Non-linéarités d’ordre trois

Chapitre 2
Non-linéarités d'ordre trois

En raison de leur intensité crête élevée, les impulsions brèves sont souvent associées à des effets non linéaires importants, liés à la réponse du milieu dans lequel l'onde se propage. Ces phénomènes sont la conséquence des modifications des propriétés optiques du milieu sous l'action du champ lumineux intense. Nous nous intéressons uniquement à la susceptibilité non linéaire d'ordre trois, désignée par un tenseur complexe, noté $\chi^{(3)}$. Les phénomènes associés sont connus sous le nom d'effet Kerr optique.

Dans la première partie de ce chapitre, nous détaillons les propriétés du tenseur $\chi^{(3)}$ et établissons l'expression de la polarisation non linéaire. Ceci permet de développer un modèle théorique pour décrire les modifications de la polarisation d'une onde se propageant dans divers milieux non linéaires. Il s'agit de phénomènes d'ordre trois, dépendant de l'intensité de l'onde incidente. En première approximation, l'intensité résultante présente une dépendance cubique par rapport à l'onde initiale. L'intérêt potentiel pour l'amélioration du contraste temporel est évident. Les effets présentés constituent la base des filtres non linéaires étudiés dans la suite de ce manuscrit.

Dans la seconde partie, je présente brièvement quelques conséquences supplémentaires de la susceptibilité non linéaire sur les propriétés spectrales et spatiales de l'impulsion. Ces effets, fréquemment observés, sont l'automodulation de phase et l'autofocalisation.

1. Modifications de la polarisation dans un milieu non linéaire

Dans les chapitres suivants, nous allons étudier alternativement les modifications subies par la polarisation d'une onde se propageant dans des milieux dont la susceptibilité non linéaire d'ordre trois est isotrope ou anisotrope, dans le cas d'une polarisation initiale linéaire ou elliptique.
Ce paragraphe établit un modèle théorique complet, valable pour chacun de ces cas.

1.1. Hypothèses

Nous négligerons toujours dans les phénomènes non linéaires considérés l'absorption à deux photons, seule la partie réelle du tenseur $\chi^{(3)}$ est prise en compte. Enfin, seuls des phénomènes électroniques non résonnants, c'est-à-dire à réponse instantanée, sont considérés. Nous traitons le cas de milieux naturellement non biréfringents.

Le champ électromagnétique vectoriel incident monochromatique s'écrit :

$$\tilde{\boldsymbol{E}}(t) = \boldsymbol{E}(\omega) \cos(\omega t) \tag{2.1}$$

Les unités employées sont celles du système MKS. Le champ électromagnétique est donc exprimé en Vm^{-1}, l'intensité *I* associée en Wm^{-2} :

$$I = \frac{c\varepsilon_0 n_0}{2}|E|^2, \text{ avec } \varepsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12}\, Fm^{-1}. \tag{2.2}$$

Le champ ***E*** est décrit par ses composantes orthogonales A et B dans un repère *(abz)* (fig. 2.1).

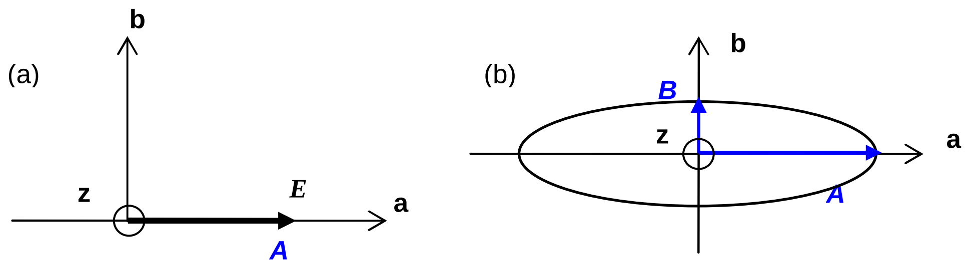

Figure 2.1 : Repère (abz) dans le cas d'un champ incident polarisé linéairement (a) ou elliptiquement (b).

Nous voulons connaître l'évolution des champs A et B lors de la propagation dans le milieu non linéaire. Les calculs suivants sont effectués pour des ondes planes, dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable.

1.2. Modifications de la polarisation dans un milieu isotrope

Le tenseur $\chi^{(3)}$ comprend 81 termes. Pour les matériaux à haut niveau de symétrie, la plupart de ces termes sont nuls. Si nous considérons un milieu isotrope caractérisé par un repère *(xyz)*, les relations suivantes entre les termes non nuls du tenseur $\chi^{(3)}$ sont vérifiées [2.1] :

$$\chi^{(3)}_{xxxx} = \chi^{(3)}_{yyyy} = \chi^{(3)}_{zzzz} \tag{2.3(a)}$$

$$\chi^{(3)}_{xxyy} = \chi^{(3)}_{xxzz} = \chi^{(3)}_{yyxx} = \chi^{(3)}_{yyzz} = \chi^{(3)}_{zzxx} = \chi^{(3)}_{zzyy} \tag{2.3(b)}$$

$$\chi^{(3)}_{xyxy} = \chi^{(3)}_{xzxz} = \chi^{(3)}_{yzyz} = \chi^{(3)}_{yxyx} = \chi^{(3)}_{zxzx} = \chi^{(3)}_{zyzy} \tag{2.3(c)}$$

$$\chi^{(3)}_{xyyx} = \chi^{(3)}_{xzzx} = \chi^{(3)}_{yxxy} = \chi^{(3)}_{yzzy} = \chi^{(3)}_{zxxz} = \chi^{(3)}_{zyyz} \tag{2.3(d)}$$

Ces quatre termes sont liés par la relation d'isotropie :

$$\chi^{(3)}_{xxxx} = \chi^{(3)}_{xxyy} + \chi^{(3)}_{xyxy} + \chi^{(3)}_{xyyx} \tag{2.4}$$

De plus les règles de symétrie de Kleinman établissent que :

$$\chi^{(3)}_{xxyy} = \chi^{(3)}_{xyxy} = \chi^{(3)}_{xyyx} = \frac{1}{3}\chi^{(3)}_{xxxx} \tag{2.5}$$

Le développement de la polarisation non linéaire du troisième ordre à la même fréquence que le champ incident dans le repère *(xyz)* s'exprime par :

$$P_i^{(3)}(\omega) = \frac{3\varepsilon_0}{8}\sum_{jkl}\chi^{(3)}_{ijkl}(\omega;-\omega,\omega,\omega)E_j^*(\omega)E_k(\omega)E_l(\omega) \qquad (2.6)$$

Soit, d'après les égalités *(2.3)* :

$$P_x^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0}{8}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\,E_x^*\,E_x\,E_x + \chi^{(3)}_{xxyy}\,E_x^*\,E_y\,E_y + \chi^{(3)}_{xyxy}\,E_y^*\,E_x\,E_y + \chi^{(3)}_{xyyx}\,E_y^*\,E_y\,E_x\right] \qquad (2.7)$$

E_x et E_y sont les composantes du champ incident dans le repère *(xyz)*.
L'équation *(2.5)* permet alors d'obtenir :

$$P_x^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0}{8}\chi^{(3)}_{xxxx}\left[\left|E_x\right|^2 E_x + \frac{1}{3}E_y^2\,E_x^* + \frac{2}{3}\left|E_y\right|^2 E_x\right] \qquad (2.8(a))$$

$$P_y^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0}{8}\chi^{(3)}_{xxxx}\left[\left|E_y\right|^2 E_y + \frac{1}{3}E_x^2\,E_y^* + \frac{2}{3}\left|E_x\right|^2 E_y\right] \qquad (2.8(b))$$

Dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable, l'évolution des champs E_x et E_y lors de la propagation est liée à la polarisation non linéaire :

$$\frac{dE_x}{dz} = i\frac{2\pi}{\lambda n_0 \varepsilon_0}P_x \qquad (2.9(a))$$

$$\frac{dE_y}{dz} = i\frac{2\pi}{\lambda n_0 \varepsilon_0}P_y \qquad (2.9(b))$$

Le milieu étant isotrope, le repère *(xyz)* peut être choisi arbitrairement.
Nous choisissons donc : $E_x = A$ et $E_y = B$.
Dans ce cas, l'évolution des champs *A* et *B* est décrite par le système d'équations suivant :

$$\frac{dA}{dz} = i\frac{6\pi}{8n_0\lambda}\chi^{(3)}_{xxxx}\left[\left|A\right|^2 A + \frac{1}{3}\left(2\left|B\right|^2 A + B^2 A^*\right)\right] \qquad (2.10(a))$$

$$\frac{dB}{dz} = i\frac{6\pi}{8n_0\lambda}\chi^{(3)}_{xxxx}\left[\left|B\right|^2 B + \frac{1}{3}\left(2\left|A\right|^2 B + A^2 B^*\right)\right] \qquad (2.10(b))$$

Nous introduisons le terme $\gamma_0 = \dfrac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}$.

$$\boxed{\begin{aligned}\frac{dA}{dz} &= i\gamma_0\left[\left|A\right|^2 A + \delta\left(2\left|B\right|^2 A + B^2 A^*\right)\right] \qquad (2.11(a))\\ \frac{dB}{dz} &= i\gamma_0\left[\left|B\right|^2 B + \delta\left(2\left|A\right|^2 B + A^2 B^*\right)\right] \qquad (2.11(b))\end{aligned}}$$

Le coefficient δ est nommé coefficient de biréfringence induite. Il vaut $\frac{1}{3}$ pour un milieu isotrope [2.2]. Ce terme quantifie les transferts d'énergie de A vers B. Les termes en $|A|^2 A$ ($|B|^2 B$) correspondent à l'automodulation de phase, et les termes en $|B|^2 A$ ($|A|^2 B$) à la modulation de phase croisée.

Nous remarquons qu'une polarisation linéaire se conserve : si B est nul, A subit uniquement de l'automodulation de phase et aucun transfert d'énergie de A vers B n'a lieu. Une polarisation circulaire se conserve également. Par exemple $B = iA$ conduit à $\frac{dB}{dz} = i\frac{dA}{dz}$.

Seule une polarisation elliptique subit des modifications dans un milieu isotrope. Il s'agit de la rotation de polarisation elliptique par biréfringence induite (*NER : Nonlinear Elliptic polarization Rotation*). Dans ce cas, la biréfringence induite par effet Kerr a pour conséquence la rotation du grand axe de l'ellipse (fig. 2.2) [2.1].

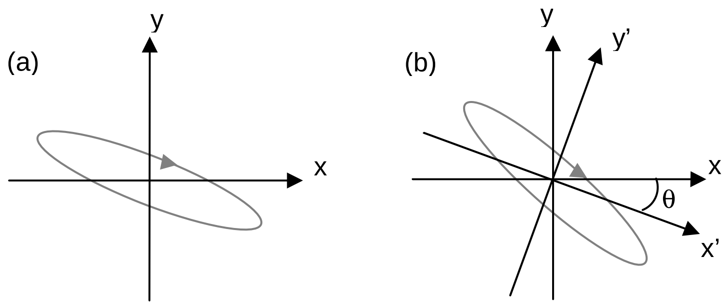

Figure 2.2 : Polarisation elliptique incidente (a) et après propagation (b)

Ce phénomène est étudié expérimentalement et appliqué au filtrage temporel dans le chapitre 3.

1.3. Modifications de la polarisation dans un milieu cristallin anisotrope

Dans le cas d'un matériau cristallin cubique (m3m) ou tétragonal (4/mmm), les relations *(2.3)* sont valides, mais la relation d'isotropie *(2.5)* n'est plus vérifiée. Les quatre termes $\chi^{(3)}_{xxxx}$, $\chi^{(3)}_{xxyy}$, $\chi^{(3)}_{xyxy}$, et $\chi^{(3)}_{xyyx}$ sont indépendants.

Le coefficient d'anisotropie du tenseur $\chi^{(3)}$, noté σ, quantifie l'écart par rapport à la situation d'isotropie :

$$\sigma = \frac{\chi^{(3)}_{xxxx} - \chi^{(3)}_{xxyy} - \chi^{(3)}_{xyxy} - \chi^{(3)}_{xyyx}}{\chi^{(3)}_{xxxx}} \tag{2.12}$$

Si on conserve l'ordre des champs défini dans *(2.6)*, une relation supplémentaire est vérifiée [2.2] :

$$\chi^{(3)}_{xyxy} = \chi^{(3)}_{xyyx} \tag{2.13}$$

L'anisotropie du tenseur $\chi^{(3)}$ s'écrit finalement :

$$\boxed{\sigma = \frac{\chi^{(3)}_{xxxx} - \chi^{(3)}_{xxyy} - 2\chi^{(3)}_{xyyx}}{\chi^{(3)}_{xxxx}}} \tag{2.14}$$

Nous pouvons exprimer $P_x^{(3)}$ et $P_y^{(3)}$ d'après *(2.7)* et *(2.13)* :

$$P_x^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0}{8}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left|E_x\right|^2 E_x + \chi^{(3)}_{xxyy}\, E_x^*\, E_y^2 + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left|E_y\right|^2 E_x\right] \tag{2.15(a)}$$

$$P_y^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0}{8}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left|E_y\right|^2 E_y + \chi^{(3)}_{xxyy}\, E_y^*\, E_x^2 + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left|E_x\right|^2 E_y\right] \tag{2.15(b)}$$

D'après les équations (2.9) et (2.15), nous obtenons :

$$\frac{dE_x}{dz} = i\,\frac{6\pi}{8\lambda n_0} \times \left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left|E_x\right|^2 E_x + \chi^{(3)}_{xxyy}\, E_x^*\, E_y^2 + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left|E_y\right|^2 E_x\right] \tag{2.16(a)}$$

$$\frac{dE_y}{dz} = i\,\frac{6\pi}{8\lambda n_0} \times \left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left|E_y\right|^2 E_y + \chi^{(3)}_{xxyy}\, E_y^*\, E_x^2 + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left|E_x\right|^2 E_y\right] \tag{2.16(b)}$$

Le repère *(xyz)* correspond aux axes cristallins du matériau. Soit β l'angle entre l'axe x et la direction a de la composante A du champ incident (fig. 2.3).

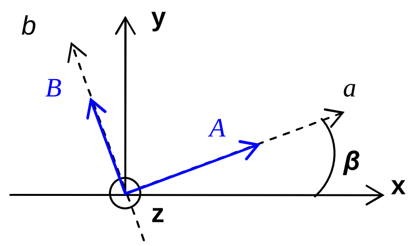

Figure 2.3 : Repères (xyz) et (abz), angle β.

Nous cherchons à exprimer $\frac{dA}{dz}$ et $\frac{dB}{dz}$ en fonction de A et B.

Nous avons :

$$E_x = \cos\beta \; A - \sin\beta \; B \qquad (2.17(a))$$

$$E_y = \sin\beta \; A + \cos\beta \; B \qquad (2.17(b))$$

Et également :

$$\frac{dA}{dz} = \cos\beta \, \frac{dE_x}{dz} + \sin\beta \, \frac{dE_y}{dz} \qquad (2.18(a))$$

$$\frac{dB}{dz} = -\sin\beta \, \frac{dE_x}{dz} + \cos\beta \, \frac{dE_y}{dz} \qquad (2.18(b))$$

$\frac{dE_x}{dz}$ s'exprime en fonction de *A* et *B* d'après *(2.16)* et *(2.17)* :

$$\frac{dE_x}{dz} = i\,\frac{6\pi}{8\lambda n_0} \times \left[\Sigma_1\, \chi^{(3)}_{xxxx} + \Sigma_2\, \chi^{(3)}_{xxyy} + 2\,\Sigma_3\, \chi^{(3)}_{xyyx} \right] \qquad (2.19(a))$$

$$\begin{aligned} \Sigma_1 = {} & \cos^3\beta |A|^2 A + 2\cos\beta\sin^2\beta |B|^2 A - \sin\beta\cos^2\beta\, A^2 B^* \\ & - 2\sin\beta\cos^2\beta\, |A|^2 B - \sin^3\beta |B|^2 B + \cos\beta\sin^2\beta\, B^2 A^* \end{aligned} \qquad (2.19(b))$$

$$\begin{aligned} \Sigma_2 = {} & \cos\beta\sin^2\beta |A|^2 A - 2\cos\beta\sin^2\beta |B|^2 A - \sin^3\beta\, A^2 B^* \\ & + 2\sin\beta\cos^2\beta |A|^2 B - \sin\beta\cos^2\beta |B|^2 B + \cos^3\beta\, B^2 A^* \end{aligned} \qquad (2.19(c))$$

$$\begin{aligned} \Sigma_3 = {} & \cos\beta\sin^2\beta |A|^2 A + \left(\cos^3\beta - \cos\beta\sin^2\beta\right)|B|^2 A + \sin\beta\cos^2\beta\, A^2 B^* \\ & - \left(\sin^3\beta - \sin\beta\cos^2\beta\right)|A|^2 B - \sin\beta\cos^2\beta |B|^2 B - \cos\beta\sin^2\beta\, B^2 A^* \end{aligned} \qquad (2.19(d))$$

De la même manière,

$$\frac{dE_y}{dz} = i\,\frac{6\pi}{8\lambda n_0} \times \left[\Sigma_4\, \chi^{(3)}_{xxxx} + \Sigma_5\, \chi^{(3)}_{xxyy} + 2\,\Sigma_6\, \chi^{(3)}_{xyyx} \right] \qquad (2.20(a))$$

$$\begin{aligned} \Sigma_4 = {} & \sin^3\beta |A|^2 A + 2\sin\beta\cos^2\beta |B|^2 A + \cos\beta\sin^2\beta\, A^2 B^* \\ & + 2\cos\beta\sin^2\beta |A|^2 B + \cos^3\beta |B|^2 B + \sin\beta\cos^2\beta\, B^2 A^* \end{aligned} \qquad (2.20(b))$$

$$\begin{aligned}\Sigma_5 &= \sin\beta\cos^2\beta|A|^2 A - 2\sin\beta\cos^2\beta|B|^2 A + \cos^3\beta\, A^2 B^* \\ &\quad - 2\cos\beta\sin^2\beta|A|^2 B + \cos\beta\sin^2\beta|B|^2 B + \sin^3\beta\, B^2 A^*\end{aligned} \qquad (2.20(c))$$

$$\begin{aligned}\Sigma_6 &= \sin\beta\cos^2\beta|A|^2 A + \left(\sin^3\beta - \sin\beta\cos^2\beta\right)|B|^2 A - \cos\beta\sin^2\beta\, A^2 B^* \\ &\quad + \left(\cos^3\beta - \cos\beta\sin^2\beta\right)|A|^2 B + \cos\beta\sin^2\beta|B|^2 B - \sin\beta\cos^2\beta\, B^2 A^*\end{aligned} \qquad (2.20(d))$$

En remplaçant $\frac{dE_x}{dz}$ et $\frac{dE_y}{dz}$ par ces expressions dans les équations *(2.18)*, nous remarquons que dans l'expression de $\frac{dA}{dz}$ apparaît un terme en $|B|^2 B$. Ce terme correspond à un transfert d'énergie du champ *B* vers le champ *A* polarisé orthogonalement.

Le coefficient γ de ce terme de génération de polarisation orthogonale vaut d'après *(2.14), (2.18), (2.19), (2.20)* :

$$\gamma = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left(\cos^3\beta\sin\beta - \cos\beta\sin^3\beta\right) + \left(\chi^{(3)}_{xxyy} + 2\chi^{(3)}_{xyyx}\right)\left(\sin^3\beta\cos\beta - \sin\beta\cos^3\beta\right)\right] \quad (2.21)$$

$$\gamma = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\left(\cos^3\beta\sin\beta - \cos\beta\sin^3\beta\right)\left(\chi^{(3)}_{xxxx} - \chi^{(3)}_{xxyy} - 2\chi^{(3)}_{xyyx}\right)\right] \qquad (2.22)$$

$$\gamma = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}\,\sigma\,\frac{\sin(4\beta)}{4} \qquad (2.23)$$

$$\boxed{\gamma = i\gamma_0\,\sigma\,\frac{\sin(4\beta)}{4}} \qquad (2.24)$$

Il est important de noter que ce terme de génération de polarisation orthogonale n'apparaît pas dans les équations *(2.16)*. Pour le mettre en évidence, il faut considérer un champ incident qui n'est pas polarisé suivant l'un des axes cristallins ($\beta \neq 0$).

Le calcul des autres coefficients est effectué en annexe (p. 179).

L'expression de l'équation d'évolution du champ A finalement obtenue est :

$$\frac{dA}{dz} = i\,\gamma_0\left(1-\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)\right)|A|^2 A \text{ ....}\textit{automodulation de phase}$$

$$+\,i\,\gamma_0\,\frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|B|^2 B \text{ ....}\textit{génération de polarisation croisée}$$

$$+\,i\,2\,\gamma_0\left[\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)+\frac{1-\sigma}{3}\right]|B|^2 A \text{ ....}\textit{modulation de phase croisée}$$

$$\left.\begin{array}{l} -\,i\,\gamma_0\,\dfrac{\sigma}{4}\sin(4\beta)A^2B^* \\[2ex] -\,i\,2\,\gamma_0\,\dfrac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|A|^2 B \\[2ex] +\,i\,\gamma_0\left[\dfrac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)+\dfrac{1-\sigma}{3}\right]B^2A^* \end{array}\right\}\text{...... }\textit{autres processus de mélange à 4 ondes} \qquad \textit{(2.25(a))}$$

De la même manière,

$$\frac{dB}{dz} = i\,\gamma_0\left(1-\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)\right)|B|^2 B \text{ ....}\textit{automodulation de phase}$$

$$-\,i\,\gamma_0\,\frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|A|^2 A \text{ ....}\textit{génération de polarisation croisée}$$

$$+\,i\,2\,\gamma_0\left[\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)+\frac{1-\sigma}{3}\right]|A|^2 B \text{ ....}\textit{modulation de phase croisée}$$

$$\left.\begin{array}{l} +\,i\,\gamma_0\,\dfrac{\sigma}{4}\sin(4\beta)B^2A^* \\[2ex] +\,i\,2\,\gamma_0\,\dfrac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|B|^2 A \\[2ex] +\,i\,\gamma_0\left[\dfrac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)+\dfrac{1-\sigma}{3}\right]A^2B^* \end{array}\right\}\text{..... }\textit{autres processus de mélange à 4 ondes} \qquad \textit{(2.25(b))}$$

Les équations *2.25 (a)* et *(b)* sont totalement symétriques, *A* et *B* étant interchangeables (la différence de signe devant les deuxième, quatrième et cinquième termes provient de la définition de l'angle β).

Par comparaison avec les équations *(2.11)* correspondant au cas isotrope, nous retrouvons les termes d'automodulation de phase et de modulation de phase croisée, dépendant de $\chi_{xxxx}^{(3)}$, de σ et de l'angle β. Dans ce cas, le coefficient de biréfringence induite s'écrit : $\delta = \frac{1-\sigma}{3} + \frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)$.

Nous avons évoqué le terme en $|B|^2 B$ $\left(|A|^2 A\right)$. Ce terme correspond à la génération d'une onde polarisée orthogonalement (XPW pour *Cross-Polarized Wave*) par rapport à l'onde incidente. Ce terme n'existe que pour un milieu dont la susceptibilité non linéaire est anisotrope $(\sigma \neq 0)$ et dépend de manière périodique de β.

Finalement, une onde polarisée soit linéairement, soit elliptiquement, peut subir des changements dans un milieu anisotrope.

Dans le cas d'une polarisation initiale linéaire (par exemple, $B(0) = 0$), une onde polarisée orthogonalement (XPW) est générée. Ce processus sera étudié en détail dans le chapitre 4. Son application à l'amélioration du contraste temporel d'impulsions femtosecondes est amplement décrite au cours du chapitre 6.

Si la polarisation incidente est elliptique ($A(0) \neq 0,\ B(0) \neq 0$), à cette contribution XPW s'ajoute la contribution de rotation de l'ellipse, de type NER. L'étude simultanée de ces processus fait l'objet du chapitre 5.

2. Automodulation de phase et autofocalisation

En plus des changements de polarisation, une onde se propageant dans un milieu non linéaire d'ordre trois subit des perturbations spectrales et spatiales. La présence de la susceptibilité non linéaire se traduit en effet par une modification de l'indice de réfraction qui s'écrit alors :

$$n = n_0 + n_2 I \qquad (2.26)$$

n_0 est l'indice de réfraction linéaire et n_2 désigne l'indice non linéaire du matériau, lié aux termes diagonaux du tenseur $\chi^{(3)}$ par [2.3] :

$$n_2{}^x = \frac{3}{4\varepsilon_0 c n_0^2}\chi^{(3)}_{xxxx} \qquad (2.27)$$

$\chi^{(3)}_{xxxx}$ s'exprime en m^2V^{-2}, n_2 en m^2W^{-1}. L'intensité du champ est $I = \frac{c\varepsilon_0 n_0}{2}|E|^2$.

La dépendance de l'indice de réfraction effectif n avec l'intensité $I(t,z)$ est la cause de perturbations à la fois spectrales (automodulation de phase) et spatiales (autofocalisation) de l'onde.

Remarquons également que le premier terme des équations *(2.25)* a établi une expression générale de l'automodulation de phase pour tout champ se propageant dans un milieu anisotrope, dépendant de $\chi^{(3)}_{xxxx}$, de σ et β.

2.1. *Automodulation de phase*

La variation temporelle de l'indice de réfraction crée de l'automodulation de phase. En effet, durant sa propagation, dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable et d'une réponse instantanée du milieu, l'impulsion acquiert une phase non linéaire [2.4] :

$$\phi_{NL}(t) = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 L\, I(t) \qquad (2.28)$$

Cette phase dépendante du temps modifie la largeur et la forme du spectre comme on le vérifie en introduisant la notion de fréquence instantanée :

$$\omega(t) = \omega_0 - \delta\omega(t) \qquad (2.29)$$

$$\delta\omega(t) = -\frac{d}{dt}\phi_{NL}(t) \qquad (2.30)$$

La figure 2.4 représente l'exemple d'un profil temporel d'intensité de type gaussien et la variation $\delta\omega(t)$ associée dans le cas $n_2 > 0$. Le front avant de l'impulsion, pour lequel $\delta\omega(t) > 0$, est translaté vers les hautes longueurs d'onde, tandis que le front arrière est décalé vers les basses longueurs d'onde.

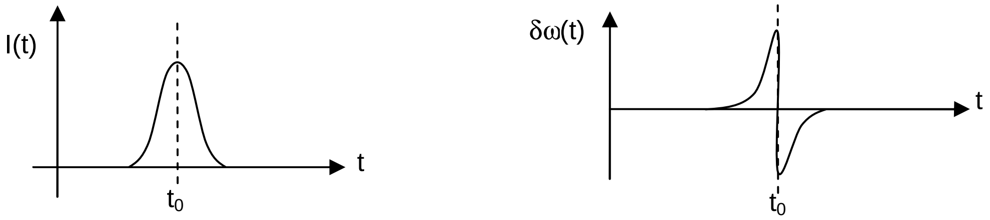

Figure 2.4: Dépendance temporelle de l'intensité et variation de la fréquence instantanée associée.

L'automodulation de phase est donc, dans la plupart des cas, responsable d'un élargissement du spectre, typiquement des bosses apparaissent aux longueurs d'onde extrêmes et un creux se forme au centre du spectre. La modification du spectre est également très fortement liée à la phase spectrale de l'impulsion.

La quantité $\frac{2\pi}{\lambda} n_2 \int_0^L I(t,z)dz$ est appelée intégrale B et quantifie usuellement la phase non linéaire accumulée lors de la propagation de l'impulsion dans la chaîne laser.

2.2. Autofocalisation

Une autre conséquence de l'effet Kerr est l'autofocalisation du faisceau, due à la variation de l'indice de réfraction avec l'intensité spatiale. En effet, si une onde présente une distribution transverse d'intensité non uniforme dans un matériau dont l'indice non linéaire est positif, celui-ci agit comme une lentille convergente, appelée lentille de Kerr (fig. 2.5(a)). Si le milieu non linéaire est long ou si l'intensité est trop importante, le faisceau focalise dans le matériau, en un point dit d'effondrement, ce qui est source de dommages (fig. 2.5(b)).

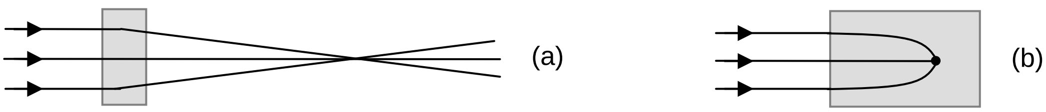

Figure 2.5 : Autofocalisation par effet Kerr

Ce phénomène, bien contrôlé, est à l'origine d'autoguidage d'impulsions par filamentation [2.5-2.7].

Notons que l'autofocalisation intervient toujours si la puissance de l'impulsion est supérieure à une certaine valeur, appelée puissance critique (P_{cr}), indépendamment du diamètre du faisceau.
La puissance critique est caractéristique du milieu non linéaire traversé et s'écrit [2.8] :

$$P_{cr} = \frac{\pi (0.61)^2 \lambda^2}{8 n_0 n_2} \tag{2.31}$$

Par exemple dans l'air, dont l'indice non linéaire vaut 3.2×10^{-19} cm^2W^{-1}, la puissance critique est d'environ 3 GW.
La position du point d'autofocalisation est par contre liée à l'intensité initiale de l'impulsion.

L'automodulation de phase et l'autofocalisation sont des phénomènes bien connus, que nous aurons l'occasion d'observer, et d'utiliser, au cours des réalisations expérimentales décrites dans cette thèse.

Le modèle théorique développé dans ce chapitre décrit les modifications de la polarisation d'une onde se propageant dans un milieu non linéaire. Il inclut les cas d'un milieu dont la susceptibilité non linéaire du troisième ordre est isotrope, ou anisotrope. Il est adapté à une polarisation incidente linéaire ou elliptique. Il est ainsi approprié à plusieurs configurations expérimentales. Les filtres non linéaires successivement développés et étudiés au cours de ma thèse reposent sur ces modifications non linéaires de la polarisation de l'impulsion femtoseconde. Le modèle théorique décrit ici sera donc exploité dans toute la suite du manuscrit.

BIBLIOGRAPHIE :

[2.1] R. W. Boyd (1992) *"Nonlinear Optics"* (Academic Press, Boston), p. 164-171.

[2.2] D.C. Hutchings, J.S. Aitchison and J.M. Arnold (1997) *"Nonlinear refractive coupling and vector solitons in anisotropic cubic media"*, Journal of Optical Society of America B 14, 869-879.

[2.3] R. DeSalvo, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan and E. W. Van Stryland (1993) *"Z-scan measurements of the anisotropy of nonlinear refraction and absorption in crystals"*, Optics Letters 18, 194-196.

[2.4] R. W. Boyd (1992) *"Nonlinear Optics"* (Academic Press, Boston), p. 275.

[2.5] J. F. Ripoche (1998) *"Mesure du profil temporel exact d'impulsions laser femtosecondes intenses"*, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique.

[2.6] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier and G. Mourou (1995) *"Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses"*, Optics Letters 20, 73-75.

[2.7] H. R. Lange, G. Grillon, J. F. Ripoche, M. A. Franco, B. Lamouroux, B. S. Prade, A. Mysyrowicz, E. T. J. Nibbering and A. Chiron (1998) *"Anomalous long-range propagation of femtosecond laser pulses through air : moving focus or pulse self-guiding ?"*, Optics Letters 23, 120-122.

[2.8] R. W. Boyd (1992) *"Nonlinear Optics"* (Academic Press, Boston), p. 257-260.