans un spectre Raman spontané /Luijks et al 1981/.

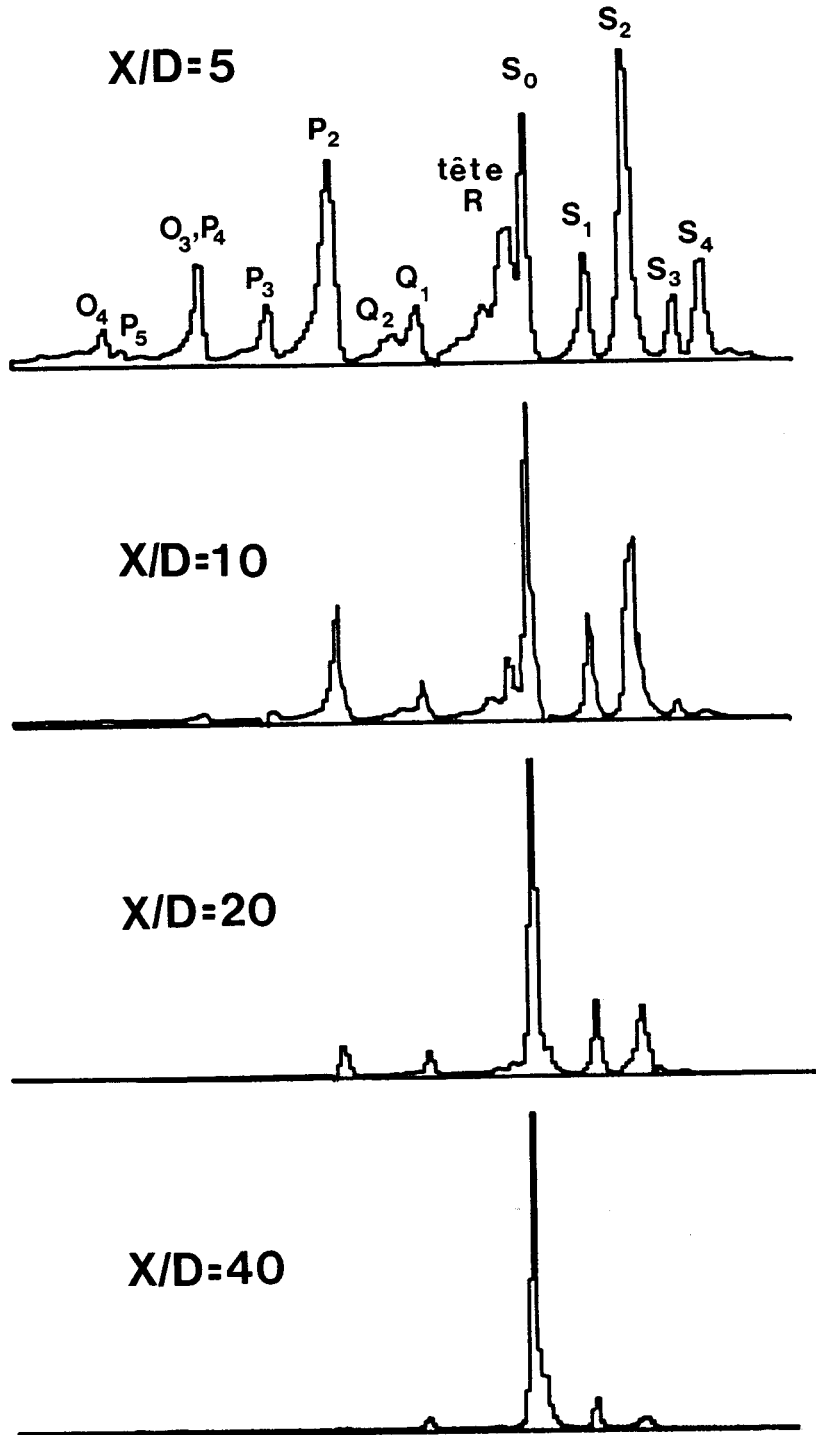


Figure VII.3

Spectres de résonance à deux photons obtenus en focalisant le faisceau laser en différents points X/D de l'axe du jet supersonique. Les amplitudes sont normalisées par rapport à la raie S_0 .

On a représenté en Figure VII.3 quatre spectres de triplement de fréquence enregistrés en différents points X/D de l'axe du jet. Une comparaison de ces spectres laisse entrevoir une méthode permettant de mesurer l'évolution de la densité d'état du niveau fondamental de la molécule d'azote au cours de la détente supersonique.

VII 1.3 Mesure de la densité d'états du niveau rotationnel $J=0$

Le signal harmonique est enregistré pour différentes distances X/D sur la raie de résonance $S(0)$ de la bande de vibration $(1-0)$. La raison de ce choix tient au fait que l'enrichissement en population de l'état $J=0$ est très efficace au cours de la détente (voir figure VII.3).

L'analyse des résultats expérimentaux sera menée moyennant les approximations suivantes :

- les puissances laser mises en jeu ne sont pas suffisantes pour provoquer des effets de saturation tels que le pompage optique à deux photons et l'effet Stark dynamique /Reintjes 1984/, qui ne sont donc pas pris en compte dans le modèle théorique;
- l'auto-absorption de l'onde harmonique est négligée. Rappelons que la transition résonnante a été choisie dans le souci de limiter cette absorption;

- La susceptibilité microscopique du milieu est constante le long de l'axe du jet supersonique. Nous avons évalué, au paragraphe II.6, l'influence de la cohérence du jet, due aux effets de refroidissement et de raréfaction, sur la valeur de la susceptibilité non-linéaire du milieu. Dans notre configuration expérimentale (faisceau laser perpendiculaire à l'axe du jet et focalisé au delà de $X/D=5$), la largeur de raie du laser (≈ 5 GHz) est supérieure à la fois à la largeur collisionnelle et à la largeur Doppler du jet; par conséquent, la réponse non-linéaire varie peu le long de l'axe du jet supersonique comme on le constate d'après la figure II.5;

- le fond continu des spectres, dû à la contribution de la partie non-résonnante de la susceptibilité, est négligé vis-à-vis de l'effet résonnant lui-même. A l'inverse de χ_{NR} , la partie résonnante χ_R de la susceptibilité exprimée en (2.39) bénéficie du phénomène de refroidissement du gaz, qui tend à concentrer la population globale de l'état fondamental sur les niveaux rotationnels de basse énergie (figure IV.9). Ce phénomène se voit d'autant mieux que l'onde harmonique est créée loin de la tuyère;

- à chaque distance foyer laser-tuyère X/D est associée une densité d'état déterminée. Cette approximation revient à négliger la divergence des lignes de courant "vues" par le faisceau laser. Elle se justifie aisément dans la mesure où les enregistrements sont effectués à de grandes distances X/D ($X/D \gg 5$), distances pour lesquelles le foyer laser ne recouvre que la veine centrale du jet.

La mesure de l'intensité du signal harmonique nous est directement fournie par la hauteur des raies de résonance et non par leur surface. En effet, la forme des raies ne reflète en rien la répartition spectrale de l'énergie harmonique émise en un tir laser, mais elle représente plutôt la dépendance en fréquence de la raie de résonance lorsqu'on balaie celle-ci en plusieurs tirs lasers (schéma 1). Par conséquent, l'intensité du signal harmonique correspond à la hauteur de la raie de résonance dans la mesure où cette dernière est déjà le résultat d'une intégration sur la fréquence de chacun des photons émis en un tir laser.

Par cette remarque, on met l'accent sur la différence qui distingue la forme de raie de résonance de celle de la raie d'émission harmonique. La raie de résonance possède une largeur spectrale reliée à la nature du milieu (élargissement homogène, élargissement inhomogène), ainsi qu'aux qualités spectrales du laser. Par contre, la raie d'émission harmonique n'est nullement reliée aux sources d'élargissement du milieu puisque, de par la nature cohérente du triplement de fréquence, une molécule ne peut donner naissance à un photon harmonique qu'à condition qu'elle n'ait subi aucune interaction avec les autres molécules durant l'intervalle de temps où elle absorbe les trois photons du laser.

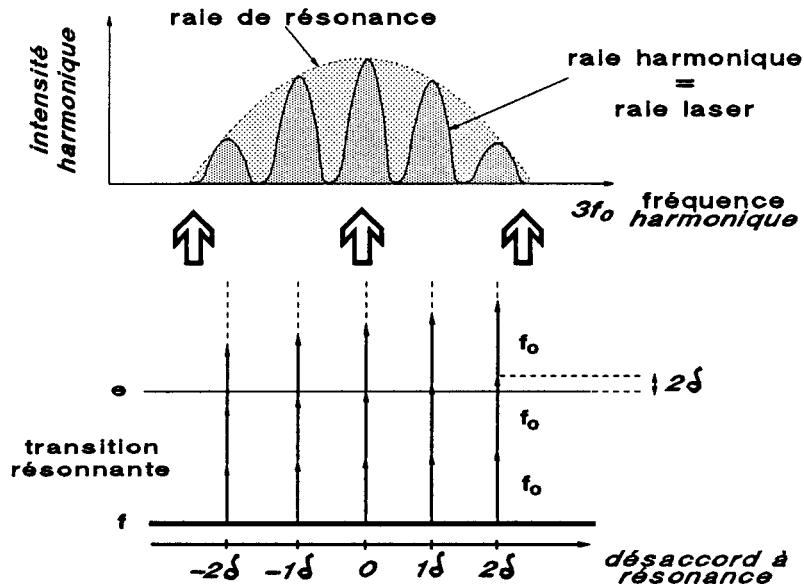


schéma 1: Allure de la raie de résonance dans le cas particulier où l'élargissement homogène du milieu est bien supérieur à la largeur de raie du laser

Pour mémoire, nous rappelons les différentes quantités qui gouvernent la puissance harmonique enregistrée. La conversion étant résonnante à deux photons, on constate d'après les expressions (2.39) et (4.49) que la puissance P_h du signal mesurée est reliée essentiellement à la puissance du laser P_f , à l'amplitude de la susceptibilité non-linéaire par molécule (microscopique) $\chi^{(3)}$, au facteur d'adaptation de phase $F(b\Delta K)$ introduit au chapitre IV et enfin à la densité d'état N_e du niveau résonnant fondamental que l'on se propose de déterminer :

$$P_h = \mathcal{F}(P_f, \chi_{mic}^{(3)}, F(b\Delta K), N_e) \quad (7.1)$$

La puissance du laser est évidemment une quantité que l'on peut mesurer. Nous n'avons pas accès à l'amplitude de la susceptibilité microscopique, mais par contre, et c'est le point capital, nous savons que celle-ci est constante le

long du jet. De ce fait, on se limitera à des mesures relatives de densité. Finalement, la difficulté majeure quant à l'évaluation de la densité d'état N_e réside dans le calcul du facteur $F(b\Delta K)$ d'adaptation de phase (chapitre IV).

VII 1.3.1 Facteur d'adaptation de phase

Gardons à l'esprit que, dans l'expérience qui nous concerne, l'onde harmonique est émise à des fréquences appartenant au domaine de l'extrême ultraviolet (UVX), c'est-à-dire dans une région spectrale où la molécule d'azote présente un grand nombre d'états Rydberg et d'états non-Rydberg (figure VII.1). Le calcul du facteur d'adaptation de phase, et donc le calcul de l'indice de réfraction à la fréquence harmonique, nécessitent ainsi, non seulement la prise en considération de tous ces états, mais aussi de ceux du continuum d'ionisation de la molécule.

Inutile de préciser qu'un calcul rigoureux est irréalisable compte tenu du manque de données spectroscopiques qui caractérise le domaine des fréquences extrêmes de l'ultraviolet. Nous ne sommes donc pas en mesure de calculer la valeur exacte de ΔK .

Cette difficulté se trouve contournée dans la mesure où l'on a pris la précaution de générer l'onde harmonique à une fréquence aussi éloignée que possible des bandes d'absorption UVX. De cette façon, la valeur microscopique du ΔK (Δk par molécule) est a priori faible; le milieu est peu dispersif.

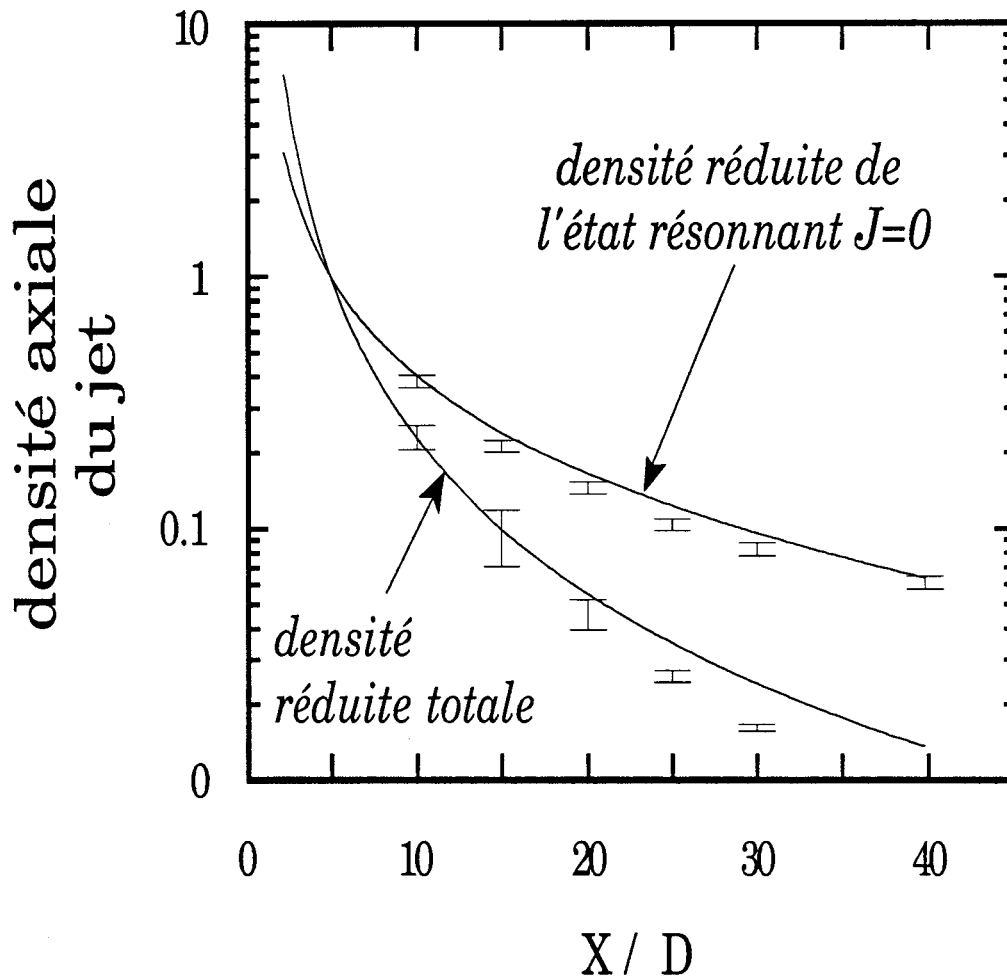


Figure VII.4

Evolution de la densité réduite $N(x/D)/N(x/D=5)$ sur l'axe du jet libre supersonique. Les barres d'erreur représentent la dispersion des mesures expérimentales. La densité sur l'état $J=0$ est obtenue à partir de la mesure du signal harmonique créé en résonance à deux photons sur la transition $S(0)$. La densité totale est déduite des mesures effectuées hors résonances.

Pour les grandes distances X/D , où le milieu est fortement dilué, la valeur du ΔK macroscopique ($\Delta K = N\Delta k$) reste voisine de zéro. Par contre, ΔK peut prendre des valeurs significatives pour les faibles valeurs de X/D en raison des fortes densités qui résident à proximité de la tuyère du jet. Néanmoins, pour de telles distances (régime de faible focalisation : $b \gg$ épaisseur du jet), le facteur d'adaptation de phase dépend relativement peu de ΔK (figure VI.4). En résumé, nous sommes tout à fait dans la situation illustrée figure IV.10; il est donc raisonnable de mener l'interprétation de nos mesures expérimentales en considérant que le facteur d'adaptation de phase est constant pour un X/D donné.

VII 1.3.2 Résultats

Suivant l'expression (7.1), nous avons représenté figure VII.4 l'évolution de la densité d'état N_0 du niveau fondamental $J=0$ ramenée à sa valeur à $X/D=5$ (densité réduite). Ces résultats, déduits des mesures de puissance harmonique enregistrées sur l'axe du jet supersonique pour des valeurs de X/D comprises entre 5 et 40, seront discutés dans le paragraphe 4.

VII 2 MESURE DE LA DENSITE TOTALE

Dans les expériences de triplement de fréquence effectuées hors résonance, le signal harmonique est fortement amoindri par rapport au cas précédent et de ce fait se trouve plus difficile à détecter. Ainsi, le désir de réaliser des mesures hors-résonance pour des distances X/D importantes

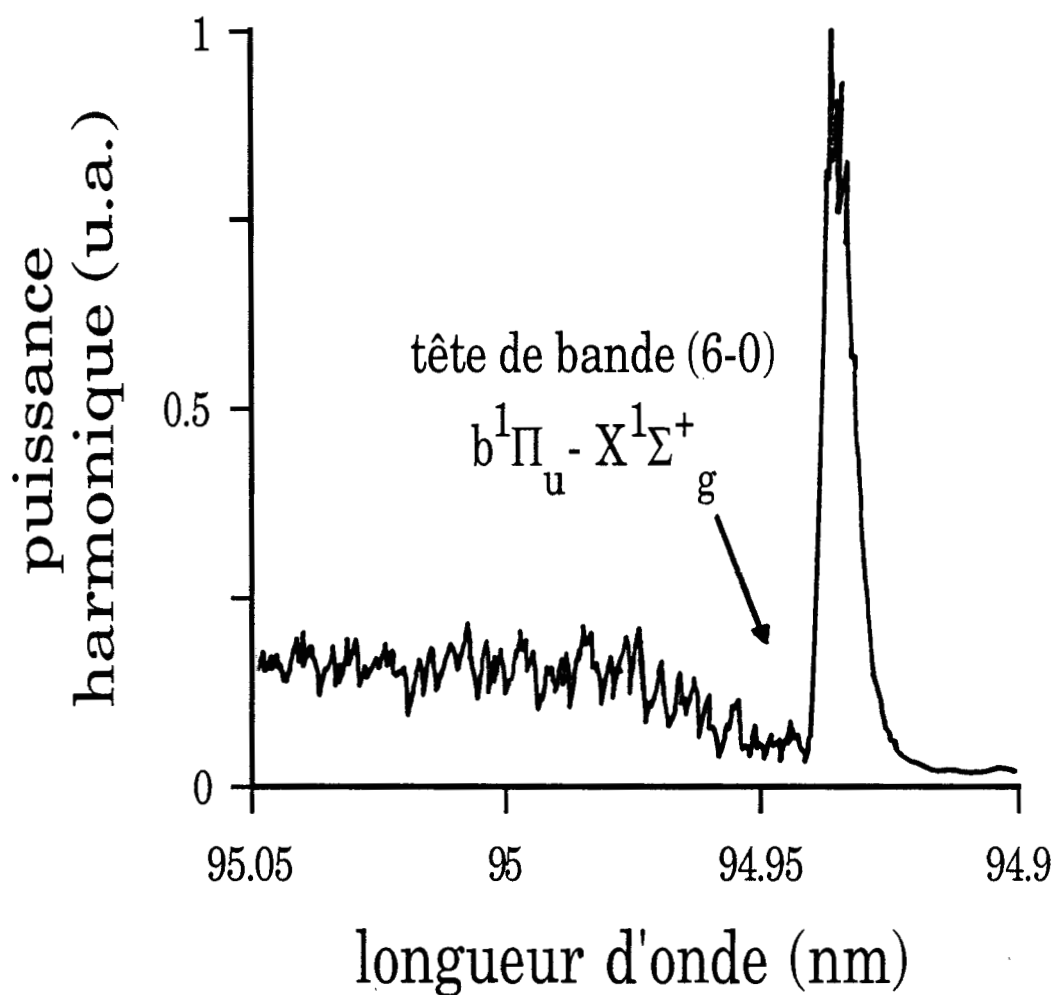


Figure VII.5

Allure du pic d'adaptation de phase qui apparait dans l'aile bleue de la tête de bande (6-0) de la transition $b^1\Pi_u - X^1\Sigma_g^+$. L'enregistrement est effectué sur l'axe du jet supersonique ($X/D=9$) aux conditions génératrices $P_0=1,2$ bar, $D=450$ μm .

($X/D \gg 20$) impose d'exploiter au mieux les conditions d'adaptation de phase. Dans ce but, on ajuste la fréquence du laser de telle sorte que l'émission harmonique s'opère dans la partie "bleue" d'une bande d'absorption UVX. En effet, en régime de forte focalisation (ce qui correspond dans notre expérience à $X/D \leq 15$ où $L \geq 1,5$ cm alors que $b = 1,5$ cm), on a montré (paragraphe IV 1.2.4) que le facteur d'adaptation de phase est maximal lorsque $b\Delta K$ est négatif, c'est-à-dire lorsque l'indice de réfraction à la fréquence harmonique 3ω est inférieur à l'indice à la fréquence laser ω . Une des méthodes utilisées pour obtenir cette condition consiste à créer l'onde harmonique dans un domaine spectral procurant au milieu une dispersion d'indice négative. Autrement dit, la fréquence 3ω doit se situer dans "l'aile bleue" d'une bande d'absorption. En l'occurrence, la tête de bande de la transition $b^1\Pi_u(v'=6) - X^1\Sigma_g^+(v''=0)$ nous permet de réaliser une adaptation de phase optimale qui se caractérise par la présence d'un pic relativement fin et très intense représenté figure VII.5. Grâce à ce dernier, il a été possible d'effectuer des mesures hors-résonance à des distances aussi grandes que $X/D=30$ (dans notre configuration expérimentale, ceci correspond à une distance foyer laser-tuyère $X=8$ mm).

Enfin, notons que dans cette région spectrale où l'indice de réfraction est une fonction rapidement variable, un balayage en fréquence de l'onde harmonique revient à reproduire l'allure des courbes d'adaptation représentées en figure IV.11. Plus précisément, on obtient une courbe d'adaptation de phase qui se trouve distordue suivant l'axe des abscisses en raison de la non-linéarité de la relation de dispersion d'indice vis à vis de la fréquence.

Connaissant les puissances harmoniques enregistrées sur le pic d'adaptation de phase et compte tenu des valeurs correspondantes du facteur d'adaptation (figure IV.8), nous avons déterminé à l'aide de l'expression 7.1 - où dans ce cas la densité N_e d'état doit être remplacée par la densité globale du gaz - l'évolution relative de la densité globale $N(X/D)$. Le résultat, reporté figure VII.4 pour des valeurs de X/D comprises entre $X/D=5$ et $X/D=30$, sera discuté en fin de chapitre.

VII 3 DISTRIBUTION ROTATIONNELLE

VII 3.1 Principe de la mesure

La distribution des populations rotationnelles peut aussi être évaluée à partir des spectres de résonance (figure VII.2) relatifs à l'enregistrement du signal harmonique créé en différents points de l'axe du jet supersonique.

Les hypothèses qui valent pour cette partie sont semblables à celles introduites au paragraphe VII 1.3, c'est-à-dire :

- le triplement de fréquence s'effectue en dehors de tout phénomène de saturation. En particulier, l'auto-absorption est négligée (il suffirait d'ailleurs qu'elle puisse être considérée comme constante tout au long du domaine spectral exploré par le laser);

- la susceptibilité non-linéaire par molécule (microscopique) est constante dans le jet au-delà de $X/D=2$;
- seule la partie résonnante de la susceptibilité est prise en compte;
- à chaque distance foyer laser-tuyère X/D sont associées une distribution rotationnelle et une densité unique.

La distribution rotationnelle du niveau fondamental sera déduite de la comparaison des intensités de chacune des raies de transition à l'intérieur d'un spectre donné. La contribution résonnante de la susceptibilité étant prédominante vis-à-vis de la partie non-résonnante, l'intensité mesurée reflète essentiellement la population du niveau J résonnant.

Cette intensité harmonique évolue à l'intérieur d'un spectre de résonance suivant la loi :

$$I_{res} \approx \left[F(b\Delta K) \right] x \left[\chi_R^{(3)} \right]^2$$

avec

(7.2)

$$\chi_R^{(3)} = \left(\text{population} \right) x \left(\chi_R^{(3)} \right)$$

où $\chi_R^{(3)}$ et $\chi_R^{(3)}$ sont les expressions macroscopique et microscopique de la susceptibilité résonnante à deux photons.

VII 3.2 Dépendance rotationnelle de la susceptibilité non-linéaire

Dans l'approximation de Born-Oppenheimer /Hougen 1970/, la susceptibilité résonnante introduite en (2.39) est séparable en un produit de deux termes :

$$\chi_{R2}^{(3)}(3\omega) = S_{R2}^{(3)}(J_e, J_f) \mathfrak{R}_{v_e, v_f}^{e, e_f} \quad (7.3)$$

$\mathfrak{R}_{v_e, v_f}^e$ correspond au moment de transition vibronique et ne dépend que des nombres quantiques électroniques e_e, e_f et des nombres quantiques de vibration v_e, v_f . $S_{R2}^{(3)}(J_e, J_f)$, quant à lui, représente la dépendance rotationnelle de la susceptibilité résonnante à deux photons et s'exprime à travers les nombres quantiques électroniques et rotationnels des états électroniques excité "e" et fondamental "f".

Pour une transition à deux photons, induite par un laser polarisé linéairement, entre un état $^1\Sigma$ et $^1\Pi$, la dépendance rotationnelle de la susceptibilité non-linéaire $S_{R2}^{(3)}(J_e, J_f)$ s'écrit sous la forme /Aguillon 1989³/ :

$$S_{R2}^{(3)}(J_e, J_f) = \frac{(2J_e+1)(2J_f+1)}{15} \begin{pmatrix} J_f & J_e & 2 \\ 0 & 1 & -1 \end{pmatrix}^2 \quad (7.4)$$

La présence du symbole $3J$ permet de faire apparaître les cinq éléments non-nuls de $S_{R2}^{(3)}(J_e, J_f)$ correspondant aux règles de sélection $\Delta J = J_e - J_f = \pm 2, \pm 1, 0$:

$$\begin{aligned}
 S_0^{(3)} &= \frac{J+1}{30} && \text{pour la branche O } (\Delta J=-2) \\
 S_P^{(3)} &= \frac{J(J-2)}{15(2J-1)} && \text{pour la branche P } (\Delta J=-1) \\
 S_Q^{(3)} &= \frac{2J+1}{10(2J-1)(2J+3)} && \text{pour la branche Q } (\Delta J=0) \quad (7.5) \\
 S_R^{(3)} &= \frac{J}{30} && \text{pour la branche R } (\Delta J=+1) \\
 S_S^{(3)} &= \frac{(J+1)(J+3)}{15(2J+3)} && \text{pour la branche S } (\Delta J=+2)
 \end{aligned}$$

où J se rapporte au niveau électronique fondamental.

Les quantités (7.5) conduisent à des intensités de raies de résonance égales aux carrés des intensités de raies d'absorption à deux photons. Cette similitude tient au fait que le triplement de fréquence par résonance à deux photons peut être vu comme une succession de deux transitions à deux photons (expression 2.39).

La dépendance rotationnelle de la susceptibilité résonnante évolue en fonction de J de la manière représentée sur la figure VII.6.

VII 3.3 Facteur d'adaptation de phase

On admet dans cette partie que le facteur d'adaptation de phase est constant à l'intérieur du domaine spectral correspondant à l'enregistrement d'un spectre de résonance. Cette hypothèse est raisonnable dans la mesure où, d'une part, le signal harmonique est généré en dehors de toute bande d'absorption et où, d'autre part, l'intervalle de fréquence nécessaire à l'enregistrement des raies S(0)-S(4) est petit

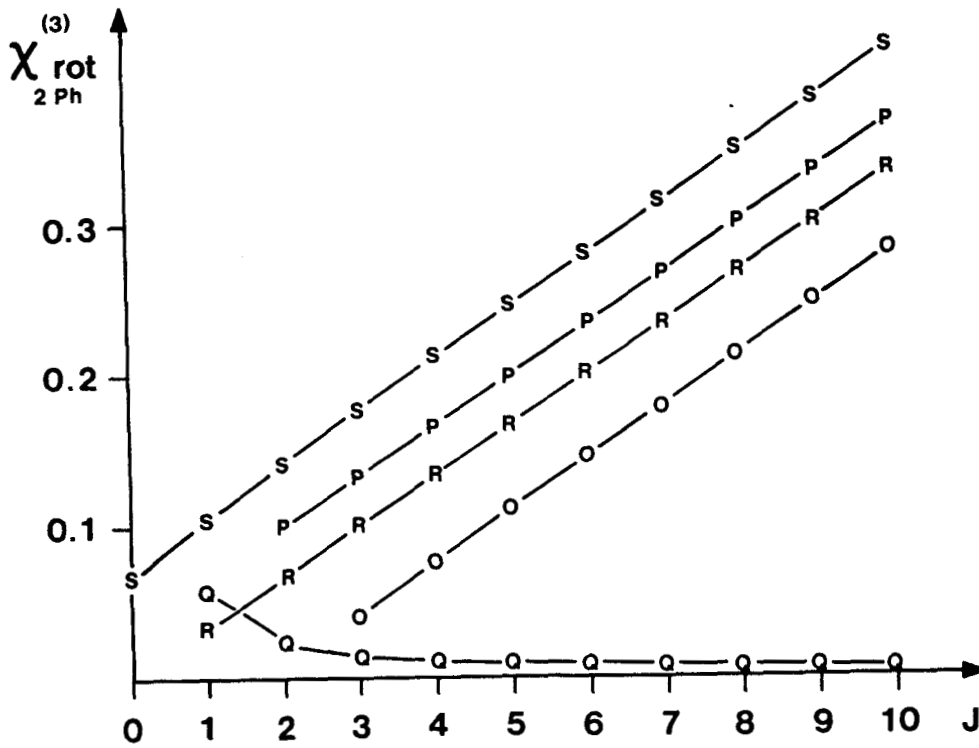


Figure VII.6

Dépendance rotationnelle de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois résonnante à deux photons pour une transition électronique $1\Pi-1\Sigma$. Les cinq branches rotationnelles, permises par les règles de sélection sur les transitions à deux photons, correspondent aux différences des nombres quantiques : $\Delta J = J_e - J_f = -2, -1, 0, +1, +2$.

et donc n'induit pas de variation conséquente des indices de réfraction. Nous renforçons cet argument en ajoutant que le jet a pour effet de minimiser la dispersion du facteur d'adaptation de phase par rapport à l'utilisation d'une simple cellule (figure IV.10).

VII 4 RESULTATS ET DISCUSSION

VII 4.1 Ecart à l'équilibre - résultats antérieurs

Dans un jet supersonique, la détente du gaz est très brutale et provoque ainsi des déséquilibres importants sur la répartition des populations /Campargue et al 1984/.

Dans le meilleur des cas, les seules températures qui restent correctement définies sont la température rotationnelle et la température translationnelle, voisines l'une de l'autre mais très différentes de la température vibrationnelle (notons d'ailleurs qu'il est délicat de parler de température vibrationnelle dans la mesure où celle-ci n'est plus thermodynamiquement définie /Gaveau 1984/).

Dans certains cas extrêmes, le déséquilibre est tel que la température rotationnelle n'est elle-même plus définie. Dans nos expériences, on voit apparaître ce phénomène en fin de détente, dès que le taux de collision devient trop faible pour permettre une relaxation correcte des niveaux rovibroniques de la molécule; on parle alors de gel rotationnel /Gallagher et Fenn 1974/.

En fait, l'interprétation des phénomènes de relaxation des niveaux rotationnels de l'azote en jet supersonique reste aujourd'hui encore mal connue /Campargue et al 1984/. Les techniques de fluorescence induite par bombardement électro-

nique /Faubel et Weiner 1981, Dekoven et al 1981, Hernandez et al 1982/, de diffusion Raman /Luijks et al 1981, Huber-Walchli et Nibler 1982, Ilyukhin et al 1990/ ainsi que des mesures de temps de vol /Miller et Andres 1967, Yamazaki et al 1981/ ont été mises en jeu afin d'interpréter les effets du refroidissement sur la molécule d'azote. Les résultats concernant la répartition des populations rotationnelles selon une loi de Boltzmann sont bien souvent soit dépendants de la méthode utilisée pour sonder le jet, soit contradictoires à l'intérieur d'une même technique de mesure. Néanmoins, chacun s'accorde à penser que la distribution des populations est généralement décrite par la statistique de Boltzmann pour les états rotationnels de basses énergies (faibles valeurs de J). Encore faut-il que le taux de collision à l'intérieur du jet ne soit pas trop faible, ce qui se produit lorsque la raréfaction du gaz est importante en raison des fortes valeurs de X/D sondées ou encore pour des conditions génératrices du jet qui favorisent la raréfaction (tuyères de très faibles diamètres ou/et pressions génératrices faibles).

VII 4.2 Modèle de la détente isentropique

Dans le modèle isentropique, la densité globale $N(X/D)$ le long de l'axe du jet nous est fournie par l'expression (3.19).

La densité d'états résonnants, qui reflète les effets conjugués de raréfaction et de refroidissement, est reliée à la densité globale du gaz ainsi qu'à sa température T . Pour une détente isentropique, la température axiale du jet $T(X/D)$, créée à partir d'une température génératrice T_0 , est calculée grâce à l'expression (3.17).

La distribution N_J des états internes de l'azote en détente isentropique, régie par la distribution de Boltzmann, s'exprime naturellement sous la forme :

$$N_J = N(X/D) \frac{g_J (2J+1)}{Z} \exp \left(\frac{-BJ(J+1)}{KT(X/D)} \right) \quad (7.6)$$

où Z est la fonction de partition du mélange statistique, B est la constante rotationnelle de la molécule d'azote dans son état fondamental et K représente la constante de Boltzmann.

Le facteur de dégénérescence g_J opère la distinction entre les deux catégories de molécules constituant l'azote. En effet, la molécule d'azote étant homopolaire, il faut considérer le gaz comme un mélange de deux espèces évoluant sans interaction /Herzberg 1950/ : l'ortho-azote correspondant aux états J pairs ($g_J = 6$ pour l'azote) et le para-azote correspondant aux états J impairs ($g_J = 3$).

VII 4.3 Distribution rotationnelle mesurée

La mesure des distributions rotationnelles se fait traditionnellement par référence aux distributions de Boltzmann. Si le jet était en équilibre de Boltzmann (pour la rotation) à la température T , et compte tenu des hypothèses faites ci-dessus (indépendance du facteur d'adaptation de phase vis-à-vis de la fréquence harmonique), d'après (7.2), (7.5) et (7.6) l'intensité $I_{S(J)}$ du signal harmonique sur la transition résonnante S évoluerait comme :

$$\ln \left(I_{S(J)} \left(\frac{1}{g_J} \frac{2J+3}{(J+1)(J+3)} \right)^2 \right) \approx - \frac{2B}{KT} J(J+1) \quad (7.7)$$

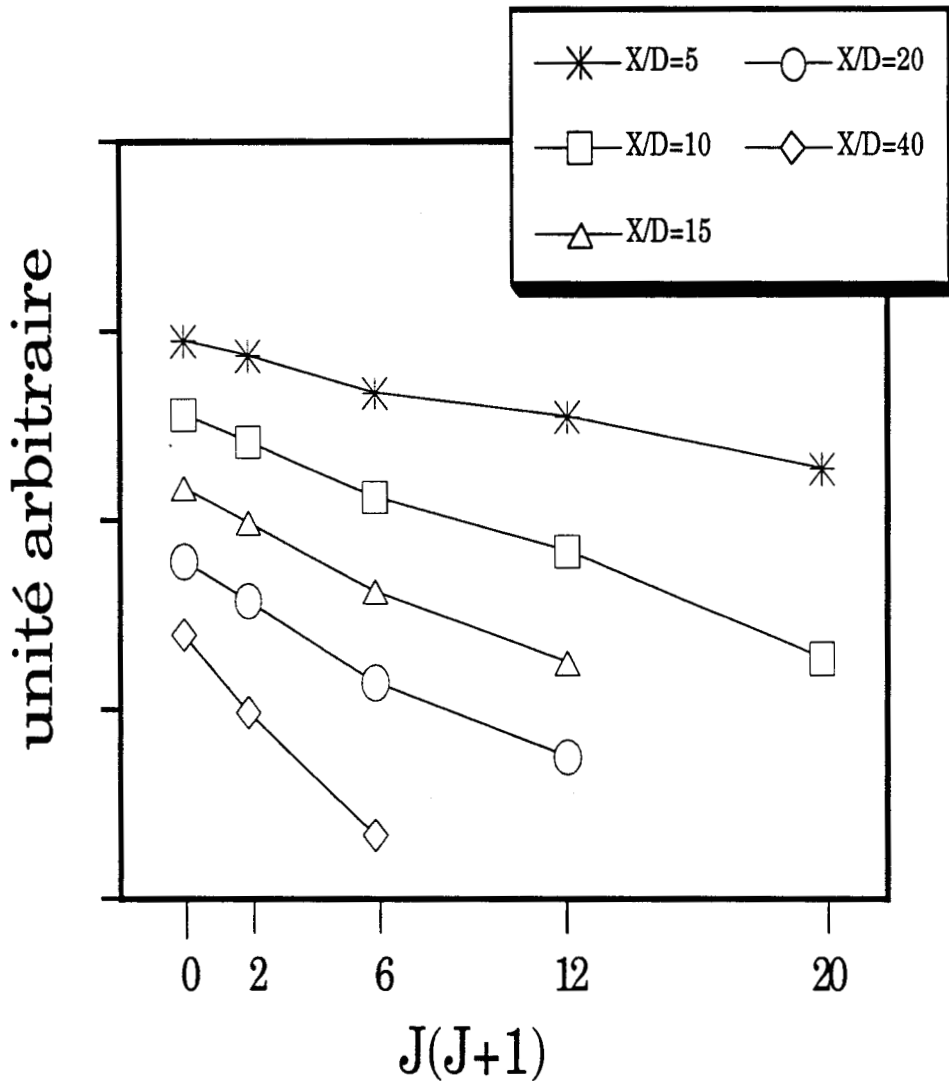


Figure VII.7

Caractéristiques de Boltzmann relatives aux mesures d'intensité du signal harmonique créé en différents points X/D de l'axe du jet. L'erreur expérimentale attachée aux mesures est inférieure à la taille des symboles. Le déséquilibre rotationnel, que l'on voit apparaître à partir des niveaux $J=2$, est discuté dans le texte. (dans un souci de clarté, les caractéristiques sont translatées verticalement de manière arbitraire)

La représentation graphique de l'expression (7.7) en fonction de $J(J+1)$ (diagramme de Boltzmann) serait donc une droite de pente inversement proportionnelle à la température d'équilibre T .

En ce qui nous concerne, compte tenu des intensités harmoniques relevées sur nos spectres de résonance à deux photons, le tracé de $\ln \left[I_{s(j)} \left(\frac{1}{g_j} \frac{2J+3}{(J+1)(J+3)} \right)^2 \right]$ en fonction de $J(J+1)$ nous fournit le réseau de courbes de la figure VII.7. Chaque courbe correspond à un point X/D différent de l'axe du jet.

Pour les valeurs du nombre quantique J supérieures à deux, on voit apparaître un déséquilibre dans la répartition des intensités. Ce déséquilibre se traduit principalement par un comportement faiblement non boltzmannien des populations. Malheureusement, eu égard au nombre de raies mesurées (nombre limité par l'effet d'un refroidissement intense), ainsi qu'à l'incertitude sur la mesure des raies les plus faibles (en particulier les raies $S(3)$ et $S(4)$), il n'est pas possible d'entreprendre une interprétation en profondeur faisant intervenir les mécanismes de cinétique responsables du déséquilibre. Une étude en jet chauffé permettrait, par exemple, de répondre à la question : est-ce que les états ortho (J pairs), états les plus représentés, relaxent plus aisément (rapidement) que les états para (J impairs) ?

Nous avons défini des températures rotationnelles "partielles" en nous basant sur les mesures des trois premiers niveaux de rotation $J=0$, $J=1$ et $J=2$, pour lesquelles la répartition de Boltzmann semble être correctement vérifiée. Ces températures sont comparées figure VII.8 aux températures calculées pour une détente isentropique.

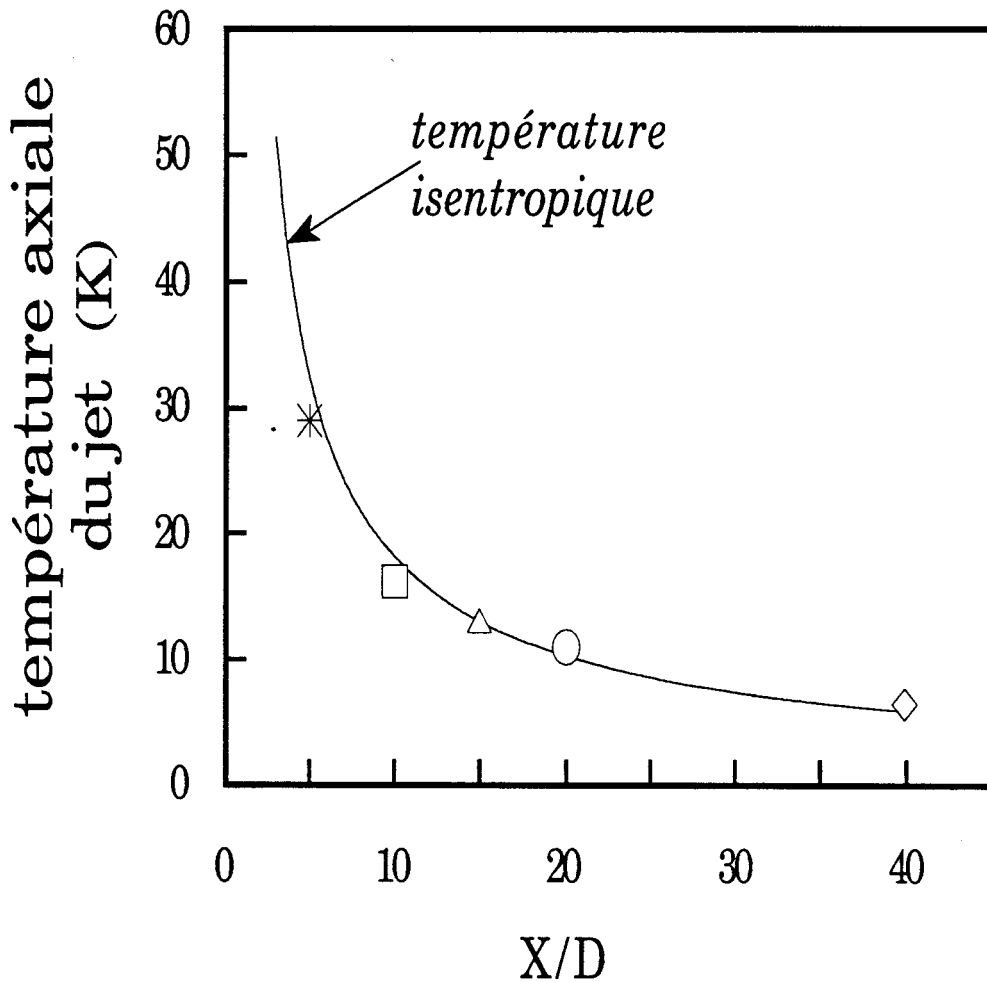


Figure VII.8

Températures rotationnelles mesurées sur l'axe du jet supersonique. Celles-ci sont évaluées à partir de l'amplitude du signal harmonique enregistré sur les trois premiers niveaux $J=0$, $J=1$, $J=2$ qui se trouvent en équilibre rotationnel (distribution de Boltzmann).

La valeur expérimentale correspondant à $X/D=40$ représente la température la plus basse ($\approx 6K$) qu'il nous ait été permis d'atteindre dans la configuration expérimentale qui est la nôtre. Les résultats expérimentaux suivent de très près la courbe de température isentropique sauf pour les grandes valeurs de X/D où les températures, à cause du gel des degrés de liberté de rotation, ont tendance à être légèrement plus chaudes que celles prédites par la théorie.

Ces résultats peuvent être illustrés en comparant directement les spectres expérimentaux à une simulation numérique. Pour cette dernière, nous avons supposé a priori que la distribution rotationnelle était une distribution Boltzmannienne caractérisée par les températures expérimentales de la figure VII.8. Les résultats sont présentés figure VII.9

La comparaison se révèle, dans l'ensemble, satisfaisante à l'exception des quelques discordances suivantes :

- Les hauteurs relatives des raies $S(0)$, $S(1)$ et $S(2)$ concordent parfaitement avec les mesures expérimentales. Par contre, l'accord est sensiblement moins spectaculaire pour les autres raies de résonance. La raison en est évidente étant donné que, d'une part, la simulation théorique est effectuée à partir des températures expérimentales mesurées à l'aide des transitions $S(0)$, $S(1)$, $S(2)$ et que, d'autre part, les niveaux d'énergie correspondant à une valeur du nombre quantique J supérieur à deux ne vérifient pas la statistique de Boltzmann;

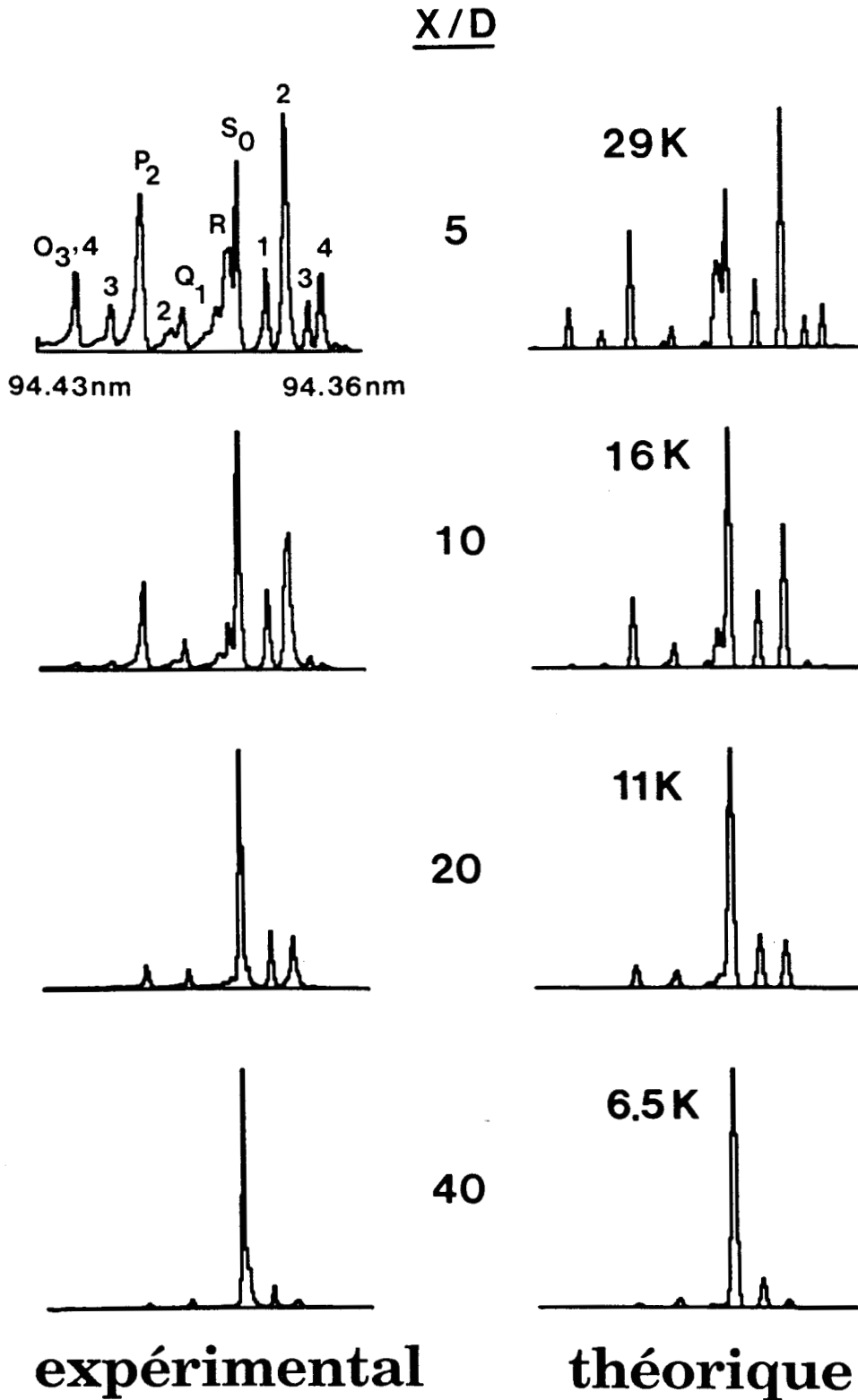


Figure VII.9

Comparaison entre des spectres de résonance à deux photons enregistrés pour différentes distances X/D et une simulation théorique utilisant la distribution de Boltzmann pour décrire la répartition de population de l'état fondamental.

- La largeur des raies de résonance théoriques ne reflète pas la réalité expérimentale. Un calcul exact de ces largeurs nécessite de prendre en compte, dans le modèle, l'influence des sources d'élargissement vis-à-vis de la susceptibilité non-linéaire. Ainsi, la largeur spectrale finie du laser, l'élargissement collisionnel, l'élargissement Doppler microscopique dû à l'agitation thermique des molécules ainsi que l'élargissement Doppler macroscopique dû à la divergence des lignes de courant du jet, doivent intervenir dans le calcul. Notons à ce sujet que c'est l'effet Doppler macroscopique qui oppose le plus de difficulté au calcul de la forme du profil de raie : il faut, en effet, connaître la contribution de chaque tranche du jet à l'intensité totale du signal harmonique émis /Gaveau 1984/.

N'ayant pas estimé utile d'entreprendre un calcul aussi lourd, nous nous sommes contentés d'ajuster la forme et la largeur des raies de résonance afin d'obtenir le meilleur accord théorie-expérience.

VII 4.4 Densités mesurées

A l'aide des expressions (4.49), (3.17), (3.19) et (7.6), les variations de la densité globale ainsi que la densité sur l'état $J = 0$ du modèle isentropique ont été calculées et reportées figure VII.4. On constate un bon accord théorie-expérience en ce qui concerne les mesures entreprises en résonance à deux photons à partir de l'état $J = 0$. Par contre, les points expérimentaux, déduits des mesures effectuées hors-résonance, ont tendance à se placer en-dessous des valeurs théoriques. Le désaccord réside

principalement dans l'emploi abusif d'une des hypothèses posées précédemment. En effet, nous avons considéré au cours du calcul que les phénomènes d'auto-absorption étaient négligeables. Ceci se justifie parfaitement dans le cas des mesures effectuées par résonance à deux photons où l'onde harmonique est générée loin des bandes d'absorption. L'hypothèse ne tient plus dans des mesures réalisées hors-résonance, puisque celles-ci ont été enregistrées sur un pic d'adaptation de phase et que l'existence de celui-ci est justement liée au voisinage de la tête de bande d'absorption. En fait, étant donné que l'épaisseur optique du jet diminue au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la tuyère, l'introduction - au niveau des calculs - d'un terme d'auto-absorption a pour effet d'atténuer la décroissance des points expérimentaux et ainsi de compenser le décalage existant entre données théoriques et données expérimentales. Autrement dit, négliger le terme d'auto-absorption revient à sous-estimer la valeur de la densité et ceci d'autant plus que l'on étudie une zone d'émission du signal harmonique proche de la tuyère du jet.

Notons sur ce point qu'il a été possible d'obtenir un accord correct en introduisant, de manière phénoménologique, un coefficient d'absorption α_3 dans le modèle théorique.

Enfin, rappelons que Rettner et al /1984/ ont obtenu des résultats équivalents en mesurant la variation de l'intensité de l'onde harmonique émise par triplement de fréquence sur l'axe d'un jet supersonique pulsé de monoxyde de carbone. Ils ont enregistré le signal harmonique sur quatre raies $S(0)$, $S(1)$, $S(2)$ et $S(4)$ de la transition résonnante à deux photons $A^1\Pi(v'=2) - X^1\Sigma^+(v''=0)$, pour des valeurs de X/D comprises entre 0 et 40.

Dans notre expérience, toutes les mesures effectuées en deçà de $X/D=5$ ont été volontairement éliminées de l'analyse.

L'interprétation des résultats se complique considérablement lorsque l'émission harmonique prend place au voisinage de la tuyère. En effet, pour de courtes distances foyer laser-tuyère, la divergence des lignes de courant "vue" par le laser ne peut plus être négligée. D'autre part, pour les valeurs de X/D comprises entre 0 et 2, nous avons vu au chapitre II que le modèle d'analyse doit inclure les effets de cohérence du jet qui conduisent à définir une susceptibilité équivalente (expression 2.87).

VII 5 CONCLUSION

Ce chapitre, dont le contenu fait l'objet d'une publication /Faucher et al 1991/, nous a permis de présenter une étude de diagnostic sur le comportement des états d'énergie internes du gaz soumis à une détente supersonique.

On a montré qu'il était possible de mesurer l'évolution de la densité ainsi que la distribution rotationnelle des molécules le long de l'axe du jet supersonique.

Les résultats obtenus sur un jet d'azote ont permis de constater que la détente suivait d'assez près les lois de la détente isentropique. Toutefois, de légers déséquilibres dans la distribution rotationnelle semblent apparaître pour des valeurs du nombre quantique J supérieures à deux et ce d'autant plus fortement que la raréfaction du gaz est importante.

En conclusion, le triplement de fréquence se révèle être un outil précieux permettant de sonder les états internes d'un milieu gazeux par une mesure non destructive qui présente de plus les avantages liés à la bonne résolution spatiale de la méthode (laser focalisé, optique non-linéaire).

CHAPITRE VIII

Etude de la résonance à trois
photons et de la saturation par
autoabsorption

VIII 1 INTERPRETATION QUALITATIVE

VIII 1.1 Facteur régissant la conversion

VIII 1.1.1 Facteur de création

VIII 1.1.2 Facteur d'adaptation de phase

VIII 1.1.3 Facteur de transmission

VIII 1.2 Système à deux niveaux

VIII 1.2.1 Cas d'un milieu peu absorbant

VIII 1.2.2 Cas d'un milieu fortement absorbant

VIII 1.3 Système moléculaire

VIII 1.3.1 Etude à ΔK non-résonnant nul

VIII 1.3.1.1 Milieu faiblement absorbant

VIII 1.3.1.2 Milieu fortement absorbant

VIII 1.3.2 Etude à ΔK non-résonnant non-nul

VIII 1.3.2.1 Milieu faiblement absorbant

VIII 1.3.2.2 Milieu fortement absorbant

VIII 1.3.3 Conditions d'amplification et de saturation

VIII 2 INTERPRETATION QUANTITATIVE

VIII 2.1 Construction du modèle théorique

VIII 2.1.1 Approximations adoptées

VIII 2.1.2 Equation de propagation en milieu absorbant

VIII 2.1.3 Description du calcul

VIII 2.1.3.1 Expression des termes α_h et ΔK

VIII 2.1.3.2 Expression du terme $\chi^{(3)}(3\omega)$

VIII 2.1.3.3 Expression des quantités N_{j_f} et L

VIII 2.2 Résultats

VIII 3 CONCLUSION

CHAPITRE VIII

On présente, dans ce chapitre, l'étude de la résonance à trois photons lorsque le triplement de fréquence est réalisé dans un milieu moléculaire absorbant.

Le principe du triplement de fréquence amplifié par résonance à trois photons a été introduit au paragraphe 4.3 du chapitre II. On parle de résonance à trois photons lorsque la fréquence de l'onde harmonique correspond à une fréquence de Bohr de la molécule. Dans ce type de conversion, la condition de résonance, et donc d'amplification, coïncide avec la condition d'absorption du rayonnement harmonique généré. Etant donné que le milieu non-linéaire participe simultanément à la création du rayonnement et à son absorption, ce type de conversion s'accompagne d'effets de saturation dus d'une part, à l'auto-absorption elle-même et d'autre part, aux variations d'indice qui l'accompagnent et qui modifient fortement les conditions d'adaptation de phase de l'expérience.

Nous avons établi au chapitre IV qu'en dehors de tout phénomène de saturation, et à puissance laser constante, la puissance harmonique P_h dépend essentiellement de :

- la réponse non-linéaire du milieu caractérisée par la susceptibilité non-linéaire électronique macroscopique $\chi^{(3)}$;
- l'adaptation en phase des ondes se propageant dans le milieu par l'intermédiaire du facteur d'adaptation de phase $F(\Delta K)$.

Plus précisément, cette dépendance s'écrit sous la forme :

$$P_h \propto |\chi^{(3)}|^2 F(\Delta K) \quad (8.1)$$

Jusqu'à présent, cette relation nous a suffi à décrire et à interpréter nos expériences, que ce soit des expériences de conversion non-résonnante ou bien des expériences de conversion résonnante à deux photons (chapitre VII).

En ce qui concerne la conversion par résonance à trois photons, il faut compléter notre modèle théorique afin de prendre en considération le phénomène de saturation lié à l'auto-absorption de l'onde harmonique. En notant α_h le coefficient d'auto-absorption, on relie ainsi la puissance harmonique à ce troisième terme :

$$P_h = \text{fonction}(|\chi^{(3)}|^2, F(\Delta K), \alpha_h) \quad (8.2)$$

Avant d'entreprendre le calcul de cette expression pour interpréter quantitativement les phénomènes, on se propose d'aborder la résonance à trois photons à travers une démarche intuitive.

VIII 1 INTERPRETATION QUALITATIVE

Les phénomènes d'auto-absorption sont difficiles à appréhender étant donné que les trois quantités qui régissent la conversion par résonance à trois photons évoluent de manière rapide et importante en fonction de la longueur d'onde harmonique. Le but de ce paragraphe est, en sacrifiant un peu à la rigueur formelle, de mettre l'accent sur la compréhension des phénomènes mis en jeu.

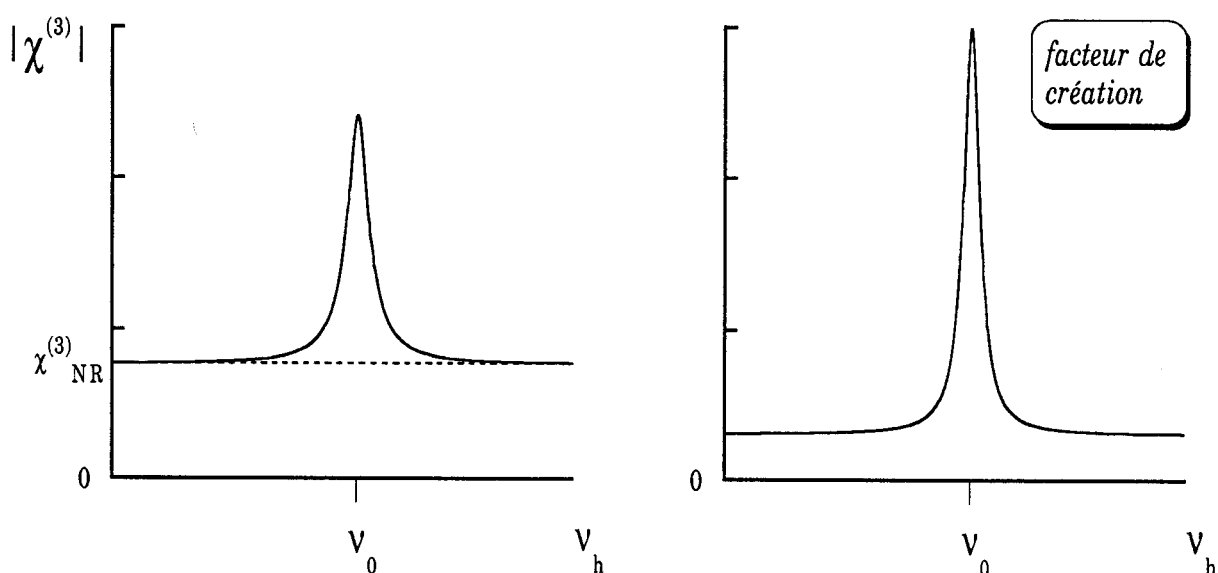
VIII 1.1 Facteurs régissant la conversion

Afin de comprendre l'évolution de la puissance harmonique lorsque la fréquence harmonique se déplace autour d'une transition, on va s'intéresser séparément à la dépendance en fréquence des différents termes intervenant au niveau de l'expression (8.2), et on fera comme si la puissance harmonique était le produit de trois termes (facteur de création, facteur d'adaptation de phase, facteur de transmission). Bien que cette hypothèse ne soit pas rigoureuse, les effets qu'elle permet de prévoir et de comprendre se retrouvent dans le calcul exact.

VIII 1.1.1 Facteur de création

La susceptibilité non-linéaire $\chi^{(3)}$ régit la création de l'onde harmonique. Plus exactement, la puissance harmonique générée varie comme le carré du module de celle-ci. La susceptibilité non-linéaire décrit dans l'espace des fréquences un pic d'amplification centré sur la fréquence de

résonance (expression 2.40), reposant sur un fond quasi-continu dû à la présence des transitions non-résonnantes. La participation de ces termes non résonnants sont pris en compte, au niveau de la susceptibilité, par le terme $\chi_{NR}^{(3)}$. De manière schématique, l'évolution de $\chi^{(3)}$ et par conséquent, l'évolution du facteur de création d'ondelettes harmoniques qui est proportionnel à $|\chi^{(3)}|^2$, se représente autour d'une fréquence de résonance ν_0 de la façon suivante :



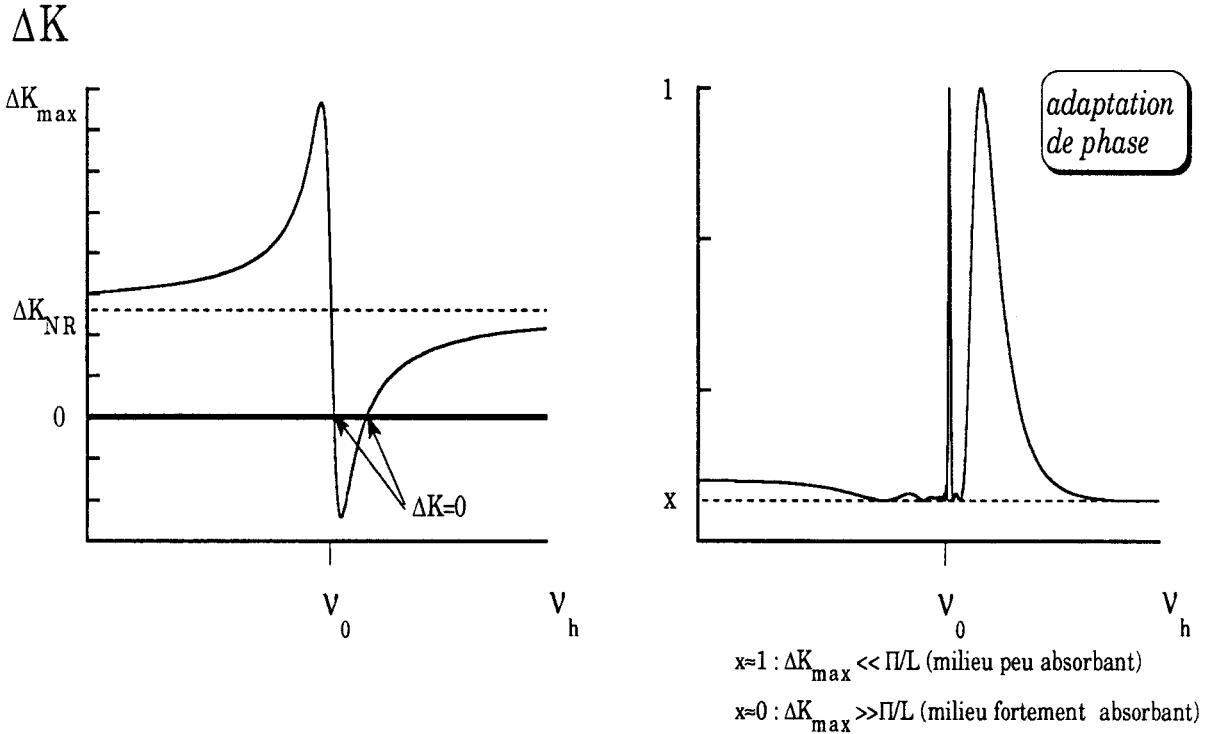
VIII 1.1.2 Facteur d'adaptation de phase

Le facteur d'adaptation de phase $F(\Delta K)$ rend compte des phénomènes d'interférences qui existent entre les différentes ondelettes harmoniques du milieu. Il évolue en fonction du paramètre d'accord de phase ΔK qui, lui-même, se trouve relié à la partie réelle de la susceptibilité linéaire $\chi^{(1)}(3\omega)$ ($\Delta K \propto (n(3\omega) - n(\omega))$ avec $n(\omega)$ à peu près constant et $n(3\omega)$ donné par une expression du type (2.26)); ΔK décrit donc une courbe de dispersion centrée sur la fréquence de résonance.

Pour simplifier, on considère que les ondes qui se propagent dans le milieu sont des ondes planes; l'accord de phase est donc réalisé pour $\Delta K=0$ (chapitre IV, paragraphe 1.1) et fait ainsi correspondre le maximum de conversion (au sens de l'adaptation de phase) au centre de la transition résonnante. Néanmoins, au même titre que la susceptibilité non-linéaire, la susceptibilité linéaire peut posséder un terme non-résonnant $\chi_{NR}^{(1)}$ qui a pour effet de décaler la courbe de dispersion de ΔK_{NR} par rapport à l'origine et de créer ainsi deux régions où l'accord de phase est exact ($\Delta K=0$); la fonction $F(\Delta K)$ affiche dans ce cas deux maxima décentrés par rapport à la fréquence de résonance.

De manière absolue, il est vrai que l'adaptation de phase peut être décrite par une courbe qui possède un ou deux maxima. Cependant, il ne faut pas perdre de vue que ces effets de structure sont fortement atténués, voir masqués, dans le cas où la raie de résonance possède un faible moment de transition entraînant de ce fait une très faible excursion de ΔK autour de la valeur nulle; le facteur d'adaptation de phase est maximum et pratiquement constant. D'après la figure IV.1, on peut affirmer que $F(\Delta K)$ varie de façon appréciable (entre 0 et 1) si la plus grande valeur prise par ΔK est bien supérieure à Π/L (L étant la longueur du milieu).

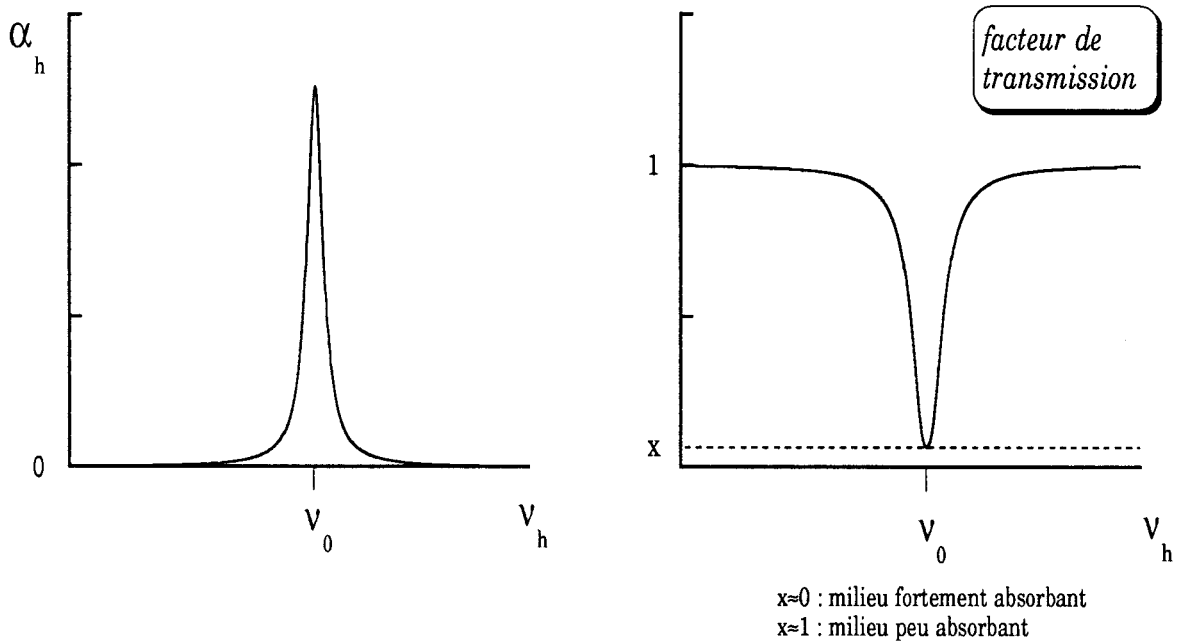
Par conséquent, le comportement de ΔK et $F(\Delta K)$ au voisinage d'une fréquence de résonance ν_0 peut se représenter ainsi :



Chaque fréquence harmonique où ΔK s'annule se traduit par une adaptation de phase optimale. Le paramètre d'accord de phase ΔK , variant rapidement autour de la fréquence ν_0 , conduit à un facteur d'adaptation de phase très "pointu" pour celui des deux maxima situé le plus proche de la résonance.

VIII 1.1.3 Facteur de transmission

Le terme α_h régit l'absorption des ondelettes harmoniques. A ce coefficient, on associe un **facteur de transmission** qui est, à résonance exacte, plus ou moins proche de zéro selon l'absorption plus ou moins forte du milieu.



L'auto-absorption, qui résume les effets conjugués de l'émission et de la réabsorption, ne se décrit pas par une simple loi de Beer-Lambert. Toutefois, son comportement n'en reste pas moins relié à des termes du type $e^{-\alpha_h L}$ /Bey et al 1967/; l'absorption jouera toujours un rôle très contrasté au niveau de la conversion. En effet, soit $\alpha_h L$ sera grand et le terme en exponentielle, très petit, l'emportera sur les autres termes $F(\Delta K)$ et $\chi^{(3)}$, soit $\alpha_h L$ sera petit et alors il n'aura que peu d'influence sur la puissance harmonique.

VIII 1.2 Système à deux niveaux

Dans un premier temps, on imagine que le triplement de fréquence par résonance à trois photons s'effectue dans un système idéal à deux niveaux d'énergie.

Différents cas seront étudiés et illustrés par des figures dans lesquelles on représentera, autour de la fréquence de résonance, l'évolution des quantités :

$\chi^{(3)}$ \Rightarrow facteur de création

ΔK \Rightarrow facteur d'adaptation de phase

α_h \Rightarrow facteur de transmission

desquelles on déduira la puissance harmonique P_h .

Pour chacun de ces termes, on prendra soin de figurer par des pointillés les valeurs que l'on obtiendrait en l'absence de résonance, où loin de la fréquence de résonance.

Dans le cas du système à deux niveaux, les susceptibilités s'expriment en fonction d'un moment de transition unique, autrement dit il n'existe aucun terme non-résonnant :

$$\Delta K_{NR} = 0, \chi_{NR}^{(3)} = 0$$

VIII 1.2.1 Cas d'un milieu peu absorbant

On considère ici le cas où la transition résonnante est peu intense (faible moment de transition). Il s'en suit que, d'une part, l'absorption est toujours faible et, d'autre part, le milieu étant peu dispersif, l'adaptation de phase varie peu; on est dans une situation très proche de la résonance à deux photons. L'évolution de la puissance harmonique est décrite par une forme de raie centrée sur la fréquence de résonance, fréquence à laquelle le facteur d'adaptation de phase et la susceptibilité non-linéaire sont maximum : on observe une amplification de la puissance harmonique par résonance à trois photons (figure VIII.1).

VIII 1.2.2 Cas d'un milieu fortement absorbant

On dira que le milieu est fortement absorbant lorsque l'absorption est suffisamment importante pour masquer les effets d'une bonne adaptation de phase et d'une forte susceptibilité non-linéaire. Pour ce type de milieu, on peut observer /Royt et Lee 1977/ deux maxima de conversion de part et d'autre de la fréquence de résonance ce qui fait apparaître, à résonance exacte, un creux dans le profil de conversion; l'amplification par résonance à trois photons est partiellement détruite par auto-absorption de l'onde harmonique en résonance parfaite avec le milieu.

Ceci est représenté figure VIII.2 où l'auto-absorption se manifeste par un effet d'élargissement du profil de conversion et par la présence du creux à la fréquence ν_0 .

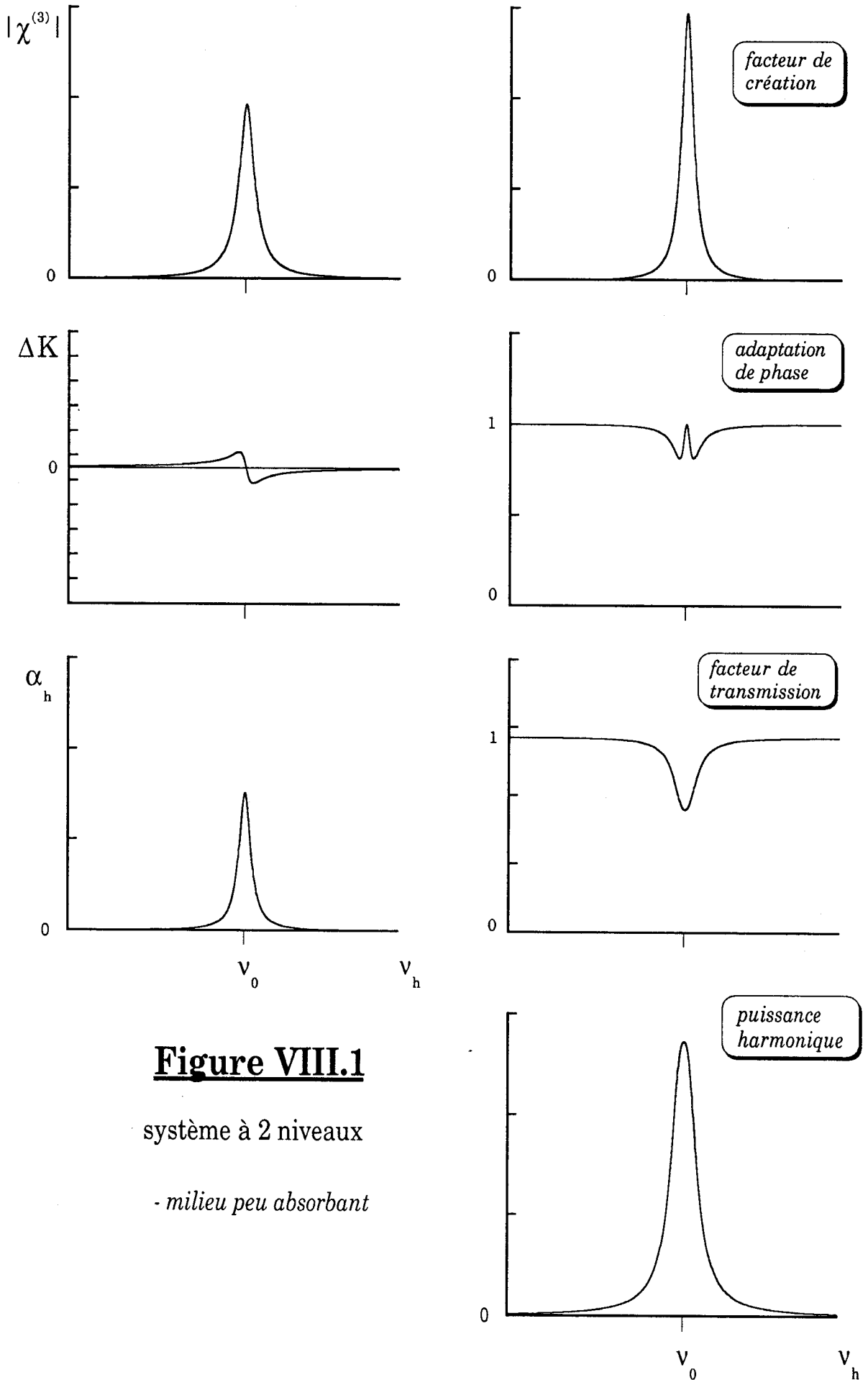


Figure VIII.1

systeme à 2 niveaux

- milieu peu absorbant

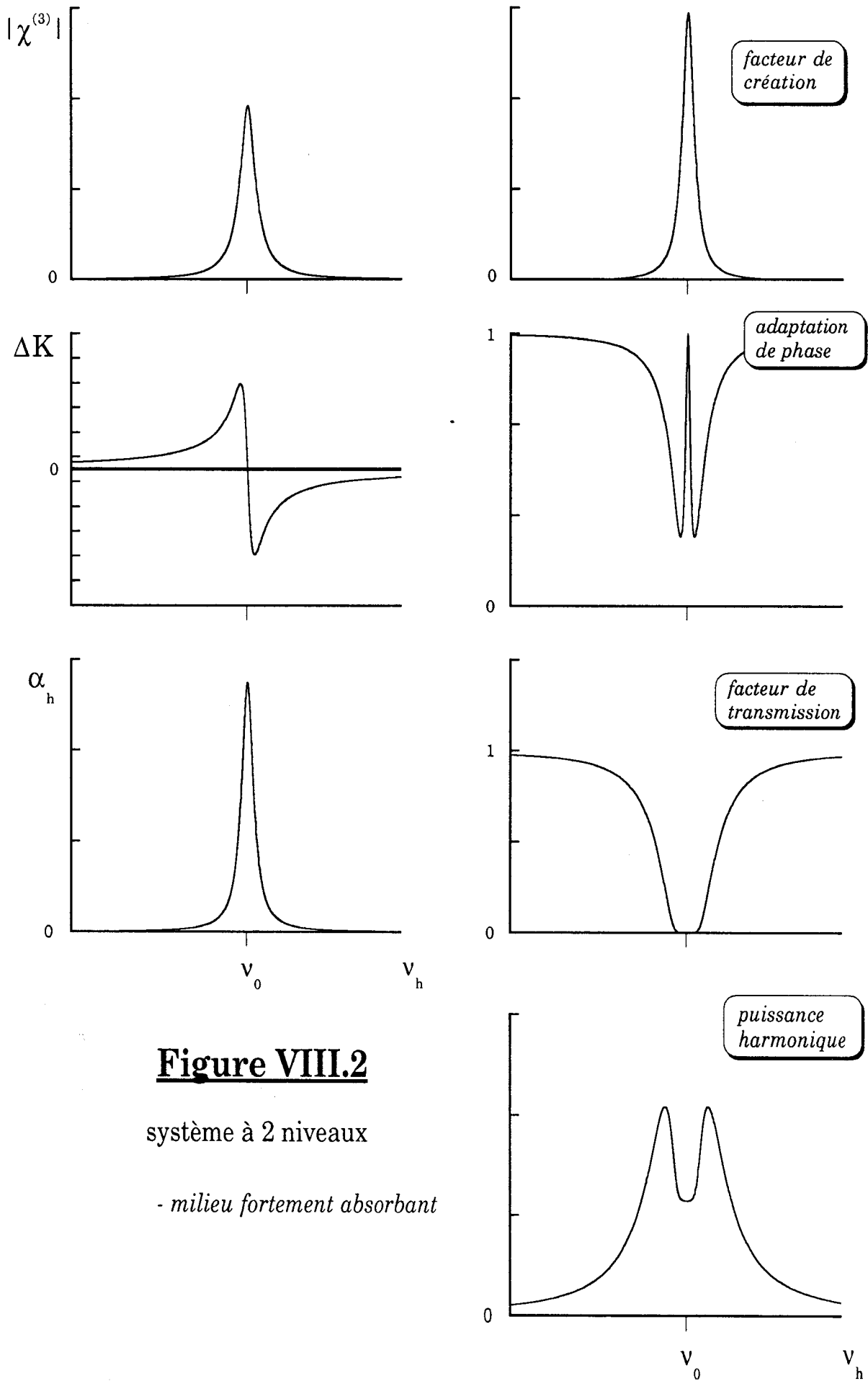


Figure VIII.2

système à 2 niveaux

- milieu fortement absorbant

VIII 1.3 Système moléculaire

Un milieu réel n'est jamais, à strictement parler, un milieu à deux niveaux. Le modèle à deux niveaux est toutefois bien adapté à la description des phénomènes de conversion résonnante à trois photons pour peu que $\chi_{NR}^{(1)} \ll \chi^{(1)}$ et $\chi_{NR}^{(3)} \ll \chi^{(3)}$. Ceci se produit lorsque les forces d'oscillateur sont réparties sur un petit nombre de transitions, c'est à dire typiquement un milieu atomique. Dans un milieu moléculaire, cette approximation ne se justifie plus : les forces de raie se répartissent entre transitions rovibroniques beaucoup plus nombreuses que les transitions électroniques. On décrira donc un milieu moléculaire en faisant intervenir des contributions non-résonnantes supposées constantes dans le voisinage de la transition résonnante.

Dans notre étude, on distinguera deux cas extrêmes qui se révèlent d'un intérêt particulier, c'est-à-dire :

- le cas où le paramètre d'accord de phase est nul ou voisin de zéro en dehors de la résonance :

$$\Delta K_{NR} \approx 0$$

- la cas où le paramètre d'accord de phase a une valeur non négligeable en dehors de la résonance :

$$\Delta K_{NR} \neq 0$$

De plus, pour chacun d'entre eux, on envisagera un comportement typique qui correspond à un milieu faiblement absorbant ou à un milieu fortement absorbant.

En ce qui concerne la susceptibilité non-linéaire $\chi^{(3)}$, la partie non-résonnante sera prise en compte par l'intermédiaire d'un terme $\chi_{NR}^{(3)}$ non négligeable.

VIII 1.3.1 Etude à ΔK non-résonnant nul

VIII 1.3.1.1 Milieu faiblement absorbant

On constate d'après la figure VIII.3 que, grâce à une bonne condition d'adaptation de phase et à une faible absorption, le signal harmonique subit une amplification par résonance via l'augmentation de la susceptibilité non-linéaire. La différence essentielle par rapport au système à deux niveaux est la présence d'une puissance harmonique en dehors de la raie de résonance.

VIII 1.3.1.2 Milieu fortement absorbant

Si le milieu devient fortement absorbant, le phénomène d'amplification se trouve gommé par la forte auto-absorption qui existe à résonance exacte. D'un point de vue quantitatif, on peut dire que la résonance a pour seul effet d'empêcher la conversion. Ce résultat est illustré figure VIII 4.

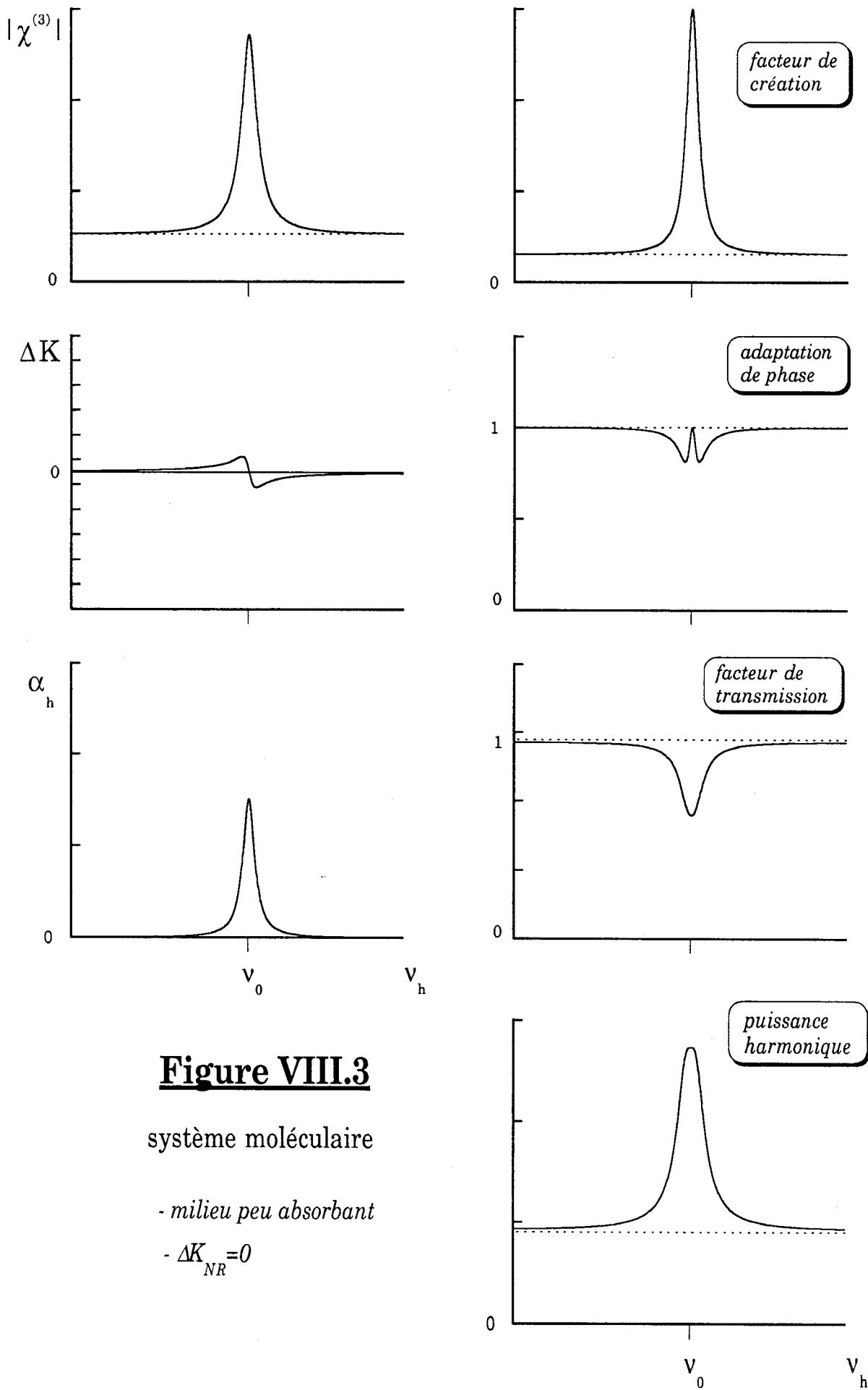


Figure VIII.3

système moléculaire

- milieu peu absorbant

- $\Delta K_{NR} = 0$

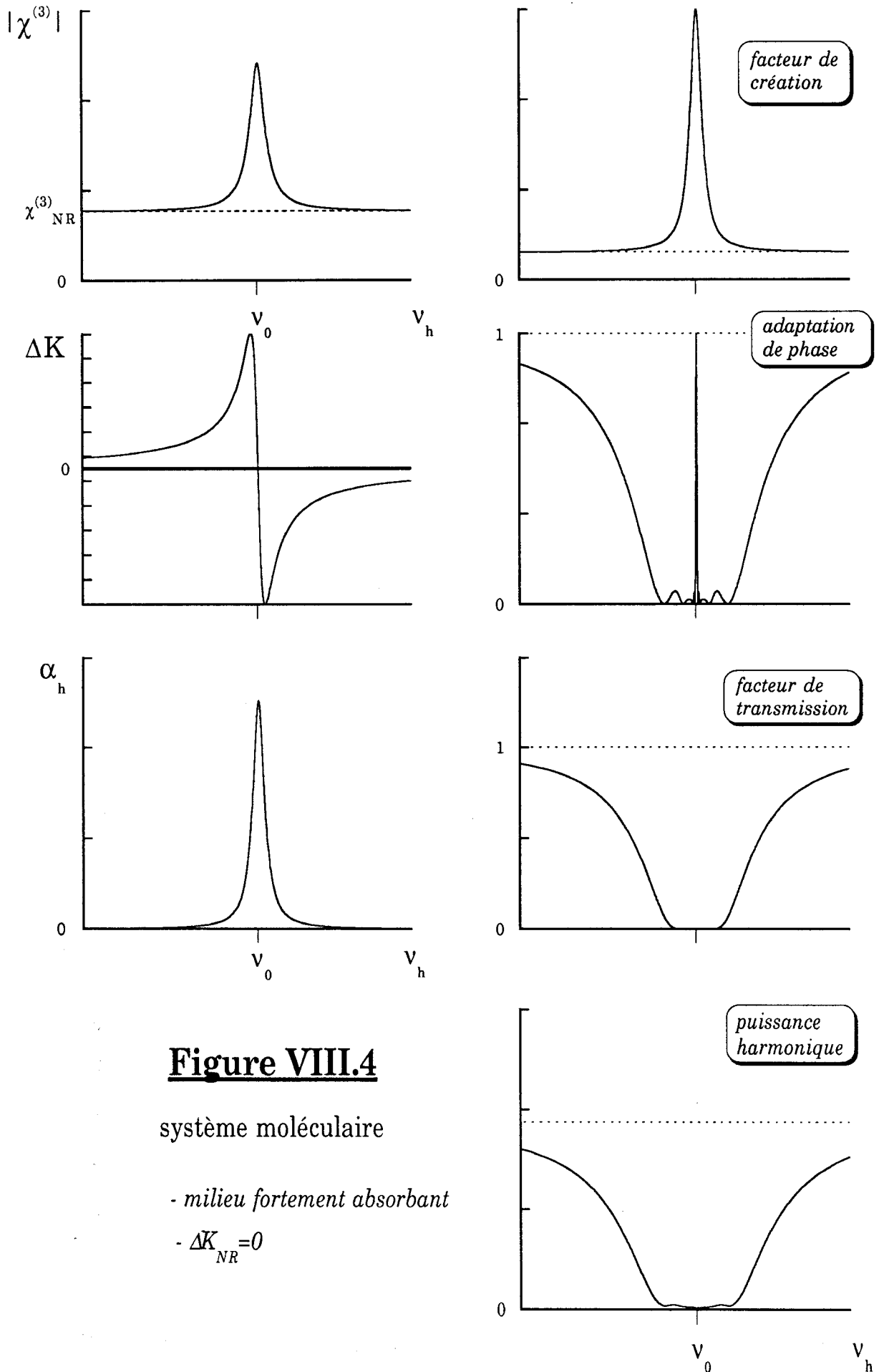


Figure VIII.4

systeme moléculaire

- milieu fortement absorbant

- $\Delta K_{NR} = 0$

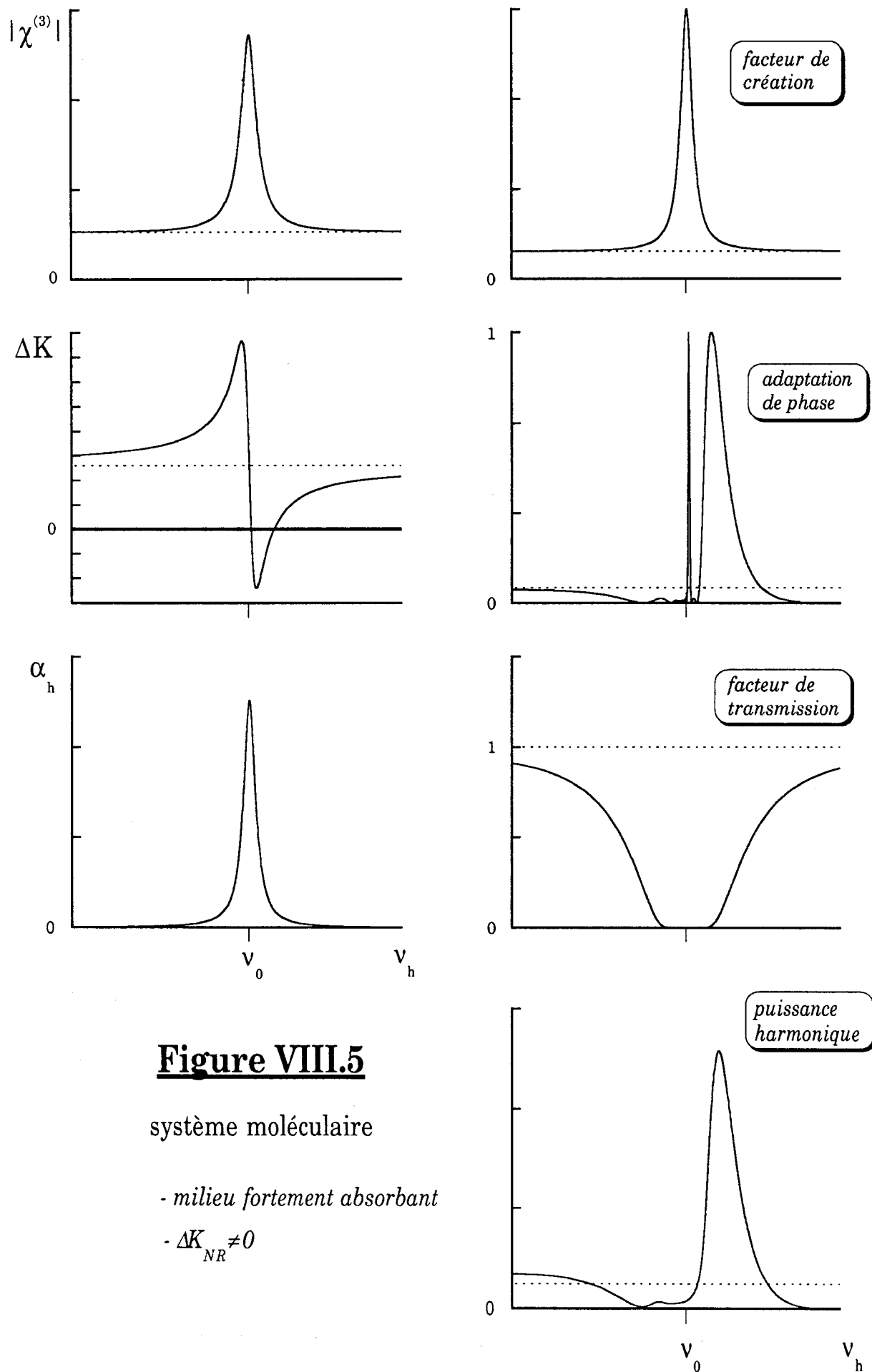


Figure VIII.5

système moléculaire

- milieu fortement absorbant

- $\Delta K_{NR} \neq 0$

VIII 1.3.2 Etude à ΔK non-résonnant non-nul

VIII 1.3.2.1 Milieu faiblement absorbant

Le fait d'ajouter une contribution non-résonnante au ΔK n'apporte rien dans la mesure où le faible moment de transition fait que le paramètre d'accord de phase varie peu, donnant ainsi lieu à des conditions d'adaptation de phase pratiquement constantes (figure VIII.3).

VIII 1.3.2.2 Milieu fortement absorbant

La présence d'un terme non-résonnant dans le paramètre d'accord de phase donne naissance à un second maximum dans la courbe d'adaptation de phase (figure VIII.5). A chacun de ces maxima devrait correspondre un pic de puissance harmonique décalé de la fréquence harmonique vers les hautes ou basses fréquences selon le signe de ΔK_{NR} (dans le cas représenté, il est positif). En l'absence d'absorption, le pic le plus proche de la fréquence de résonance serait le plus intense des deux; en effet il profiterait à la fois d'une parfaite adaptation de phase et d'une amplification par résonance de la susceptibilité non-linéaire. Le deuxième pic, n'étant dû qu'à une bonne adaptation de phase, on choisirait de le nommer pic d'adaptation de phase pour le démarquer du premier que l'on appellerait pic de résonance. Cependant, la forte absorption du milieu empêche toute émission au voisinage de la résonance et détruit ainsi l'hypothétique pic de résonance. Par contre, le pic d'adaptation de phase est présent puisqu'il n'est, quant à lui, pas touché par l'absorption.

Il faut souligner que le cas de la figure VIII.5 conduit à un résultat paradoxal. En effet, la conversion hors résonance se trouve déjà inefficace puisqu'on est dans des conditions de mauvaise adaptation de phase! La résonance ajoute, en plus, de l'auto-absorption qui va au détriment d'une bonne conversion! Pourtant, le résultat final n'en est pas moins que l'on assiste à une amplification de la puissance harmonique, car il existe des domaines où la résonance peut améliorer de beaucoup l'adaptation de phase sans provoquer une absorption rédhibitoire.

VIII 1.3.3 Conditions d'amplification et de saturation

Eu égard aux différentes situations envisagées, il apparaît que l'amplification par résonance à trois photons peut être réalisée :

- toujours, lorsque le milieu moléculaire est faiblement absorbant. L'amplification de la puissance harmonique s'effectue alors à résonance exacte avec une transition du milieu, tout comme dans le cas d'une résonance à deux photons.

- à condition que simultanément ΔK non-résonnant soit grand et ΔK total soit nul, lorsque le milieu moléculaire est fortement absorbant. Dans ce cas, l'amplification se produit en dehors de la transition résonnante là où, à la fois, les conditions d'adaptation de phase sont maximales et l'absorption suffisamment faible, en l'occurrence bien plus faible qu'à résonance exacte.

Si, par contre, dans un milieu fortement absorbant, ΔK non-résonant est voisin de zéro, on assiste alors au phénomène de saturation de la puissance harmonique.

VIII 2 INTERPRETATION QUANTITATIVE

La première partie de ce chapitre se voulait une approche à la compréhension de la résonance à trois photons. Le fait de s'intéresser tout d'abord à un système à deux niveaux, puis d'étendre ensuite notre raisonnement à un système moléculaire, nous a permis d'entrevoir progressivement les mécanismes physiques sous-jacents de la résonance à trois photons. Il est temps, désormais, de développer un calcul rigoureux de l'amplification par résonance à trois photons dans un milieu moléculaire. La finalité de ce travail sera de fournir une interprétation quantitative des spectres de triplement de fréquence par résonance à trois photons enregistrés en jet supersonique d'azote.

VIII 2.1 Construction du modèle théorique

VIII 2.1.1 Approximations adoptées

Le modèle théorique est fondé sur un certain nombre d'approximations.

En premier lieu, nous rappelons les approximations déjà utilisées au chapitre précédent et qui restent valables pour cette partie :

- à l'échelle des puissances laser mises en jeu, les effets de saturation autres que la saturation par auto-absorption sont négligés (pompage optique, effet Stark dynamique, etc...);
- l'atténuation du faisceau laser n'est pas prise en compte, celle-ci n'intervenant que dans les cas de conversion intense.

Ensuite vient une approximation qui se justifie pleinement si on limite l'étude à la catégorie d'expériences où le faisceau laser est modélisable par une onde plane; ceci signifie que l'on ne s'intéressera qu'aux conversions effectuées près de la tuyère, là où le paramètre confocal du faisceau est nettement plus grand que la largeur du jet.

Comme autre approximation, on négligera, à l'inverse de ce qui a été fait précédemment, l'inhomogénéité du jet le long de l'axe optique (schéma 2, chapitre IV). Pour traiter les faibles distances foyer laser-tuyère, un modèle qui se voudrait complet devrait d'une part, prendre en compte cette inhomogénéité transverse du jet (axiale pour le laser : axe "z") et d'autre part, ne devrait pas négliger l'inhomogénéité axiale du jet "vue" par le faisceau laser (transverse pour le laser : axe "x"). Le fait d'intégrer dans le modèle théorique les inhomogénéités axiale et transverse du jet alourdirait considérablement le calcul. Par conséquent, on associera à chaque distance X/D un milieu homogène dont la longueur L est donnée par la largeur du jet à cette distance et où la température T ainsi que la densité N correspondent aux valeurs sur l'axe du jet.

On peut estimer que la conséquence majeure d'une telle approximation sera de surévaluer, dans l'ensemble, la température et la densité du milieu.

Enfin, on traitera de manière différente les niveaux d'énergie appartenant à la bande vibrationnelle résonnante et l'ensemble des autres niveaux. Les contributions aux susceptibilités linéaire et non-linéaire des niveaux d'énergie de la bande vibrationnelle considérée, dites contributions résonnantes, seront déterminées explicitement pour chaque longueur d'onde harmonique. Par contre, l'influence des niveaux d'énergie situés hors de la bande résonnante sera considérée comme indépendante de la longueur d'onde harmonique et, de ce fait, dite non-résonnante.

VIII 2.1.2 Equation de propagation en milieu absorbant

Compte-tenu des approximations envisagées, on écrit à l'aide des relations (1.29), (4.1)-(4.5) l'équation de propagation d'une onde plane harmonique dans un milieu non-linéaire, homogène et absorbant :

$$\frac{\partial \mathcal{E}_h}{\partial z} = \frac{3i\omega}{8cn_f} \chi^{(3)} \mathcal{E}_f^3 e^{-i\Delta k z} - \frac{\alpha_h}{2} \mathcal{E}_h \quad (8.3)$$

Pour mémoire, on rappellera que ω est la pulsation de l'onde laser fondamentale, n_f et n_h sont les indices de réfraction des ondes fondamentale et harmonique, $\chi^{(3)}$ est la susceptibilité macroscopique non-linéaire d'ordre 3 à la fréquence

3ω , \mathcal{E}_f et \mathcal{E}_h sont les champs électriques des deux ondes et $\Delta K = K_h - 3K_f$ est le paramètre d'accord de phase. Le terme α_h , introduit dans l'expression (8.3), est le coefficient d'auto-absorption du milieu; il s'exprime en fonction de l'indice d'extinction κ_h à travers la relation : $\alpha_h = \frac{3\omega}{cn_h} \kappa_h$.

La solution de l'équation (8.3) a été donnée sous une forme analytique pour la première fois par Bey et al /1967/. En notant P_f la puissance du laser et P_h la puissance harmonique, on obtient en sortie du milieu non-linéaire de longueur L :

$$P_h = \frac{9\omega^2}{16\epsilon_0^2 c^4 n_f^3 n_h} P_f^3 \frac{|X^{(3)}|^2}{\left(\frac{\alpha_h}{2}\right)^2 + (\Delta K)^2} \quad (8.4)$$

$$(1 + e^{-\alpha_h L} - 2 e^{-\alpha_h L/2} \cos(\Delta KL))$$

En posant $\alpha_h = 0$, on peut s'assurer que l'on retrouve bien l'expression (4.11) établie au chapitre IV dans laquelle on avait totalement négligé l'absorption.

Scheingraber et al /1978/ ont utilisé cette expression afin de calculer la puissance de l'onde harmonique créée par résonance à deux photons dans une vapeur absorbante de strontium. En particulier, ils ont montré que, dans le cas limite d'un milieu optiquement épais ($\alpha_h L \gg 1$), la conversion devenait indépendante de la longueur L et de la densité N du milieu. De plus, lorsque les ondes sont adaptées en phase ($\Delta K = 0$), la puissance harmonique est alors uniquement gouvernée par le rapport de la susceptibilité microscopique à la section efficace d'absorption; la conver-

sion est le résultat d'une pure compétition entre émission et auto-absorption.

En ce qui nous concerne, les deux cas limites envisagés par Scheingraber et al ne sont pas, dans l'ensemble, représentatifs de nos expériences. En effet, notre milieu non-linéaire étant un gaz moléculaire, ΔK et α_h peuvent varier très fortement dès lors que la fréquence de l'onde harmonique évolue dans une bande d'absorption.

VIII 2.1.3 Description du calcul

La finalité de ce paragraphe étant de calculer le comportement de la puissance harmonique lorsque la fréquence de l'onde harmonique se déplace à l'intérieur d'une bande d'absorption, on doit exprimer la dépendance en fréquence de l'expression (8.4). Pour ce faire, les termes α_h , ΔK et $\chi^{(3)}$ sont à expliciter.

VIII 2.1.3.1 Expression des termes α_h et ΔK

Nous avons vu, expression (1.10), que le coefficient d'absorption α_h est relié à l'indice d'extinction κ_h du milieu; ce dernier est obtenu, d'après (2.26), à partir de la partie imaginaire de la susceptibilité linéaire macroscopique $\chi^{(1)}(3\omega)$.

Le paramètre d'accord de phase ΔK est, quant à lui, proportionnel à une différence d'indice $\left(\Delta K = \frac{3\omega}{c}(n_h - n_f)\right)$; d'après les mêmes relations (2.26), ces indices se déduisent de la partie réelle de la susceptibilité linéaire $\chi^{(1)}(3\omega)$.

Ceci étant, il est clair que l'on doit s'intéresser au calcul de dispersion de la susceptibilité linéaire à la fréquence 3ω . En s'appuyant sur l'expression (2.25), celle-ci peut s'écrire de manière à faire apparaître séparément les contributions non-résonnante $\chi_{NR}^{(1)}$ et résonnante $\chi_R^{(1)}$ de la susceptibilité macroscopique :

$$\chi^{(1)}(3\omega) = \chi_{NR}^{(1)} + \chi_R^{(1)}(3\omega) \quad (8.5)$$

avec

$$\chi_R^{(1)}(3\omega) = - \frac{1}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{J_f} \sum_{J_e} N_{J_f} S^{(1)}(J_e, J_f) \frac{|\langle \mu \rangle_{ef}|^2}{3\omega - \omega_{J_e J_f} + i\Gamma_{J_e J_f}} \quad (8.6)$$

Dans cette expression, $\omega_{J_e J_f}$ est une fréquence de transition de la bande résonnante entre l'état fondamental "f" et l'état excité "e", $\Gamma_{J_e J_f}$ est la largeur homogène de la transition, $\langle \mu \rangle_{ef}$ est l'élément de matrice du moment dipolaire électrique de la transition vibronique e-f, N_{J_f} ($= N\rho_{J_f}^{(0)}$) est la population relative d'un sous niveau Zeemann de l'état rotationnel fondamental J_f (cette quantité présente l'avantage, sur la population totale du niveau rotationnel, de ne pas faire apparaître la dépendance en J_f , celle-ci intervenant uniquement dans l'expression de $S^{(1)}$). Le terme $S^{(1)}(J_e, J_f)$ contient la dépendance rotationnelle de la susceptibilité linéaire résonnante entre un état ${}^1\Pi_{v', J_e}$ et un état ${}^1\Sigma_{v'', J_f}$ (états qui seront considérés par la suite). Partant de l'expression donnée par Hougen /1970/, $S^{(1)}$ peut s'écrire sous la forme :

$$S^{(1)}(J_e, J_f) = \frac{(2J_e+1)(2J_f+1)}{2} \begin{pmatrix} J_e & J_f & 1 \\ 1 & 0 & -1 \end{pmatrix}^2 \quad (8.7)$$

La partie non-résonnante de la susceptibilité, $\chi_{NR}^{(1)}(3\omega)$, prend en compte la présence des bandes de vibration autres que la bande résonnante et le continuum d'ionisation de la molécule.

VIII 2.1.3.2 Expression du terme $\chi^{(3)}(3\omega)$

On a fourni, formule (2.40), l'expression $\chi_{R3}^{(3)}$ de la susceptibilité non-linéaire d'ordre trois pour une résonance isolée à trois photons. Dans le cas d'une molécule, une bande d'absorption donnant lieu à de multiples résonances, nous écrirons $\chi^{(3)}(3\omega)$ de la façon suivante :

$$\chi^{(3)}(3\omega) = \sum_{J_e J_f} \chi_{R3}^{(3)}(3\omega) + \chi_{NR}^{(3)} \quad (8.8)$$

Ce qui, en ayant soin d'introduire la dépendance rotationnelle de $\chi^{(3)}$ et d'isoler le terme résonnant, donne d'après (2.40) :

$$\chi^{(3)}(3\omega) = \frac{1}{\hbar^3 \epsilon_0} \sum_{J_e J_f} \left(N_{J_f} S_{R3}^{(3)}(J_e, J_f) \frac{\langle \mu \rangle_{fe}}{\Delta_{J_e J_f} - i\Gamma_{J_e J_f}} \right. \\ \left. \sum_{\beta \gamma} \frac{\langle \mu \rangle_{e\gamma} \langle \mu \rangle_{\gamma\beta} \langle \mu \rangle_{\beta f}}{(\omega_{J_\beta J_f} - \omega) (\omega_{J_\gamma J_f} - 2\omega)} \right) + \chi_{NR}^{(3)} \quad (8.9)$$

où β, γ sont les états intermédiaires et $\Delta_{J_e J_f} = \omega_{J_e J_f} - 3\omega$ représente l'écart à résonance.

Dans la formule, écrite sous cette forme, le terme de la deuxième ligne englobe toutes les transitions non-résonnantes; il est peu dépendant de la pulsation 3ω .

La dépendance rotationnelle du $\chi^{(3)}$ pour une transition résonnante à trois photons ${}^1\Pi - {}^1\Sigma$ s'exprime de la même manière que dans le cas du $\chi^{(1)}$ /Aguillon 1989³/, c'est-à-dire :

$$S_{R3}^{(3)}(J_e, J_f) = \frac{(2J_e+1)(2J_f+1)}{4} \left(\begin{array}{ccc} J_e & J_f & 1 \\ 1 & 0 & -1 \end{array} \right)^2 \quad (8.10)$$

Le calcul du facteur $3J$, exprimé ci-dessus, fait apparaître l'existence de trois branches rotationnelles selon que la valeur de $\Delta J = J_e - J_f$ vaut -1, 0 ou 1; il fixe les règles de sélection sur les transitions permises. Ainsi, pour une résonance à trois photons entre un état ${}^1\Pi$ et un état ${}^1\Sigma$, les seules transitions permises R ($\Delta J = +1$), Q ($\Delta J = 0$) et P ($\Delta J = -1$) auront des susceptibilités non-linéaires proportionnelles à :

$$\begin{aligned} S_R^{(3)} &= \frac{(J_f + 2)}{15} \\ S_Q^{(3)} &= \frac{(2J_f + 1)}{15} \\ S_P^{(3)} &= \frac{(J_f - 1)}{15} \end{aligned} \quad (8.11)$$

Pour terminer, il nous reste à donner l'expression de la densité d'état résonnant N_{J_f} et de la longueur L du milieu non-linéaire.

VIII 2.1.3.3 Expression des quantités N_{j_f} et L

Le modèle de la détente isentropique nous fournit l'expression de la densité d'état résonnant N_{j_f} sur l'axe du jet. Pour l'azote, celle-ci a été établie au chapitre précédent (expression 7.6).

La longueur L du milieu non-linéaire, qui correspond dans notre expérience à la largeur du jet au X/D considéré, est calculée, de même qu'au chapitre IV, à partir de l'expression (3.25).

VIII 2.2 Résultats

Le calcul exact permet de retrouver les résultats établis qualitativement au paragraphe précédent (figure VIII.1 à figure VIII.5).

On présente, figure VIII.6, un spectre de triplement de fréquence résonnant à trois photons sur la transition $b^1\Pi_u(v'=6) - X^1\Sigma_g^+(v''=0)$ de l'azote (cette transition est indiquée figure VII.1). Cet enregistrement est effectué avec le laser focalisé très près de la tuyère ($X/D=0,2$), là où le traitement théorique en ondes planes est justifié.

Sur la même figure se trouve la simulation numérique qui résulte du modèle théorique établi précédemment et qui utilise les données spectroscopiques de Carroll et Collins /1969/. Notons que, pour tenir compte de la présence du milieu extérieur à la "zone de silence", on a dû ajouter dans le modèle théorique un terme qui rend compte de l'absorption du rayonnement harmonique par le gaz résiduel à une température de 300 K.

théorie

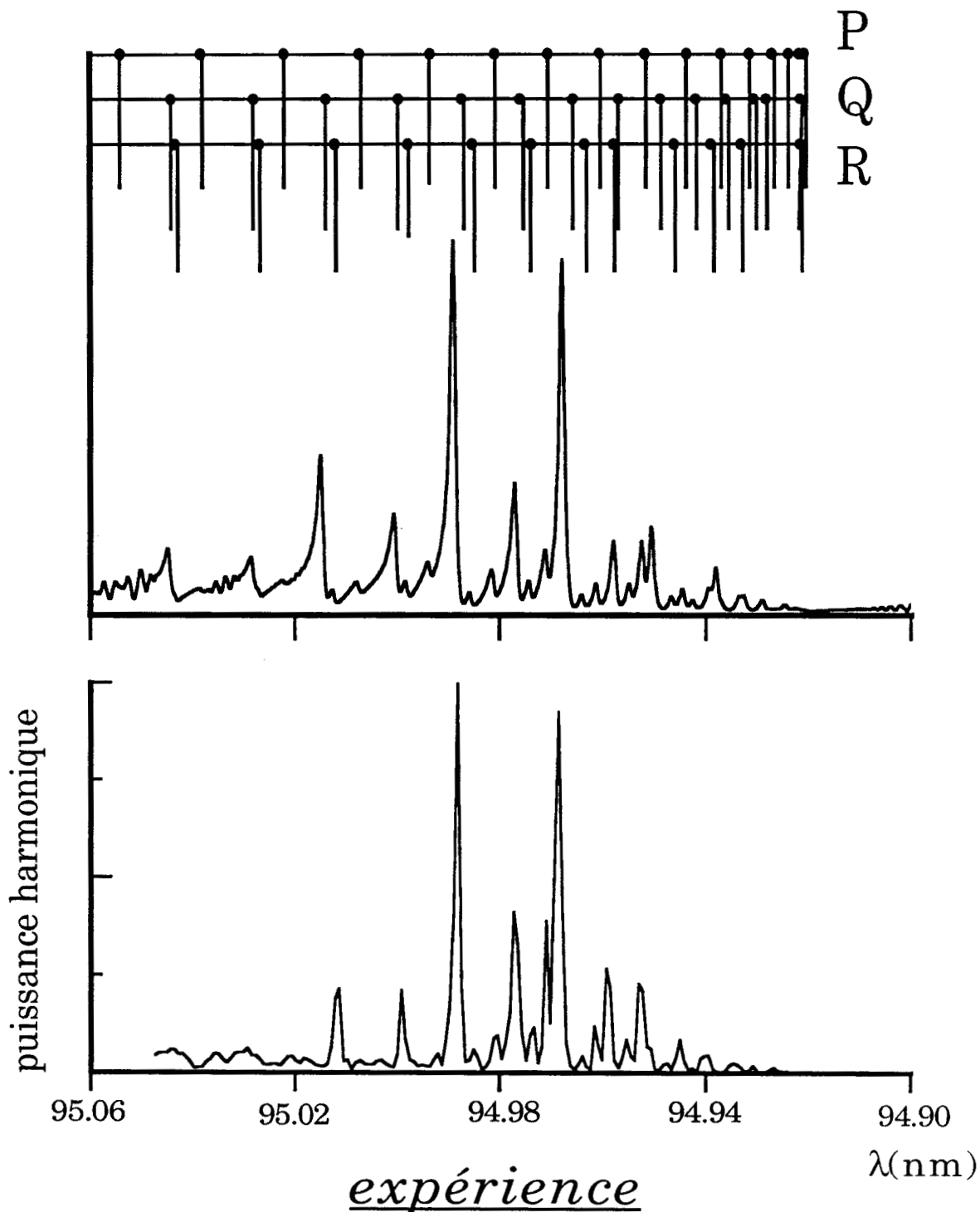


Figure VIII.6

Comparaison entre un spectre de résonance à trois photons, enregistré en jet à $X/D=0,2$ ($P_0=1,2$ bar, $P_1=2 \cdot 10^{-2}$ torr, $D=450 \mu\text{m}$), et une simulation numérique basée sur le modèle théorique.

A première vue, aussi bien pour le spectre théorique que pour le spectre expérimental - lesquels d'ailleurs sont en très bon accord l'un avec l'autre -, on remarque que le spectre de conversion apparaît en amplification (émission) et que les maxima d'émission harmonique sont décalés par rapport aux résonances. A la lumière des considérations précédentes, ceci laisse à penser que, d'une part, le milieu est très absorbant et que, d'autre part, le ΔK non-résonnant est important.

Afin de mieux comprendre l'aspect plutôt inhabituel de ce spectre de triplement de fréquence, il est préférable d'observer le comportement de la puissance harmonique en fonction des termes qui sont à l'origine de la conversion (expression 8.4). On propose cette démarche figure VIII.7 où l'on a calculé l'évolution du paramètre d'accord de phase ΔK et de la susceptibilité non-linéaire $\chi^{(3)}$ à l'intérieur de la bande d'absorption. Le terme d'absorption α_h , quant à lui, n'est pas représenté puisque sa dépendance en longueur d'onde est semblable à celle du $\chi^{(3)}$. Avant de discuter de cette figure, il est préférable d'explicitier la manière dont ont été calculées les différentes quantités :

- le terme résonnant de la susceptibilité non-linéaire $\chi^{(3)}(3\omega)$ a été calculé à partir des expressions (8.9) et (8.10) en prenant en compte tous les états rovibroniques de la bande de résonance liés aux trente niveaux rotationnels les plus peuplés de l'état fondamental. Dans ce calcul, les largeurs homogènes Γ ont été prises égales à une même valeur, celle qui correspond à la résolution expérimentale de nos mesures.

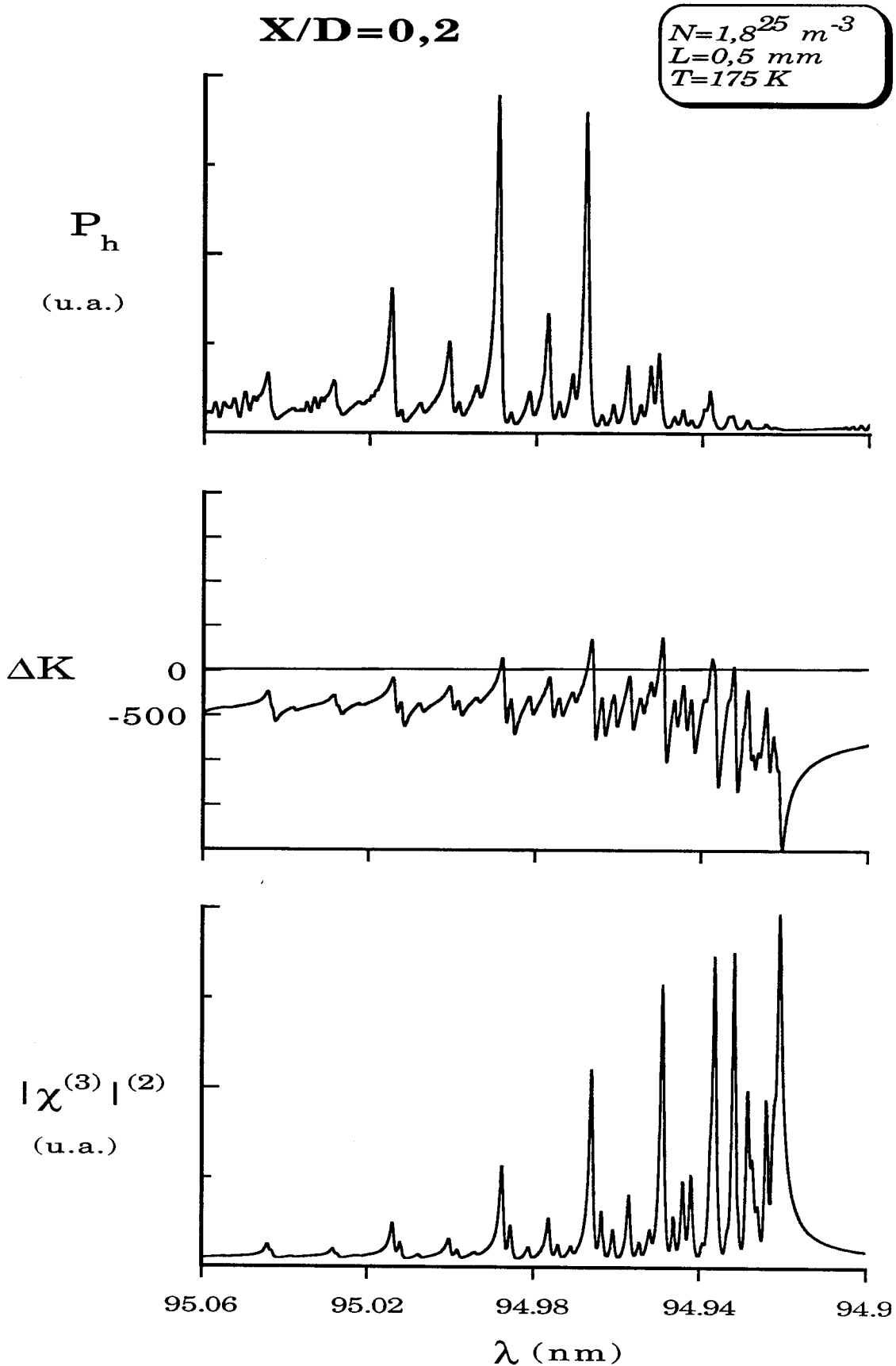


Figure VIII.7

Calcul de l'évolution de P_h , ΔK et $\chi^{(3)}$ à l'intérieur de la bande de résonance à trois photons. La densité N , la longueur L et la température T du jet correspondent aux valeurs isentropiques calculées pour $X/D=0,2$

La contribution non-résonnante du $\chi^{(3)}$ (au sens de la bande vibrationnelle considérée), décrite par le second terme de l'expression (8.9), étant quasi-indépendante de la fréquence 3ω , a été ajustée à une valeur unique et à quelques pourcents de la partie résonnante de façon à obtenir le meilleur accord théorie-expérience. Il faut noter que cette contribution non-résonnante, qui explique la présence du fond continu sur lequel la susceptibilité non-linéaire évolue (figure VIII.7), agit en fait très peu sur l'allure des spectres et a pour seul effet de rehausser légèrement la puissance harmonique, de préférence dans la partie "rouge" du spectre (grandes longueurs d'onde), là où l'absorption est la plus faible.

- la partie résonnante de la susceptibilité linéaire $\chi^{(1)}(3\omega)$ a été calculée de la même façon que pour la susceptibilité non-linéaire. Par contre, un ordre de grandeur du terme non-résonnant $\chi_{NR}^{(1)}(3\omega)$ a été estimé, à partir des données de Görtler et al /1977/, en considérant les transitions permises vers l'état fondamental sur un intervalle de 400 nm autour de la bande de résonance considérée. Cette quantité, par ailleurs négative étant donné qu'il existe des transitions extrêmement intenses dans la partie rouge de la bande (6-0) (figure VII.1), a été ajustée une fois pour toutes autour de sa valeur estimée. Celle-ci se manifeste au niveau du paramètre d'accord de phase ΔK par une contribution négative qui vient s'ajouter à celle de la bande elle-même et qui constitue, aux grandes longueurs d'onde et loin de la tête de bande, une limite asymptotique (figure VIII.7).

théorie

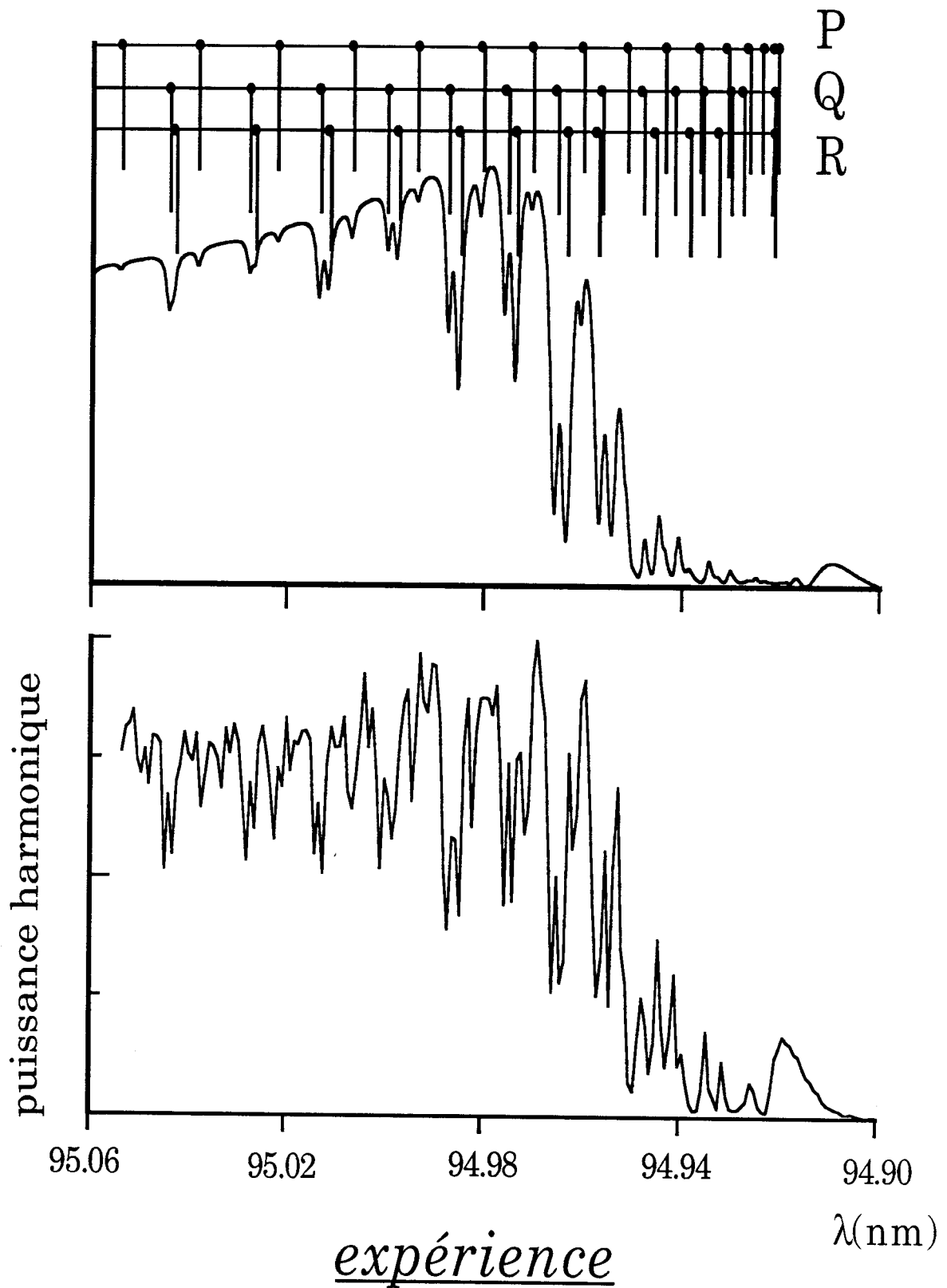


Figure VIII.8

Comparaison entre un spectre de résonance à trois photons, enregistré en jet à $X/D=3,5$ ($P_0=1,2$ bar, $P_1=2 \cdot 10^{-2}$ torr, $D=450 \mu\text{m}$), et une simulation numérique basée sur le modèle théorique.

En considérant la figure VIII.7, on constate - étant donné la forte intensité de la bande vibrationnelle /Carter 1972/, /Gürtler et al 1977/ et la densité très importante du milieu (ΔK non-résonnant grand) - que la conversion harmonique s'effectue en amplification en dehors de la tête de bande dans une région où l'auto-absorption est faible et où les conditions d'adaptation de phase sont favorables ($\Delta K \approx 0$). Par rapport à la résonance à deux photons, pour laquelle l'intensité harmonique suit l'évolution de $|\chi^{(3)}(3\omega)|^2$, la résonance à trois photons déplace l'émission du signal harmonique dans la partie "rouge" de la bande, là où les niveaux rotationnels sont très dépeuplés.

Un autre spectre est représenté figure VIII.8; celui-ci est enregistré plus loin de la tuyère ($X/D=3,5$) et donc à une température plus froide et à une densité bien plus faible que dans le cas précédent.

On peut s'étonner de voir que l'évolution spectrale de la puissance harmonique est très différente de celle du spectre qui précède, en particulier avec la formation d'un "plateau". L'apparition de ce plateau tient au fait que, la densité du milieu ayant diminué, les conditions d'adaptation de phase ne sont plus les mêmes. En effet, on voit, d'après la figure VIII.9, que le milieu est tel que les conditions d'accord de phase sont, aux grandes longueurs d'onde, à la fois constantes et meilleures dans le cas présent.

La valeur du ΔK non-résonnant étant voisine de zéro, on constate que les résonances du milieu apportent une saturation de la puissance harmonique et qu'il n'y a aucune amplification du signal harmonique; le spectre de conversion ressemble à un spectre d'absorption.

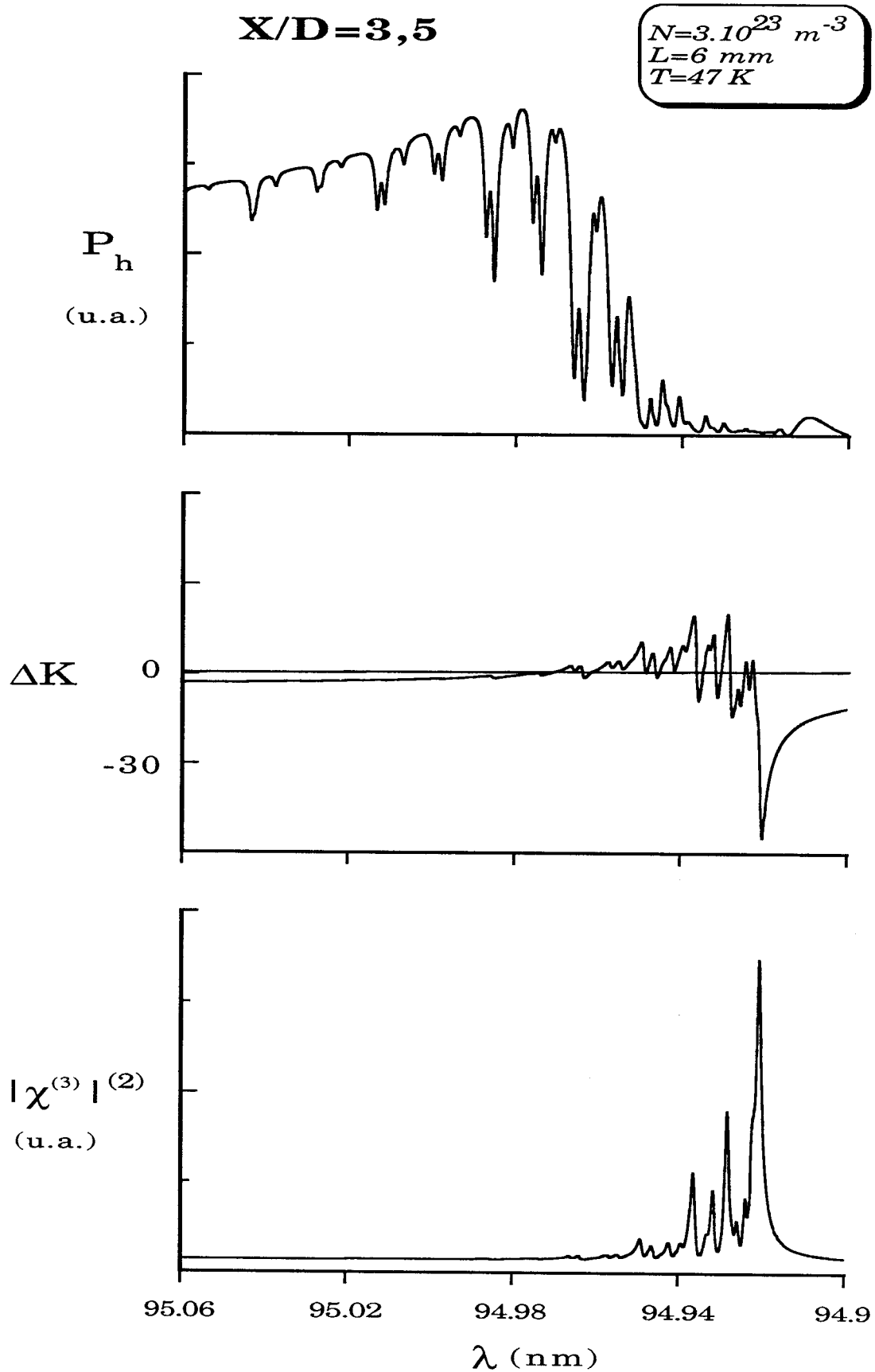


Figure VIII.9

Evolution de P_h , ΔK et $\chi^{(3)}$ calculée à l'intérieur de la bande de résonance à trois photons pour $X/D=3,5$.

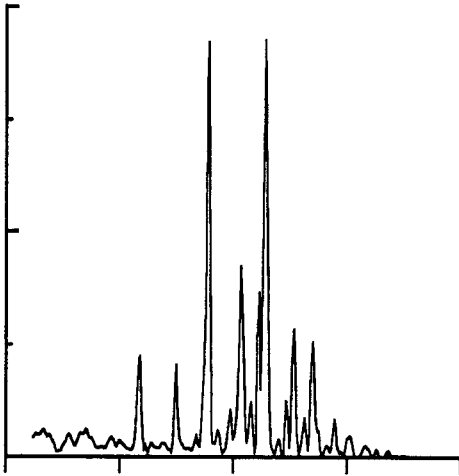
Par ailleurs, on remarquera que le "plateau" possède, aux grandes longueurs d'onde, une structure qui est due non pas à l'auto-absorption, puisque celle-ci apparaîtrait à une température beaucoup trop élevée pour le jet, mais plutôt à l'absorption de l'onde harmonique par le gaz résiduel (à une température de 300 K) qui entoure la "zone de silence".

On a effectué d'autres enregistrements pour des distances foyer laser-tuyère bien plus importantes. Par exemple, on peut citer le spectre de la figure VII.5, enregistré à $X/D=9$, qui avait été présenté dans le chapitre VII à juste titre comme un pic d'adaptation de phase et qui est, de manière plus précise, un spectre de résonance à trois photons. Ce spectre, comme tous ceux enregistrés au-delà de $X/D=9$, étant réalisé en régime de moyenne ou forte focalisation, n'est pas rigoureusement interprétable à partir de notre modèle théorique. Cependant, il est évident que, si les conditions d'adaptation de phase ne sont plus les mêmes en faisceau focalisé, les mécanismes de saturation par auto-absorption doivent eux, rester inchangés. Ainsi pour les régimes de focalisations intermédiaires ou de fortes focalisations, la conversion harmonique doit se réaliser en dehors des résonances et pour un paramètre ΔK non plus égal à zéro mais cette fois négatif (paragraphe IV 1.2.4). Ceci explique la raison pour laquelle on voit apparaître, figure VII.5, le signal harmonique dans la partie "bleue" de la tête de bande (6-0), dans une région spectrale très étroite où la dispersion d'indice est anormale et, par conséquent, où ΔK est négatif. Notons d'ailleurs que l'on assiste déjà à la naissance du pic d'adaptation de phase dans le spectre de la figure VIII.8, toutefois légèrement décalé par rapport à celui du spectre calculé ce qui montre bien que le modèle de l'onde plane commence à être mis en défaut.

EXPERIENCE

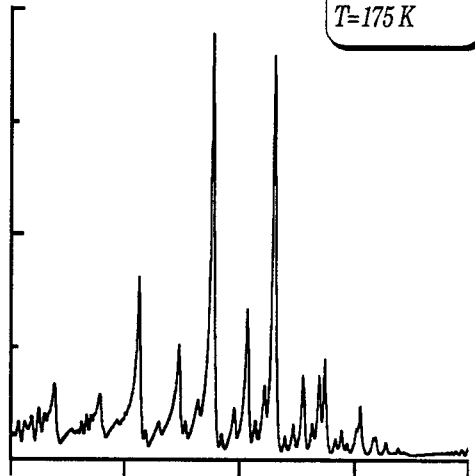
THEORIE

$X/D=0,2$

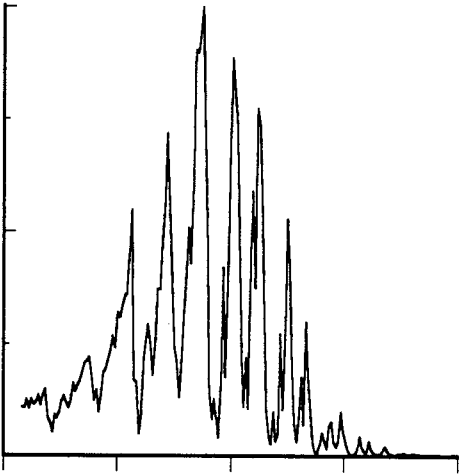


$T=175\text{ K}$

$N=1,8^{25}\text{ m}^{-3}$
 $L=0,5\text{ mm}$
 $T=175\text{ K}$

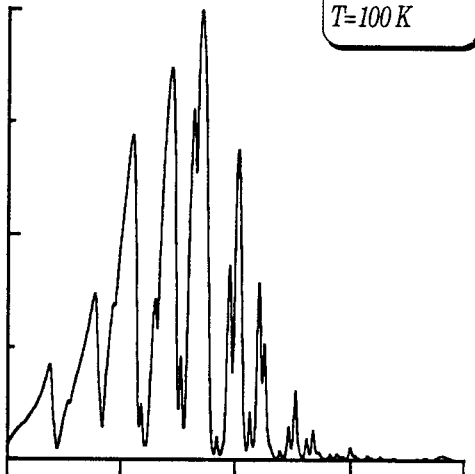


$X/D=1,5$

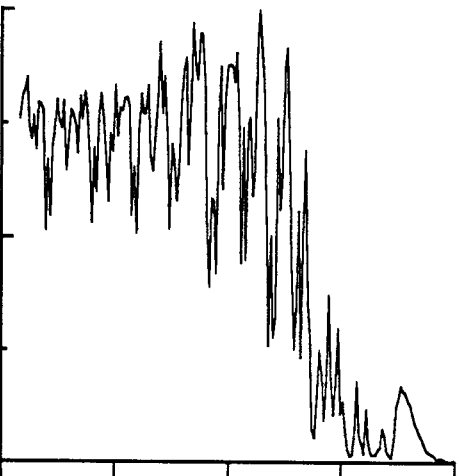


$T=100\text{ K}$

$N=1,8^{24}\text{ m}^{-3}$
 $L=3\text{ mm}$
 $T=100\text{ K}$

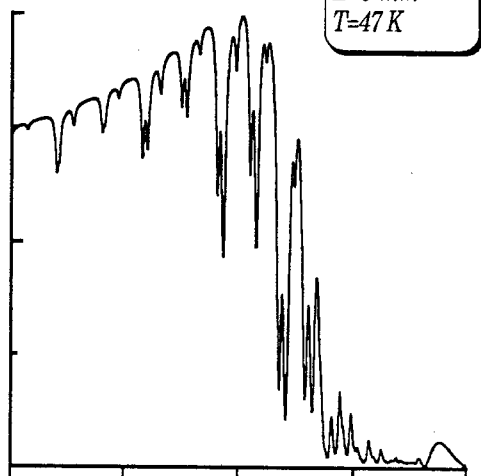


$X/D=3,5$



$T=47\text{ K}$

$N=3 \cdot 10^{23}\text{ m}^{-3}$
 $L=6\text{ mm}$
 $T=47\text{ K}$



95.06 95.02 94.98 94.94 94.9

$\lambda\text{ (nm)}$

Figure VIII.10

Comparaison expérience/théorie des spectres de résonance à trois photons enregistrés près de la tuyère du jet.

En résumé, dans le cas de la bande étudiée, pour laquelle ΔK_{NR} est négatif, on peut dire que, quelle que soit la distance foyer laser-tuyère X/D , l'essentiel de la conversion apparaît toujours hors résonance et dans un domaine spectral se trouvant à l'extérieur des transitions intenses (hors de la tête de bande, c'est-à-dire pour des transitions qui font intervenir des niveaux rotationnels de l'état fondamental (très faiblement peuplés). Ainsi, les enregistrements réalisés au voisinage de la tuyère correspondent à une émission harmonique située principalement dans la partie "rouge" de la tête de bande, tandis que ceux effectués loin de la tuyère se rapportent à une émission harmonique plutôt réalisée dans la partie "bleue". Cette dérive en fréquence est pilotée par la condition d'accord de phase qui impose une valeur nulle de ΔK près de la tuyère (faisceaux collimatés), et une valeur négative de ΔK loin de la tuyère (faisceaux focalisés).

On clôture ce chapitre par la figure VIII.10 où est représentée une évolution caractéristique des spectres expérimentaux et théoriques de triplement de fréquence avec résonance à trois photons. On constate, malgré la très grande dynamique dans l'évolution de ces spectres, que notre modèle théorique rend parfaitement compte des résultats obtenus. Cet accord expérience/théorie est d'autant plus impressionnant que seul deux paramètres ont été ajustés dans le modèle théorique en adoptant une valeur unique pour tous les spectres.

Le contenu de ce chapitre fait l'objet d'un article en cours de rédaction /Faucher 1991/.

VIII 3 CONCLUSION

Cette partie a permis l'interprétation des expériences de triplement de fréquence lorsque l'onde harmonique est en résonance à trois photons avec une bande vibrationnelle intense de l'azote. Grâce à une étude quantitative, on a pu cerner les divers effets que provoque l'auto-absorption sur l'allure d'un spectre de résonance à trois photons. Il ressort de cette étude que la quantité qui gouverne la conversion - laquelle résulte d'une compétition entre émission et auto-absorption - est essentiellement le facteur d'adaptation de phase et plus particulièrement la valeur du paramètre d'accord de phase dû aux contributions des états situés en dehors de la bande vibrationnelle résonnante considérée.

CONCLUSION

CONCLUSION

La motivation de ce travail était d'effectuer une analyse quantitative du phénomène de triplement de fréquence dans l'extrême ultra-violet, avec ou sans résonance, le milieu non-linéaire étant un jet libre supersonique d'azote. On a ainsi effectué la génération de troisième harmonique sur un domaine spectral très large. (104500 cm^{-1} - 107300 cm^{-1}) incluant plusieurs zones de résonance à deux ou trois photons.

L'analyse quantitative n'a pu être réalisée qu'en surmontant un certain nombre d'obstacles dont les plus importants furent :

- la faible qualité géométrique du faisceau laser, qui compte un grand nombre de modes dont la répartition nous est inconnue;
- le manque de données relatives aux indices de réfraction et aux sections efficaces d'absorption dans le domaine des fréquences XUV considéré;
- la difficulté de rendre compte des effets combinés de la largeur spectrale finie du laser et de la cohérence du milieu non-linéaire qui évolue très fortement au cours de la détente.

Pour s'en affranchir, on a déterminé, par des considérations d'ordre théorique, les conditions dans lesquelles il est légitime de modéliser le faisceau laser multimode par un faisceau laser TEM_{00} . Ceci étant, on a pu définir les conditions expérimentales qui permettent d'interpréter les résultats malgré le manque de connaissance des indices de réfraction et des sections efficaces d'absorption. Enfin, un modèle simple a permis d'évaluer dans quel cas les effets de cohérence sur la réponse non-linéaire du milieu étaient dominés par la seule largeur spectrale du laser. C'est l'utilisation d'un jet supersonique, en tant que milieu non-linéaire, qui a permis de se placer dans les situations expérimentales adéquates.

Nos expériences effectuées sans résonance ou avec résonance à deux photons se sont révélées suffisamment précises et leur interprétation assez directe pour permettre d'effectuer un diagnostic sur l'état interne du milieu non-linéaire lui-même à partir des spectres de troisième harmonique : on a ainsi pu mesurer la densité et la distribution rotationnelle sur l'axe du jet.

Dans le cas de la résonance à trois photons, des effets surprenants de compétition entre émission et autoabsorption de l'onde harmonique ont été mis en évidence. On a porté un intérêt tout particulier à leur interprétation, en se référant d'abord à un modèle élémentaire favorisant la compréhension des phénomènes, puis en développant un calcul complet rendant compte de manière précise de l'allure déconcertante des spectres expérimentaux. Il a ainsi été montré que ce sont les variations amples et rapides du facteur d'adaptation de phase qui sont responsables de l'amplification observée du signal dans un milieu cependant fortement absorbant.

REFERENCES
BIBLIOGRAPHIQUES

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Abramowitz et Stegun 1970

M. Abramowitz and I. A. Stegun, "Handbook of Mathematical Functions", Edited by M. Abramowitz and I. A. Stegun, Dover Publications, Inc, New York, 1970.

Adamson et Nicholls 1959

T. C. Adamson and J. A. Nicholls, Journal of the Aerospace Science, 26, 16 (1959).

Agranovich et Ginzburg 1966

V. M. Agranovich, V. L. Ginzburg, "Spatial Dispersion in Crystal and the Theory of Excitons", Interscience Publishers, New York, 1966.

Aguillon et al 1987

F. Aguillon, A. Lebéhot, J. Rousseau, and R. Campargue J. Chem. Phys., 86 (10), 5246 (1987).

Aguillon 1989¹

F. Aguillon, Thèse de Doctorat, Villetaneuse, 1989.

Aguillon 1989²

F. Aguillon, IEEE J. Quantum Electron., QE-25, 917 (1989).

Aguillon 1989³

F. Aguillon, IEEE J. Quantum Electron. QE-25, 1947 (1989).

Anikin et al 1976¹

V. I. Anikin, S. A. Akhmanov, K. N. Drabovich, and A. N. Dubovik, Sov. J. Quantum Electron., 6, 1096 (1976).

Anikin et al 1976²

V. I. Anikin, V. D. Gora, K. N. Drabovich, and A. N. Dubovik, Sov. J. Quantum Electron., 6, 174 (1976).

Armstrong et al 1962

J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, Phys. Rev., 127, 1918 (1962).

Ashkenas et Sherman 1966

H. Ashkenas and F. S. Sherman, "Rarefied Gas Dynamics", Vol. 2, p. 84, J. H. De Leeuw ed., Academic Press, New York, 1966.

Asselin et al 1991

P. Asselin, C. Meis, A. Lebéhot, O. Faucher, and R. Campargue, "17 th International Symposium Rarefied Gas Dynamics", Aix la Chapelle, RFA, à paraître (1991).

Bethune et Rettner 1987

D. S. Bethune and C. T. Rettner, IEEE J. Quantum Electron., QE-23, 1348 (1987).

Bey et al 1967

P. Bey, F. Giuliani, and H. Rabin, Phys. Rev. Lett.,
19, 819 (1967).

Bier et Schmidt 1961

K. Bier and B. Schmidt, Z. Angew. Phys., 13, 493
(1961).

Bjorklund 1975

G. C. Bjorklund, IEEE J. Quantum Electron., QE-11,
287 (1975).

Blazewics et al 1986

P. R. Blazewics, M. G. Payne, W. R. Garrett, and
John C. Miller, Phys. Rev. A, 34, 5171 (1986).

Bloembergen 1965

N. Bloembergen, "Nonlinear Optics",
Benjamin/Cummings Publishing Company Inc.,
Massachusetts, 1965.

Bokor et et al 1983

J. Bokor, P. H. Bucksbaum, and R. R. Freeman,
Opt. Lett., 8, 217 (1983).

Bonin et McIlrath 1985

Keith D. Bonin and T. J. McIlrath, J. Opt. Soc. Am. B,
2, 527 (1985).

Bruhat 1962

G. Bruhat, "Cours de Physique Générale :
Thermodynamique", 5ème édition, Masson, Paris, 1962.

Butcher 1964

P. N. Butcher, "NonLinear Optical Phenomena", Engineering Experiment Station, Ohio State University, 1964.

Campargue 1964

R. Campargue, Rev. Sci. Instrum., 35, 111 (1964).

Campargue 1970¹

R. Campargue, Thèse de Doctorat d'Etat, Paris , 1970.

Campargue 1970²

R. Campargue, J. Chem. Phys., 52, 1795 (1970).

Campargue et Breton 1971

R. Campargue et J. P. Breton, Entropie, 42, 18 (1971).

Campargue et Lebéhot 1974

R. Campargue and A. Lebéhot, "Rarefied Gas Dynamics", Vol. 2, C-11, M. Becker et M. Fiebig ed., DFVLR Press, Porz-Wahn, RFA, 1974.

Campargue et al 1979

R. Campargue, M. A. Gaveau, A. Lebéhot, J. C. Lemonnier, and D. Murette, "7 th Symposium on Molecular Beams", Riva del Garda, Italie, 1979.

Campargue 1984

R. Campargue, J. Phys. Chem., 88, 4466 (1984).

Campargue et al 1984

R. Campargue, M. A. Gaveau, and A. Lebéhot, "Rarefied Gas Dynamics", edited by H. Oguchi (University of Tokyo press, 1984), vol. II, p. 551.

Campargue et al 1989

R. Campargue, O. Faucher, and F. Aguillon,
"12 th International Symposium on Molecular Beams",
Book of Abstracts, Invited Paper I.4, Perugia, Italy,
1989.

Carroll et Collins 1969

P. K. Carroll and C. P. Collins, Can. J. Phys., 47,
563 (1969).

Carter 1972

V. L. Carter, J. Chem. Phys. 56, 4195 (1972).

Chu et al 1989

Tran Ba Chu, A. Bouvier, A. J. Bouvier, and P. Crozet,
J. Phys. France, 50, 201 (1989).

Cohen-Tannoudji et al 1973

C. Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Laloë,
"Mécanique Quantique", Tome 1, Herman, Paris, 1973.

Compton et Miller 1985

R. N. Compton and John C. Miller, J. Opt. Soc. Am. B,
2, 355 (1985).

Dekoven et al 1981

B. M. Dekoven, D. Levy, H. H. Harris, B. R. Zegarski,
and T. A. Miller, J. Chem. Phys. 74, 5659 (1981).

Drawin 1990

S. Drawin, Thèse de Doctorat, Villetaneuse, 1990.

Dunoyer 1911

L. Dunoyer, Le Radium, 8, 142 (1911).

Dupeyrat 1979

G. Dupeyrat, Thèse de Doctorat d'Etat, Université de Paris VI, 1979.

Faubel et Weiner 1981

M. Faubel, and E. R. Weiner, J. Chem. Phys. 75, 641 (1981).

Faucher et Campargue 1990

O. Faucher et R. Campargue, "Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique", COLOQ 1, Villetaneuse, édité dans les Annales de Physique, 15, 193 (1990).

Faucher 1991

O. Faucher, article à soumettre.

Faucher et al 1991

O. Faucher, F. Aguillon, A. Lebéhot, and R. Campargue "17 th Symposium on Rarefied Gaz Dynamics", Aix la Chapelle, RFA, à paraître (1991).

Faucher et al 1991

O. Faucher, F. Aguillon, and R. Campargue, J. Chem. Phys., à paraître (1991).

Fenn et Deckers 1963

J. B. Fenn and J. Deckers, "Rarefied Gas Dynamics", Vol. 1, p. 497, J. A. Laumann ed., Academic Press, New York, 1963

Franken et al 1961

P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, Phys. Rev. Lett., 7, 118 (1961).

Gallagher et Fenn 1974

R. I. Gallagher, and J. B. Fenn, J. Chem. Phys. 60, 3487 (1974).

Galy 1987

D. Galy, Rapport de stage DEUST "Lasers et Fibres Optiques", Orsay, 1987.

Ganeev et al 1986

R. A. Ganeev, V. V. Gorbushin, I. A. Kulagin, and T. Usmanov, Opt. Spektrosk. (USSR), 61, 807 (1986).

Garrett et al 1986

W. R. Garrett, W. R. Ferrell, M. G. Payne, and John C. Miller, Phys. Rev. A, 34, 1165 (1986).

Gaveau 1984

M. A. Gaveau, Thèse de Doctorat d'Etat, Orsay, 1984.

Gentry et Giese 1978

W. R. Gentry and C. F. Giese, Rev. Sci. Instr., 49, 595 (1978)

Georges et al 1977

A. T. Georges, P. Lambropoulos, and J. H. Marburger, Phys. Rev. A, 15, 300 (1977).

Gerlach et Stern 1921

W. Gerlach and O. Stern, Zeit. Für Physik, 8-2, 110 (1921).

Glownia et Sander 1982

J. H. Glownia and R. K. Sander, Appl. Phys. Lett., 40, 648 (1982).

Goeppert-Mayer 1931

M. Goeppert-Mayer, Ann. Phys. (Leipzig), 9, 273
(1931).

Gürtler et al 1977

P. Gürtler, V. Saile, and E.E. Koch, Chem. Phys. Lett.,
48, 245 (1977).

Harris et Miles 1971

S. E. Harris and R. B. Miles, Appl. Phys. Lett., 19,
385 (1971).

Hellner et Lukazik 1984

L. Hellner and J. Lukazik, Opt. Comm., 51, 347 (1984).

Hernandez et al 1982

S. P. Hernandez, P. J. Dagdigian, and J. P. Doering,
Chem. Phys. Lett. 91, 409 (1982).

Herzberg 1950

G. Herzberg, "Molecular Spectra and Molecular
Structure : Spectra of Diatomic Molecules",
Van Nostrand, New York, 1950.

Hilber et al 1987

G. Hilber, A. Lago, and R. Wallenstein, J. Opt. Soc.
Am. B, 4, 1753 (1987).

Hilbig et Wallenstein 1983

R. Hilbig and R. Wallenstein, Opt. Comm., 44, 283
(1983).

Hilbig et al 1984

R. Hilbig, A. Lago, and R. Wallenstein, *Opt. Comm.*, 49, 297 (1984).

Hilbig et al 1986

R. Hilbig, G. Hilber, A. Lago, B. Wolff, and R. Wallenstein, *Comments At. mol. Phys.*, 18, 157 (1986).

Hougen 1970

J. T. Hougen, "The Calculation of Rotational Energy Levels and Rotational Line Intensities in Diatomic Molecules", U. S. Natls. Bur. Stds. Monograph 115, 1970.

Huber-Walchli et Nibler 1982

P. Huber-Walchli, and J. W. Nibler, *J. Chem. Phys.* 76, 273 (1982).

Ilyukhin et al 1990

A. A. Ilyukhin, R. L. Pykhov, V. V. Smirnov, and G. Marowsky, *Appl. Phys. B*, 51, 192 (1990).

Innes et al 1976

K. K. Innes, B. P. Stoicheff, and S. C. Wallace, *Appl. Phys. Lett.*, 29, 715 (1976).

Jamroz et Stoicheff 1983

W. Jamroz and B. P. Stoicheff, *Progress in Optics* edited by E. Wolf, North-Holland, Amsterdam 1983, vol. 20, p. 326-380.

Kaiser et Garrett 1961

W. Kaiser and C. G. B. Garrett, Phys. Rev. Lett., 7,
229 (1961).

Kantrowitz et Grey 1951

A. Kantrowitz and J. Grey, Rev. Sci. Instr., 22, 328
(1951).

Klein 1989

A. Klein, Thèse de Doctorat, Villetaneuse, 1989.

Kleinman 1962

D. A. Kleinman, Phys. Rev. 126, 1977 (1962).

Kleinman et al 1966

D. A. Kleinman, A. Ashkin, G. D. Boyd, Phys. Rev.,
145, 338 (1966).

Kogelnik et Li 1966

H. Kogelnik and T. Li, Applied Optics, 5, 1550 (1966).

Kramers 1929

H. A. Kramers, Physik Zeitschr, 30, 522 (1929).

Kronig 1926

R. de L. Kronig, J. Opt. Soc Am. Rev. Sci. Instrument,
12, 547 (1926).

Krylov 1962

V. J. Krylov, "Approximate Calculation of Integrals",
Macmillan, New York/London, 1962.

Kung 1983

A. H. Kung, Opt. Lett., 8, 24 (1983).

Lago et al 1987

A. Lago, G. Hilber, and R. Wallenstein, Phys. Rev. A, 36, 3827 (1987).

Lago et al 1988

A. Lago, R. Wallenstein, Chuangtian Chen, Y. X. Fan, and R. L. Byer, Opt. Lett., 13, 221 (1988).

Lamb et Retherford 1950

W. E. Lamb and R. C. Retherford, Phys. Rev., 79, 549 (1950).

Landau et Lifchitz 1971

L. Landau et E. Lifchitz, "Mécanique", 2ème édition, édition Mir, Moscou, 1971.

Laud 1985

B. B. Laud, "Lasers and Non-Linear Optics"
Wiley Eastern Limited, New Delhi, 1985.

Lebéhot 1979

A. Lebéhot, Thèse de Doctorat d'Etat, Villetaneuse, 1979.

Lebéhot et al 1990

A. Lebéhot, S. Drawin, F. Aguilon, R. Campargue, and X. Chapisat, J. Chem. Phys., 92, 7340 (1990).

Le Boiteux 1990

S. Le Boiteux, Thèse de Doctorat d'Etat, Villetaneuse, 1990.

Leubner 1981

C. Leubner, H. Scheingraber, and C. R. Vidal, Opt. Comm., 6, 205 (1981).

L'Huillier et al 1988

A. L'Huillier, L. A. Lompré, M. Ferray, X. F. Li, G. Mainfray, and C. Manus, Europhysics Lett. 5, 601 (1988).

Liverman et al 1979

M. G. Liverman, S. M. Beck, D. L. Monts, and R. E. Smalley, J. Chem. Phys., 70, 232 (1979).

Lompré et al 1990

L. A. Lompré, A. L'Huillier, M. Ferray, P. Monot, G. Mainfray, and C. Manus, J. Opt. Soc. Am. B, 7, 754 (1990).

Love et al 1959

E. S. Love, C. E. Grisby, P. L. Lee, and M. J. Woodling, Technical Report, NASA TR.R6 (1959).

Loudon 1983

R. Loudon, "The Quantum Theory of Light", Clarendon Press, Oxford, 1983.

Luijks et al 1981

G. Luijks, S. Stolte, and J. Reuss, Chem. Phys. 62, 217 (1981).

Marinero et al 1983

E. E. Marinero, C. T. Rettner, R. N. Zare, and
A. H. Kung, Chem. Phys. Lett., 95, 486 (1983).

Marx et al 1985

J. Marx, A. Lebéhot, J. C. Lemonnier, D. Murette, and
R. Campargue, "10 th International Symposium on
Molecular Beams", Cannes, 1985.

Marx 1986

J. Marx, Thèse de Doctorat d'Etat, Orsay, 1986.

McPherson et al 1987

A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann,
T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, and
C. K. Rhodes, J. Opt. Soc. Am. B, 4, 595 (1987).

Merkt et Softley 1990¹

F. Merkt and T. P. Softley, J. Chem. Phys., 93, 1540
(1990).

Merkt et Softley 1990²

F. Merkt and T. P. Softley, Chem. Phys. Lett., 165,
477 (1990).

Mertens et Bogen 1987

Ph. Mertens and P. Bogen, Appl. Phys. A, 43, 197
(1987).

Messiah 1964

A. Messiah, "Mecanique quantique", Dunod, Paris, 1964.

Miller et Andres 1967

D. R. Miller and R. P. Andres, J. Chem. Phys. 46, 3418 (1967).

Miller et al 1985

P. J. Miller, P. Chen, and W. A. Chupka, Chem. Phys. Lett., 120, 217 (1985).

Miyazaki et al 1989

K. Miyazaki, H. Sakai, and T. Sato, Appl. Opt., 28, 699 (1989).

Munakata et al 1987

T. Munakata, T Mizukuki, A. Misu, M Tsukakoshi, and T. Kasuya, Laser Chem., 7, 129 (1987).

Owen et Thornhill 1948

P. L. Owen and C. K. Thornhill, Aeronautical Research Council R & M 2616, Great Britain, 1948.

Page et al 1987

R. H. Page, R. J. Larkin, A. H. Kung, Y. R. Shen, and Y. T. Lee, Rev. Sci. Instrum., 58, 1616 (1987).

Proctor et al 1987

M. J. Proctor, J. A. D. Stockdale, T. Efthimiopoulos, and C. Fotakis, Chem. Phys. Lett., 137, 223 (1987).

Puell et al 1976

H. Puell, K. Spanner, W. Falkenstein, W. Kaiser, and C. R. Vidal, Phys. Rev. A, 14, 2240 (1976).

Pummer et al 1982

H. Pummer, T. Srinivasan, H. Egger, K. Boyer,
T. S. Luk, and C. K. Rhodes, Opt. Lett., 7, 93
(1982).

Reintjes et She 1978

J. Reintjes and C. Y. She, Opt. Comm., 27, 469
(1978).

Reintjes 1980

J. Reintjes, Opt. Lett., 5, 342 (1980).

Reintjes 1984

J. Reintjes, "Nonlinear Optical Parametric Processes
in Liquids and Gases", Academic Press, Orlando, 1984.

Rettner et al 1984

C. T. Rettner, E. E. Marinero, R. N. Zare, and
A. H. Kung, J. Phys. Chem., 88, 4459 (1984).

Rosman et al 1988

R. Rosman, G. Gibson, K. Boyer, H. Jara, T. S. Luk,
I. A. McIntyre, A. McPherson, J. C. Solem, and
C. K. Rhodes, J. Opt. Soc. Am. B, 5, 1237 (1988).

Rostas 1990

F. Rostas, Rapport SGDN sur "Les Lasers VUV",
La Recherche Scientifique et Technologique dans le
Monde, N°5/SGDN/STS/VST/7 du 8 Février 1990.

Royt et Lee 1977

T. R. Royt and Chi H. Lee, Appl. Phys. Lett. 30, 332
(1977).

Salamero et al 1987

Y. Salamero, A. Birot, H. Brunet, J. Galy, P. Millet, J. L. Teyssier et J. N. Foulquier, Journal de Physique, Colloque C7, sup. au n°12, tome 48, 565 (1987).

Salmon et Gervat 1967

J. Salmon et A. Gervat, "Mécanique Quantique", Tome II, Masson et Cie, Paris, 1967.

Sauteret et al 1990¹

C. Sauteret et al, Proc. CLEO/IQEC, paper JMA3, Anaheim, CA (1990).

Sauteret et al 1990²

C. Sauteret, G. Mainfray, and G. Mourou, Laser Focus World, October 1990.

Scheingraber et al 1978

H. Scheingraber, H. Puell, and C. R. Vidal Phys. Rev. A 18, 2585, (1978).

Scheingraber et Vidal 1981

H. Scheingraber and C. R. Vidal, Opt. Comm., 38, 75 (1981).

Schubert et Wilhelmi 1986

M. Schubert and B. Wilhelmi, "Nonlinear Optics and Quantum Electronics", Wiley-Interscience Publication, New York, 1986.

Shen 1984

Y. R. Shen, "The Principles of Nonlinear Optics",
Wiley-Interscience Publication, New York, 1984.

Sherman 1963

F. S. Sherman, Lockheed Missiles and Space Co.
Rept. 6-90-63-61 (1963).

Srinivasan et al 1983

T. Srinivasan, H. Egger, H. Pummer, and C. K. Rhodes,
IEEE J. Quantum Electron., QE-19, 1270 (1983).

Stappaerts 1975

E. A. Stappaerts, Phys. Rev. A, 11, 1664 (1975).

Stappaerts et al 1976

E. A. Stappaerts, G. W. Bekkers, J. F. Young, and
S. E. Harris, IEEE J. Quantum Electron., QE-12,
330 (1976).

Tai et Wu 1976

Chen-yu Tai and Yet-ta Wu, Opt. Comm., 58, 217
(1976)

Tai et al 1988

Chen-yu Tai, R. T. Deck, and Charles Kim, Phys.
Rev. A, 37, 163 (1988).

Tsukiyama et al 1990¹

K. Tsukiyama, M. Tsukakoshi, and T. Kasuya, Appl.
Phys. B, 50, 23 (1990).

Tsukiyama et al 1990²

K. Tsukiyama, M. Tsukakoshi, and T. Kasuya, J. Chem. Phys., 92, 6426 (1990).

Vallée et Lukazik 1982

F. Vallée and J. Lukazik, Opt. Comm, 43, 287, (1982).

Vallée et al 1982

F. Vallée, S. C. Wallace, and J. Lukazik, Opt. Comm., 42, 148 (1982).

Vallée et al 1985

F. Vallée, L. Hellner et J. Lukazik, Annales de Physique, Colloque C1, sup. au n°1, 135 (1985).

Vanderslice et al 1965

J. T. Vanderslice, S. G. Tilford, and P. G. Wilkinson, Astrophys. J. 141, 395 (1965).

Vidal 1986

C. R. Vidal, "Tunable Lasers" edited by L. F. Mollenauer and J. C. White, Topics in Applied Physics, vol. 59, p. 19-75, 1986.

Wallace et Innes 1980

S. C. Wallace and K. K. Innes, J. Chem. Phys., 72, 4805 (1980).

Ward et New 1969

J. F. Ward and G. H. C. New, Phys. Rev., 185, 57 (1969).

Whiffen 1966

D. H. Whiffen, "Spectroscopy", Longmans Green and Co. LTD, London, 1966.

Wildenauer 1987

J. Wildenauer, J. Appl. Phys., 62, 41 (1987).

Wolff 1962

W. S. Wolff, travail effectué à la "Lockheed Missiles and Space Company", Palo Alto, USA, 1962.

Yamazaki et al 1981

S. Yamazaki, M. Taki, and Y. Fujitani, J. Chem. Phys., 74, 4476 (1981).

Yiu et al 1979

Y. M. Yiu, T. J. McIlrath, and R. Mahon, Phys. Rev. A, 20, 2470 (1979).

