



**HAL**  
open science

# Génération de second harmonique pour la nano-optique et la microscopie optique en champ proche

Thierry Laroche

► **To cite this version:**

Thierry Laroche. Génération de second harmonique pour la nano-optique et la microscopie optique en champ proche. Physique [physics]. Université de Franche-Comté, 2004. Français. NNT: . tel-00008888

**HAL Id: tel-00008888**

**<https://theses.hal.science/tel-00008888>**

Submitted on 29 Mar 2005

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# THÈSE

présentée à

L'U.F.R DES SCIENCES ET TECHNIQUES  
DE L'UNIVERSITÉ DE FRANCHE-COMTÉ

pour obtenir le

**GRADE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ  
DE FRANCHE-COMTÉ**  
Spécialité Sciences pour l'Ingénieur

## **Génération de second harmonique pour la nano-optique et la microscopie optique en champ proche**

par

**THIERRY LAROCHE**

**soutenue le 16 décembre 2004 devant la commission d'examen :**

**Président**

E. LANTZ            Professeur, Université de Franche-Comté

**Rapporteurs**

R. BACHELOT      Professeur, Université de Technologie de Troyes  
R. CARMINATI      Professeur, École Centrale de Paris

**Examineurs**

F. I. BAIDA          HDR, Maître de Conférences, Université de Franche-Comté  
PH. GOGOL          Maître de Conférences, Institut d'Électronique Fondamentale, Orsay, Paris-Sud,  
Paris XI  
S. GRÉSILLON      Maître de Conférences, École Supérieure de Physique et de Chimie Industrielles,  
Paris  
D. VAN LABEKE      Professeur, Université de Franche-Comté

---

---

# Table des matières

---

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>I</b>	<b>Modélisation et méthodes théoriques</b>	<b>11</b>
<b>2</b>	<b>Équations de Maxwell et propagation des ondes dans les milieux non linéaires</b>	<b>13</b>
2.1	Introduction. . . . .	14
2.2	Équations de Maxwell : modifications dues aux termes non linéaires. . . . .	14
2.3	Propagation dans les milieux non linéaires homogènes. . . . .	17
2.3.1	Milieux isotropes. . . . .	17
2.3.2	Milieux anisotropes. . . . .	20
2.4	Conclusion. . . . .	23
<b>3</b>	<b>Sources non linéaires</b>	<b>25</b>
3.1	Introduction. . . . .	26
3.2	Détermination des sources non linéaires dans l'approximation dipolaire ou locale. . . . .	27
3.2.1	Modélisation de l'interaction matière rayonnement dans les matériaux diélectriques. . . . .	27
3.2.2	Discussion quantitative et qualitative du modèle dipolaire. . . . .	29
3.3	Extension aux effets non locaux. . . . .	31
3.3.1	Contribution des électrons liés aux sources non linéaires . . . . .	32
3.3.2	Contribution des électrons libres aux sources non linéaires . . . . .	33
3.3.3	Discussion sur les sources non linéaires dans un modèle non local. . . . .	34
3.4	Modifications des sources non linéaires dues à la présence d'une interface. . . . .	36
3.4.1	Cas des matériaux centrosymétriques conducteurs. . . . .	36
3.4.2	Rôle de la surface dans la génération de second harmonique pour les matériaux non centrosymétriques diélectriques. . . . .	41
3.5	Discussion. . . . .	42

<b>4</b>	<b>Méthodes théoriques</b>	<b>45</b>
4.1	Introduction . . . . .	46
4.2	Méthode de Rayleigh perturbative. . . . .	47
4.2.1	Matériaux non centrosymétriques. . . . .	50
4.2.2	Matériaux centrosymétriques. . . . .	56
4.3	Méthode des différences finies dans le domaine temporel : FDTD. . . . .	69
4.3.1	Algorithme de Yee . . . . .	70
4.3.2	Dispersion linéaire, anisotropie et les effets non linéaires . . . . .	75
4.3.3	Conditions de bords . . . . .	78
4.4	Conclusion. . . . .	86
 <b>II Applications à quelques configurations expérimentales de l'optique du champ proche</b>		 <b>89</b>
<b>5</b>	<b>Génération de second harmonique pour des matériaux uniaxes diélectriques non centrosymétriques</b>	<b>91</b>
5.1	Introduction . . . . .	92
5.2	Réseaux unidimensionnels . . . . .	92
5.2.1	Configuration expérimentale et simplifications théoriques . . . . .	92
5.2.2	Résultats analytiques et numériques . . . . .	96
5.2.3	Discussion . . . . .	101
5.3	Objets tridimensionnels . . . . .	102
5.3.1	Configuration expérimentale . . . . .	102
5.3.2	Résultats numériques . . . . .	102
5.3.3	Discussion des résultats et des méthodes de détection . . . . .	106
<b>6</b>	<b>Génération de second harmonique pour des matériaux centrosymétriques</b>	<b>111</b>
6.1	Introduction . . . . .	112
6.2	Génération de second harmonique pour des pointes métalliques . . . . .	113
6.2.1	Description du modèle . . . . .	113
6.2.2	Résultats numériques . . . . .	116
6.2.3	Amélioration du rendement pour la génération de second harmonique . . . . .	122
6.2.4	Discussion . . . . .	125
6.3	Génération de second harmonique pour une surface séparant des milieux centrosymétriques non linéaires . . . . .	129
6.3.1	Description du modèle surface plane . . . . .	129
6.3.2	Résultats numériques . . . . .	131

## TABLE DES MATIÈRES

---

6.3.3	Génération de second harmonique par un plasmon de surface. . . . .	132
6.3.4	Génération de second harmonique par un défaut de surface. . . . .	135
6.4	Conclusion . . . . .	137
<b>7</b>	<b>Conclusion Générale</b>	<b>139</b>
<b>III</b>	<b>Annexes</b>	<b>145</b>
<b>A</b>	<b>Résolution des équations de continuité dans la méthode de Rayleigh perturbative</b>	<b>147</b>
A.1	Ordre zéro de perturbation pour le premier harmonique . . . . .	148
A.1.1	Système d'équations de continuité aux interfaces pour l'ordre zéro de perturbation	148
A.1.2	Grandeurs dans les solutions des équations de continuité de l'ordre zéro de perturbation . . . . .	149
A.2	Ordre un de perturbation pour le premier harmonique . . . . .	149
A.2.1	Système d'équations de continuité aux interfaces pour l'ordre un de perturbation .	149
A.2.2	Grandeurs dans les solutions des équations de continuité de l'ordre un de perturbation . . . . .	151
A.3	Ordre zéro de perturbation pour le second harmonique . . . . .	152
A.3.1	Système d'équations de continuité aux interfaces pour l'ordre zéro de perturbation	152
A.3.2	Grandeurs dans les solutions des équations de continuité de l'ordre zéro de perturbation . . . . .	154
A.4	Ordre un de perturbation pour le second harmonique . . . . .	155
A.4.1	Système d'équation de continuité aux interfaces pour l'ordre un de perturbation . .	155
A.4.2	Grandeurs dans les solutions des équations de continuité de l'ordre un de perturbation . . . . .	158
<b>B</b>	<b>Discussion sur l'accord de phase dans le KDP pour la configuration dites de Bloembergen.</b>	<b>161</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>166</b>
	<b>table des figures</b>	<b>174</b>
	<b>Liste des tableaux</b>	<b>182</b>



# INTRODUCTION

---

---

La microscopie optique en champ proche est une nouvelle technique permettant d'obtenir des images avec une résolution bien en deçà de la limite de Rayleigh. Dans la suite, nous la désignerons par l'acronyme SNOM (Scanning Near-field Optical Microscope). Le principe de fonctionnement ainsi que les différents types de SNOM sont décrits dans des livres récents<sup>[1,2]</sup>.

Des résultats récents ainsi que de nombreuses applications peuvent être dans les articles accompagnant les conférences internationales d'optique en champ proche<sup>[3,4,5]</sup>.

Par delà la simple imagerie à haute résolution, la microscopie optique en champ proche permet d'appliquer à une échelle sub-micronique toutes les techniques optiques d'analyse : réflectométrie, polarimétrie, ellipsométrie, spectroscopie visible, UV, IR, fluorescence et Raman. Cette possibilité d'imager ou d'analyser des échantillons avec une grande résolution a également participé au développement d'une "nano-optique". Il s'agit de structurer optiquement des surfaces de façon à réaliser des composants optiques intégrés à une échelle sub-micronique. Les cristaux sont de tels composants et le SNOM est un excellent outil permettant d'observer "in-situ" et en fonctionnement des cristaux photoniques planaires. Les tamis à photons sont aussi des objets de choix pour les techniques SNOM. Sur les surfaces métalliques, l'utilisation de plasmons de surface ouvrent d'autres possibilités. Des miroirs, des interféromètres à plasmon de surface ont été fabriqués et testés avec un SNOM. Certains commencent à parler d'une éventuelle optique plasmonique.

La plupart des expériences et des études théoriques en SNOM sont en optique linéaire. Cependant quelques équipes ont réalisé des expériences d'optique non linéaire en champ proche.

Le but de ce travail est de fournir des moyens théoriques et de modélisation permettant d'exploiter certaines de ces expériences : La génération de second harmonique en champ proche.

L'observation de ce phénomène nécessite de capter un signal qui possède une longueur d'onde deux fois plus faible que celle du signal incident.

La génération de second harmonique optique est un phénomène observé très rapidement après l'invention du laser. La première observation s'est faite pour un diélectrique ayant une symétrie cristalline ne possédant pas de centre d'inversion de symétrie<sup>[6]</sup> (matériau non centrosymétrique). Le choix s'est porté sur ce genre de matériaux car la théorie prédisait que seul ce type de symétrie était capable de générer le second harmonique optique. Cependant, très rapidement après cette première observation, une deuxième expérience montra que la génération de second harmonique peut avoir lieu dans les matériaux dont la

---

[1] D. COURJON & C. BAINIER, in *Le champ proche optique Théorie et applications*, springer, ed., (2001).

[2] D. COURJON, *Near-Field Microscopy and Near-Field Optics* (World Scientific Pub Co Inc, 2003).

[3] in *Journal of Microscopy* (twente, 2001), No. pt1/2.

[4] in *Journal of Microscopy* (Rochester, 2003), No. 3.

[5] in *Near-Field Optics and Related Techniques (NFO8)* (Seoul, 2004).

[6] P. FRANKEN, A. HIL, C. PETERS & G. WEINREICH, "Generation of optical harmonics," *Phys. Rev. Let.* **7**, 118–120 (1961).



symétrie cristalline possède un centre de symétrie<sup>[7]</sup>. Dès lors, des études théoriques ont permis de comprendre l'origine de ce phénomène qui semblait jusque là interdit<sup>[8,9,10,11]</sup>. Alors que la génération de second harmonique dans les matériaux non centrosymétriques est due à un effet dipolaire électrique, ce sont les contributions quadripolaires électriques et dipolaires magnétiques qui prédominent dans les matériaux centrosymétriques pour cet effet non linéaire. Pour les matériaux non centrosymétriques, les termes d'ordres supérieurs du développement multipolaire sont négligés alors qu'ils deviennent dominants dans les matériaux centrosymétriques puisque le premier ordre est nul. Dans ces derniers, l'action de la surface est aussi très importante<sup>[12]</sup>.

Quelques temps après le développement de la microscopie optique linéaire en champ proche, les premières expériences non linéaires ont vu le jour dans le domaine de l'optique en champ proche<sup>[13,14]</sup>. Ces expériences mettent en évidence la grande sensibilité du second harmonique non seulement à la permittivité électrique, mais aussi aux domaines magnétiques<sup>[15,16,17]</sup>. Les microscopes optiques en champ proche utilisant la génération de second harmonique ont eux aussi leurs différentes familles comme pour l'optique linéaire. Celle qui retient notre attention dans ce manuscrit est la configuration des microscopes optiques avec pointe métallique sans ouverture (ASNOM : Apertueless Scanning Near-field Optical Microscope). Cette configuration a déjà été utilisée dans des expériences de microscopie champ proche non

- 
- [7] R. TERHUNE, P. MAKER & C. SAVAGE, "Optical harmonic generation in calcite," *Phys. Rev. Let.* **8**, 404–6 (1962).
  - [8] N. BLOEMBERGEN, R. CHANG, S. JHA & C. LEE, "Optical second harmonic generation in reflexion from media with inversion symmetry," *Phys. Rev.* **174**, 813–22 (1968).
  - [9] P. GUYOT-SIONNEST, W. CHEN & Y. SHEN, "General considerations on optical second-harmonic generation from surfaces and interfaces," *Phys. Rev. B* **33**, 8254–63 (1986).
  - [10] J. SIPE, D. MOSS & H. VAN DRIEL, "Phenomenological theory of optical second- and third-harmonic generation from cubic and centrosymmetric crystals," *Phys. Rev. B* **35**, 1129–41 (1987).
  - [11] T. HEINZ, in *Second-Order Nonlinear Optical Effects at Surfaces and Interfaces*, H. Ponath & G. Stegeman, eds., (Elsevier, Amsterdam, 1991).
  - [12] J. SIPE, C. SO, M. FUKUI & G. STEGEMAN, "Analysis of second-harmonic generation at metal surfaces," *Phys. Rev. B* **21**, 4389–402 (1980).
  - [13] I. SMOLYANINOV, A. ZAYATS & C. DAVIS, "Near field second harmonic imaging of ferromagnetic and ferroelectric materials.," *Opt. Let.* **22**, 1592–4 (1997).
  - [14] S. BOZHEVOLNYI, K. PEDERSEN & B. VOHNSEN, "Near-field optical microscopy of nonlinear susceptibilities," *Opt. Com.* **150**, 49–55 (1998).
  - [15] R. VOLLMER, Q. JIN, H. REGENSBURGER & J. KIRSCHNER, "Second-harmonic generation from magnetic surfaces and thin films," *J. of Magnetism and Magnetic Materials International* **199**, 611–616 (1999).
  - [16] H. SAITO, V. ZAYETS, S. YAMAGATA & K. ANDO, "Magneto-optical studies of ferromagnetism in the II-VI dilutes magnetic semiconductor  $Zn_{1-x}Cr_xTe$ ," *Phys. Rev. B* **66**, 081201/1–4 (2002).
  - [17] S.-C. LIM, "Magnetic second-harmonic generation of an antiferromagnetic film," *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 1401–10 (2002).

---

linéaire<sup>[18,19,20]</sup>. Les résultats expérimentaux obtenus au second harmonique laissent penser que le confinement du champ en bout de pointe métallique est plus important que celui obtenu classiquement en optique linéaire. Cette propriété est très importante pour la résolution des microscopes optiques en champ proche. La génération de second harmonique est tellement sensible aux variations de surface (géométrie, grandeur optique, ...) qu'il est possible de mettre en évidence une exaltation de champ au second harmonique localisée sur les défauts d'une surface<sup>[21,22,23]</sup>.

Tous ces résultats nous ont poussé à réaliser cette thèse afin de démontrer théoriquement que l'utilisation de la génération de second harmonique peut améliorer la résolution obtenue dans le domaine de la microscopie optique en champ proche.

Pour faire l'étude théorique de la génération de second harmonique dans le domaine de l'optique en champ proche, nous commençons par introduire dans le chapitre I les termes générant les non linéarités à l'intérieur des équations de Maxwell. Dans notre cas, ces non linéarités sont les termes de polarisation non linéaire donnant naissance au second harmonique. La première hypothèse de ce travail est de considérer le second harmonique comme très faible devant le champ à la fréquence linéaire autrement appelé champ fondamental. Cette hypothèse permet de découpler les équations de Maxwell linéaires des équations non linéaires, et ainsi de pouvoir les résoudre successivement. Cette hypothèse sera à vérifier pour chaque résultat. Une deuxième hypothèse un peu moins drastique consiste à ne pas tenir compte des linéarités autres que le second harmonique.

Dans le chapitre 3, nous récapitulons les différentes sources non linéaires d'ordre deux pour les différents types de matériaux que nous avons évoqués ci-dessus. Nous présentons une approche classique permettant d'expliquer leurs origines physiques pour chaque type de matériaux. Une comparaison qualitative est effectuée afin de déterminer les ordres de grandeur des différents types de sources non linéaires.

Une fois les sources non linéaires déterminées, il est possible de remplacer le terme général de polarisation non linéaire des équations de Maxwell introduit au chapitre 3. Ceci effectué, nous sommes en mesure de

- 
- [18] A. ZAYATS & V. SANDOGHDAR, "Apertureless scanning near-field second-harmonic microscopy," *Opt. Com.* **178**, 245–49 (2000).
- [19] S. TAKAHASHI & A. ZAYATS, "Near-field second-harmonic generation at a metal tip apex," *App. Phys. Let.* **80**, 3479–81 (2002).
- [20] A. BOUHELIER, M. BEVERLUIJS, A. HARTSCHUH & L. NOVOTNY, "Near-field second-harmonic generation induced by local field enhancement," *Phys. Rev. Let.* **90**, 013903/1–4 (2003).
- [21] S. BOZHEVILNYI & K. PEDERSEN, "Second Harmonic generation due to surface plasmon localization," *Surface Science* pp. 384–7 (1997).
- [22] A. ZAYATS, I. SMOLYANINOV & C. DAVIS, "Observation of localized plasmonic excitations in thin metal films with near-field second-harmonic microscopy," *Opt. Com.* **169**, 93–96 (1999).
- [23] D. NEWMAN, M. WEARS & R. MATELON, "Plasmon enhanced magneto-optic behaviour in the linear and nonlinear optical fields," *J. of Magnetism and Magnetic Materials International* **242**, 980–3 (2002).

résoudre ces équations quelque soit le système physique à modéliser. Pour ce faire, nous avons développé deux types de programmes permettant de modéliser les effets non linéaires. Ces programmes sont basés sur deux méthodes différentes exposées dans le chapitre 4. La première des méthodes est la méthode de Rayleigh perturbative. Elle a été développée très tôt dans domaine de l'optique en champ proche<sup>[24]</sup>, mais elle est connue depuis plus longtemps et appliquée dans le domaine des phénomènes ondulatoires<sup>[25,26,27]</sup>. Ce choix est dû non seulement à l'historique du laboratoire qui l'utilise couramment pour les réseaux dans le domaine de l'optique linéaire en champ proche, mais aussi à la facilité de mise en œuvre de cette méthode et à la possibilité d'avoir des résultats rapides pour tester nos modèles non linéaires. Comme son nom l'indique, cette méthode ne s'applique qu'à des objets pouvant être considérés comme des perturbations du système total. C'est pourquoi, nous avons développé ensuite la méthode des différences finies dans le domaine temporel (FDTD) en tenant compte de la présence des termes non linéaires. Cette méthode est aussi largement utilisée au laboratoire dans différents types d'études<sup>[28,29]</sup>. Grâce à cette méthode, nous sommes capables de calculer le second harmonique dans un plus grand nombre de configurations.

Ces deux méthodes sont testées dans la partie II de ce travail. Dans le chapitre 5, nous traitons numériquement de la génération de second harmonique dans les matériaux non centrosymétriques pour des réseaux unidimensionnels (périodiques suivant une direction et constants suivant l'autre direction) et pour des objets tridimensionnels. Cette étude permet non seulement de valider nos méthodes numériques dans ce domaine, mais aussi de mettre en évidence l'influence d'une pointe de microscope sur le signal d'optique en champ proche détecté au second harmonique. Cette dernière remarque introduit le chapitre 6 qui étudie la génération de second harmonique émise par une pointe métallique de microscope ASNOM et plus généralement, le second harmonique généré par les matériaux centrosymétriques. Ces résultats sont comparés à ceux obtenus pour les matériaux non centrosymétriques. Le second harmonique généré par la pointe métallique est aussi comparé à celui généré par d'autres structures formées par des matériaux centrosymétriques. Dans les configurations étudiées dans ce dernier chapitre, la génération de second harmonique sur une surface métallique plane par un plasmon de surface du champ fondamental retiendra notre attention.

- 
- [24] D. V. LABEKE & D. BARCHIESI, "Scanning tunneling optical microscopy : a theoretical macroscopic approach," *J. Opt. Soc. Am. A* **9**, 732–738 (1992).
- [25] L. RAYLEIGH, *Theory of Sound* (Dover, New-York, 1945), Vol. 2.
- [26] P. VAN DEN BERG & J. FOKKEMA, "The Rayleigh hypothesis in the theory of reflection by a grating," *J. Opt. Soc. Am.* **69**, 27–31 (1979).
- [27] R. DEPINE & M. GIGLI, "Diffraction from corrugated gratings made with biaxial crystals : Rayleigh methods," *Opt. Com.* **130**, 109–21 (1996).
- [28] G. PARENT, D. VAN-LABEKE & F. BAIDA, "Theoretical study of transient phenomena in near-field optics," *Journal of Microscopy* **202**, 296–306 (2001).
- [29] F. BAIDA & D. V. LABEKE, "Light transmission by subwavelength annular aperture arrays in metallic films," *Opt. Com.* **209**, 17–22 (2002).

---

Ce travail achevé, nous proposons une conclusion ainsi que les perspectives de mon travail de thèse. Les objectifs définis dans cette introduction sont discutés pour savoir s'ils sont pleinement atteints et si l'utilisation de la génération de second harmonique appliquée à l'optique en champ proche apporte des améliorations notables par rapport aux résultats obtenus à la fréquence fondamentale.

---

PREMIÈRE PARTIE

---

**Modélisation et méthodes théoriques**

---



# ÉQUATIONS DE MAXWELL ET PROPAGATION DES ONDES DANS LES MILIEUX NON LINÉAIRES

---

## Sommaire

---

2.1	Introduction. . . . .	14
2.2	Équations de Maxwell : modifications dues aux termes non linéaires. . . . .	14
2.3	Propagation dans les milieux non linéaires homogènes. . . . .	17
2.4	Conclusion. . . . .	23

---

## 2.1 Introduction.

La génération de second harmonique fut observée près d'un siècle après l'écriture des équations de Maxwell<sup>[6]</sup>. En effet, il a fallu attendre l'invention du laser qui permet d'atteindre de plus grandes puissances et l'amélioration des moyens de détection pour mettre en évidence un signal très faible. Bien que n'étant pas le premier effet non linéaire ayant été observé, la génération de second harmonique est le phénomène optique non linéaire étudié ici.

Les termes des équations de Maxwell dénotant les effets non linéaires sont présentés dans différents ouvrages<sup>[30,31]</sup>. Ils apparaissent tantôt dans le vecteur polarisation reliant le champ électrique au vecteur déplacement électrique tantôt dans les densités de charges et de courants. Il est aussi possible de rencontrer ces termes sous la forme d'un développement multipolaire.

Ici, nous avons rassemblé les termes non linéaires des équations de Maxwell dans une grandeur que nous appelons polarisation effective non linéaire :  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}$ . L'expression de cette grandeur est discutée dans le chapitre 3.

La résolution des équations de Maxwell permet de déterminer l'onde électromagnétique et sa propagation dans le milieu considéré. Ceci est effectué en déduisant des équations de Maxwell l'équation de propagation de cette onde qui est présentée dans ce chapitre.

La structure du matériau ou plus précisément sa symétrie, joue un rôle important dans le formalisme de l'équation de propagation. C'est pourquoi, nous voulons traiter séparément la propagation des ondes électromagnétiques dans les matériaux isotropes et anisotropes.

L'onde incidente qui va venir interagir avec la matière est appelée onde pompe ou fondamentale. Elle a une pulsation notée  $\omega$  que l'on nomme : fréquence fondamentale. Dans notre cas, nous étudions seulement l'interaction non linéaire de cette onde pompe avec la matière générant une onde de pulsation  $2\omega$ . Ce type d'onde est appelée second harmonique.

Cependant, un raisonnement analogue à celui tenu dans ce chapitre reste valable pour les autres non linéarités.

## 2.2 Équations de Maxwell : modifications dues aux termes non linéaires.

À tout moment et en tout lieu de l'espace, une onde électromagnétique vérifie les équations de Maxwell :

---

[6] P. FRANKEN, A. HIL, C. PETERS & G. WEINREICH, "Generation of optical harmonics," Phys. Rev. Let. **7**, 118–120 (1961).

[30] A. YARIV & P. YEH, *Optical waves in crystals* (John Wiley & Sons, New York, 1984).

[31] N. BLOEMBERGEN, *Nonlinear optics* (W.A. Benjamin, New York, 1965).



$$\vec{r}\text{ot}(\vec{E}(t)) = -\frac{\partial \vec{B}(t)}{\partial t} \quad (2.1a)$$

$$\text{div}(\vec{B}(t)) = 0 \quad (2.1b)$$

$$\vec{r}\text{ot}(\vec{H}(t)) = \vec{J}^{lib}(t) + \frac{\partial \vec{D}(t)}{\partial t} \quad (2.1c)$$

$$\text{div}(\vec{D}(t)) = \rho^{lib}(t), \quad (2.1d)$$

où  $\vec{J}^{lib}(t)$  et  $\rho^{lib}(t)$  représentent respectivement la densité de courant et la densité de charges libres.  $\vec{E}(t)$  et  $\vec{B}(t)$  sont respectivement le champ électrique et magnétique et  $\vec{H}(t)$  et  $\vec{D}(t)$  sont respectivement le vecteur induction magnétique et le vecteur déplacement électrique. Ces derniers dénotent la réponse du matériau considéré à une excitation électromagnétique. Ces vecteurs sont dépendants du temps  $t$ . Les couples  $(\vec{E}(t), \vec{B}(t))$  et  $(\vec{D}(t), \vec{H}(t))$  sont reliés par les relations constitutives :

$$\vec{D}(t) = \epsilon_0 \vec{E}(t) + (\vec{P}(t) - \text{div}(\overleftarrow{Q}(t)) + \dots) \quad \text{et} \quad \vec{H}(t) = \frac{\vec{B}(t)}{\mu_0} - (\vec{M}(t) + \dots), \quad (2.2)$$

où  $\epsilon_0$  et  $\mu_0$  sont respectivement la permittivité électrique et la perméabilité magnétique du vide. Les grandeurs  $\vec{P}$ ,  $\vec{M}$ ,  $\overleftarrow{Q}$  reflètent l'interaction entre la matière et le rayonnement électromagnétique au travers d'un développement multipolaire<sup>[32]</sup>. Ce sont respectivement les contributions dipolaire électrique, dipolaire magnétique et quadripolaire électrique engendrées par cette interaction. Les points de suspension reflètent les contributions d'ordres supérieurs. Dans le vide, ces grandeurs liées à la présence de matière deviennent nulles.

Nous préférons regrouper les différents effets multipolaires dans une densité de polarisation généralisée  $\vec{\mathbb{P}}$  définit par l'équation :

$$\vec{r}\text{ot}\left(\frac{\vec{B}(t)}{\mu_0}\right) = \frac{\partial \epsilon_0 \vec{E}(t) + \vec{\mathbb{P}}(t)}{\partial t} \quad (2.1c')$$

avec,

$$\frac{\partial \vec{\mathbb{P}}}{\partial t} = \frac{\partial \vec{P} - \text{div}(\overleftarrow{Q}(t))}{\partial t} + \vec{r}\text{ot}(\vec{M}). \quad (2.3)$$

$\vec{P}$ ,  $\vec{M}$ ,  $\overleftarrow{Q}$  contiennent des termes linéaires et non linéaires. Pour les termes linéaires, nous tenons uniquement compte de la contribution dipolaire électrique  $\vec{P}^l$  dans le terme de polarisation généralisée. De plus, il est bien connu que  $\vec{P}^l$  est relié directement au tenseur diélectrique relatif

$$\epsilon_0 \vec{E}(t) + \vec{\mathbb{P}}^l(t) = \epsilon_0 \vec{E}(t) + \vec{P}^l(t) = \epsilon_0 \overleftarrow{\epsilon} \vec{E}(t). \quad (2.4)$$

Dans un milieu isotrope,  $\overleftarrow{\epsilon}$  est multiple de la matrice identité :  $\overleftarrow{\epsilon} = \epsilon \vec{I}$ , où  $\epsilon$  est la constante diélectrique relative du milieu considéré.

---

[32] J. JACKSON, *Classical electrodynamics* (Jhon Wiley & Sons, New York, 1998).

## 2.2. ÉQUATIONS DE MAXWELL : MODIFICATIONS DUES AUX TERMES NON LINÉAIRES.

---

Par la suite, nous étudions la génération de second harmonique dans les matériaux anisotropes, le plus souvent, uniaxes où  $\overleftrightarrow{\epsilon}$  peut être diagonalisé sous une forme semblable à :

$$\overleftrightarrow{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_1 & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_1 & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_2 \end{pmatrix}. \quad (2.5)$$

Pour définir les différents effets non linéaires, il est d'usage de travailler dans l'espace de Fourier fréquentiel.

Un vecteur quelconque  $\vec{E}$ ,  $\vec{B}$ ,  $\vec{\mathbb{P}}$  est décrit par sa transformée de Fourier temporelle :

$$\vec{A}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{A}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega. \quad (2.6)$$

$\vec{A}(t)$  étant réel, on a  $\vec{A}(\omega) = \vec{A}(-\omega)$ .

Pour des ondes électromagnétiques (pas les champs constants), les champs  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  sont reliés et il est commode d'exprimer  $\vec{\mathbb{P}}$  en un développement de Taylor.

Dans ce travail, nous n'étudions que la génération de second harmonique. La polarisation non linéaire correspondante peut donc s'écrire <sup>[8]</sup> :

$$\vec{\mathbb{P}}_i^{nl}(2\omega) = \chi_{ijk}^d(2\omega : \omega, \omega) \vec{E}_j(\omega) \vec{E}_k(\omega) + \chi'_{ijkl}(2\omega : \omega, \omega) \vec{E}_j(\omega) \partial_k \vec{E}_l(\omega) + \dots, \quad (2.7)$$

où nous utilisons la convention de sommation d'Einstein et où les indices  $i, j, k, l$  représentent les différentes composantes  $x, y, z$ .

$\chi^d$  est un tenseur d'ordre 3. Il est noté  $\chi^2$  dans la plupart des manuels sur l'optique non linéaire. Il est purement dipolaire électrique. C'est le premier ordre du développement de Taylor.

$\chi'$  est un tenseur d'ordre 4 et il dénote l'ordre suivant du développement. Il contient des termes d'origine quadripolaire électrique et dipolaire magnétique. Les pointillés représentent les termes d'ordres supérieurs du développement de Taylor de la polarisation non linéaire effective. En général, les effets de  $\chi'$  sont négligeables devant ceux créés par  $\chi^d$ . Mais pour certaines symétries les termes dipolaires s'annulent.

En effet, le nombre de coefficients non nuls et indépendants des tenseurs  $\chi^d$  et  $\chi'$  dépend de la symétrie du matériau considéré. On peut montrer facilement que pour un milieu centrosymétrique  $\chi^d$  est nul : dans cette symétrie le tenseur  $\chi^d$  reste invariant sous l'action d'un centre d'inversion, alors que  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega)$  et  $\vec{E}(\omega)$  sont changés en leur opposé. La relation liant la contribution dipolaire de la polarisation non linéaire  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega)$  au champ électrique à la fréquence fondamentale  $\vec{E}(\omega)$  étant

$$\vec{\mathbb{P}}_i^{nl}(2\omega) = \chi_{ijk}^d(2\omega : \omega, \omega) \vec{E}_j(\omega) \vec{E}_k(\omega), \quad (2.8)$$

nous pouvons dire que le tenseur  $\chi^d$  est nul pour les matériaux centrosymétriques. De façon analogue, il est facile de montrer que le tenseur  $\chi'$  ne s'annule pas pour ce type de matériaux. Alors,  $\chi^d$  étant nul, il

---

[8] N. BLOEMBERGEN, R. CHANG, S. JHA & C. LEE, "Optical second harmonic generation in reflexion from media with inversion symmetry," Phys. Rev. **174**, 813–22 (1968).

faut tenir compte des effets dus à  $\chi'$ . Ce point est discuté au chapitre 3.

Remarquons que le développement de  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}$  se poursuit par des termes en  $\chi^3$  qui ne donnent pas de second harmonique avec un seul faisceau pompe.

Dans la suite de ce travail, nous faisons les hypothèses suivantes :

- la pulsation  $2\omega$  est la seule prise en compte mise à part celle du fondamental  $\omega$ .
- le second harmonique généré reste faible devant le fondamental. Autrement dit, nous négligeons la déplétion du faisceau pompe due à la génération de second harmonique.

Ces deux hypothèses impliquent que, dans ce travail, les équations de Maxwell sont explicitées uniquement pour ces deux fréquences et que le système d'équations obtenu pour une fréquence se résout indépendamment de celui obtenu pour l'autre fréquence.

Ayant posé ces hypothèses, nos calculs se feront en trois étapes :

- Calcul du champ à  $\omega$  en négligeant les effets dus à la génération de second harmonique.
- Calcul du terme de polarisation non linéaire  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}$ .
- Calcul du second harmonique.

Dans certaines configurations les hypothèses ci-dessus ne sont plus vérifiées. C'est le cas lorsque nous obtenons l'accord de phase et qu'un faisceau intense à  $2\omega$  est généré. Dans ce cas, nous ne pouvons plus négliger la déplétion de la pompe. Cependant, nous voyons que les cas traités dans la suite n'ont pas la configuration requise pour permettre un accord de phase.

Nous considérons donc que la déplétion de la pompe due à la génération de second harmonique est négligeable.

## 2.3 Propagation dans les milieux non linéaires homogènes.

La résolution des équations de Maxwell détermine l'évolution du champ électromagnétique dans le système considéré en fonction du temps et de l'espace. Dans ce paragraphe, nous étudions l'évolution de ce champ au travers de l'équation de propagation obtenue grâce aux équations de Maxwell dans l'espace de Fourier fréquentiel. Nous considérons uniquement le premier et le second harmonique pour lesquels nous résolvons les équations de propagation dans les milieux isotropes et anisotropes homogènes. Nous supposons aussi que le milieu n'est pas magnétique (c.a.d.  $\mu(\omega_n) = 1$  où  $\mu$  est la perméabilité magnétique relative du milieu) et que l'onde incidente est une onde plane de pulsation  $\omega$ .

### 2.3.1 Milieux isotropes.

Le matériau considéré est isotrope et conducteur. Le tenseur qui détermine la permittivité électrique relative au milieu est donc diagonalisé et tous ses éléments sont égaux. En d'autres termes, la permittivité  $\epsilon$  est un scalaire. La partie linéaire de la polarisation effective devient alors directement proportionnelle au

### 2.3. PROPAGATION DANS LES MILIEUX NON LINÉAIRES HOMOGENES.

---

champ électrique et l'équation de propagation s'écrit :

$$\vec{rot}(\vec{rot}(\vec{E}(\omega_n))) - \frac{\epsilon(\omega_n)\omega^2}{c^2}\vec{E}(\omega_n) = \mu_0\omega_n^2\vec{\mathbb{P}}^{nl}(\omega_n), \quad (2.9)$$

où  $\omega_n$  représente à la fois le premier et le second harmonique. Pour le premier harmonique, les non linéarités sont négligées. Le second terme de l'équation (2.9) est donc nul et l'équation à résoudre devient :

$$\vec{rot}(\vec{rot}(\vec{E}(\omega))) - \frac{\epsilon(\omega)\omega^2}{c^2}\vec{E}(\omega) = 0, \quad (2.10)$$

où les différentes composantes ( $x, y, z$ ) sont solutions d'équations découplées. La résolution dans ce cas est classique. Nous obtenons une solution de la forme onde plane :

$$\vec{E}(\omega) = \vec{E}_0(\omega)e^{i(\vec{K}(\omega)\cdot\vec{R}-\omega t)}. \quad (2.11)$$

Dans cette expression,  $\vec{E}_0(\omega)$  est l'amplitude du champ  $\vec{E}(\omega)$  et  $\vec{K}(\omega)$  le vecteur d'onde du champ avec les composantes :

$$\vec{K}(\omega) = \begin{pmatrix} \alpha(\omega) \\ \beta(\omega) \\ \gamma(\omega) \end{pmatrix}. \quad (2.12)$$

$\vec{R} = (x, y, z)^T$  est le vecteur position dans l'espace. Le module carré du vecteur d'onde est

$$(K(\omega))^2 = \frac{\epsilon(\omega)\omega^2}{c^2}. \quad (2.13)$$

Pour ce qui est du second harmonique, la résolution n'est pas triviale même si les conditions d'isotropie et de non magnétisme sont maintenues. En effet, il existe un second membre dû à la non linéarité dans l'équation de propagation qui devient :

$$\vec{rot}(\vec{rot}(\vec{E}(2\omega))) - \frac{4\epsilon(2\omega)\omega^2}{c^2}\vec{E}(2\omega) = 4\mu_0\omega^2\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega), \quad (2.14)$$

Quelque soit la source non linéaire (voir chapitre 3), la partie non linéaire de la polarisation effective peut s'écrire avec le formalisme onde plane :

$$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega) = \vec{\mathbb{P}}_0^{nl}(2\omega)e^{i(\vec{K}^{nl}(2\omega)\cdot\vec{R}-2\omega t)}. \quad (2.15)$$

Dans cette expression,  $\vec{\mathbb{P}}_0^{nl}$  est l'amplitude de la polarisation non linéaire effective  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}$ . De plus, d'après l'équation (2.7), le module carré du vecteur d'onde de la polarisation non linéaire est donné par :

$$(K^{nl}(2\omega))^2 = \frac{4\epsilon(\omega)\omega^2}{c^2} = 4(K(\omega))^2. \quad (2.16)$$

Pour aller plus loin, le vecteur d'onde de la polarisation non linéaire est défini par  $\vec{K}_{nl}(2\omega) = 2\vec{K}(\omega)$ . La résolution de l'équation (2.14) se fait en deux temps. Nous résolvons tout d'abord l'équation (2.14) sans

second membre. La solution est comme pour le premier harmonique une onde plane :

$$\vec{E}(2\omega) = \vec{E}_0(2\omega)e^{i(\vec{K}(2\omega)\cdot\vec{R}-2\omega t)}, \quad (2.17)$$

où

$$(\vec{K}(2\omega))^2 = \frac{4\varepsilon(2\omega)\omega^2}{c^2}. \quad (2.18)$$

Ensuite, nous cherchons une solution particulière  $\vec{E}_p(2\omega)$  de l'équation (2.14) avec le second membre. Cette solution particulière est ajoutée à la solution trouvée sans second membre pour obtenir la solution générale de l'équation de propagation pour le second harmonique :

$$\begin{aligned} \vec{E}(2\omega) = & \vec{E}_0(2\omega)e^{i(\vec{K}(2\omega)\cdot\vec{R}-2\omega t)} - \frac{4\omega^2}{c^2((K(2\omega))^2 - (K^{nl}(2\omega))^2)} \\ & \left( \vec{\mathbb{P}}_0^{nl}(2\omega) - \frac{\vec{K}_{nl}(2\omega)(\vec{K}_{nl}(2\omega)\cdot\vec{\mathbb{P}}_0^{nl}(2\omega))}{(K^{nl}(2\omega))^2} \right) e^{i(\vec{K}_{nl}(2\omega)\cdot\vec{R}-2\omega t)}. \end{aligned} \quad (2.19)$$

Plusieurs remarques peuvent être soulignées. En premier, ce résultat montre que le champ électrique pour le second harmonique généré par les sources non linéaires  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}$  contient deux termes. Le premier est la solution de l'équation (2.14) sans second membre. Quant au second terme, c'est la solution de l'équation (2.14) avec le second membre. Ces deux termes ont une phase différente. En effet d'après les équations (2.16) et (2.18), les deux vecteurs d'onde ne sont généralement pas égaux ( $\vec{K}(2\omega) \neq \vec{K}_{nl}(2\omega)$ ). Ceci implique que la production de champ électromagnétique non linéaire est directement lié à l'accord de phase entre le premier et le second harmonique.

Dans un deuxième temps, nous pouvons dire que si les deux vecteurs d'onde ( $\vec{K}(2\omega)$  et  $\vec{K}_{nl}(2\omega)$ ) sont égaux (autrement dit à l'accord de phase  $\varepsilon(\omega) = \varepsilon(2\omega)$ ), le dénominateur en facteur du deuxième terme du champ électrique de l'équation (2.19) s'annule. Ceci n'est pas très physique, mais nous pouvons dire que dans ce cas la production de second harmonique est grandement exaltée. Nous introduisons ici la notion d'accord de phase soulignée dans de nombreux ouvrages <sup>[33,11]</sup>, mais nous n'irons pas plus loin dans son étude car les systèmes abordés dans notre étude ne peuvent pas générer d'accord de phase (voir annexe B).

Les résultats obtenus dans ce paragraphe ont été établi uniquement pour les matériaux isotropes non magnétiques. Cependant, nous n'avons pas fait de restriction sur la polarisation effective non linéaire. Ces résultats sont donc valables pour tous les types de sources non linéaires pourvu que la réponse linéaire du matériau à l'excitation électromagnétique soit isotrope. Le cas plus général d'un milieu anisotrope est traité dans le paragraphe suivant 2.3.2.

---

[33] R. W. BOYD, *Nonlinear optics* (Academic press, Inc, 1992).

[11] T. HEINZ, in *Second-Order Nonlinear Optical Effects at Surfaces and Interfaces*, H. Ponath & G. Stegeman, eds., (Elsevier, Amsterdam, 1991).

### 2.3.2 Milieux anisotropes.

Dans ce paragraphe, le matériau considéré est diélectrique anisotrope. La permittivité électrique relative  $\overleftarrow{\epsilon}(\omega_n)$  est un tenseur d'ordre deux :

$$\overleftarrow{\epsilon}(\omega) = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx}(\omega) & \epsilon_{xy}(\omega) & \epsilon_{xz}(\omega) \\ \epsilon_{yx}(\omega) & \epsilon_{yy}(\omega) & \epsilon_{yz}(\omega) \\ \epsilon_{zx}(\omega) & \epsilon_{zy}(\omega) & \epsilon_{zz}(\omega) \end{pmatrix}. \quad (2.20)$$

Ce qui implique que la partie linéaire de la polarisation effective n'est plus directement proportionnelle au champ électrique  $\vec{E}(\omega_n)$ . Les différentes composantes du champ électrique sont donc couplées dans l'équation de propagation. La résolution ne peut plus se faire directement comme dans le paragraphe 2.3.1, mais l'équation de propagation s'écrit sous la même forme :

$$\vec{r}\text{ot}(\vec{r}\text{ot}(\vec{E}(\omega_n))) - \frac{\overleftarrow{\epsilon}(\omega_n)\omega_n^2}{c^2}\vec{E}(\omega_n) = \mu_0\omega_n^2\vec{P}^{nl}(\omega_n). \quad (2.9)$$

Même si cela complique la résolution, elle se fait de manière similaire à la démarche utilisée dans le paragraphe 2.3.1. Elle est séparée en deux étapes. La première étape consiste à résoudre l'équation (2.9) sans second membre. Ensuite, nous ajoutons à ce résultat la solution particulière de cette même équation mais avec second membre.

Dans un premier temps, nous résolvons donc l'équation (2.9) à  $\omega$  qui ne comporte pas de second membre puisque les non linéarités à cette fréquences sont négligées :

$$\vec{r}\text{ot}(\vec{r}\text{ot}(\vec{E}(\omega))) - \frac{\overleftarrow{\epsilon}(\omega)\omega^2}{c^2}\vec{E}(\omega) = 0, \quad (2.21)$$

Cette résolution ne peut plus se faire directement puisque la partie linéaire de la permittivité électrique relative est un tenseur de rang deux (équation (2.20)). Pour résoudre ce système nous utilisons une méthode aux valeurs propres discutée dans la thèse de A. Vial.

Pour une onde plane, l'équation différentielle (2.21) devient algébrique,  $S(\omega).\vec{E}(\omega) = 0$ , avec :

$$S(\omega) = \begin{pmatrix} \frac{\epsilon_{xx}(\omega)\omega^2}{c^2} - \beta^2(\omega) - \gamma^2(\omega) & \frac{\epsilon_{xy}(\omega)\omega^2}{c^2} + \alpha(\omega)\beta(\omega) & \frac{\epsilon_{xz}(\omega)\omega^2}{c^2} + \alpha(\omega)\gamma(\omega) \\ \frac{\epsilon_{yx}(\omega)\omega^2}{c^2} + \alpha(\omega)\beta(\omega) & \frac{\epsilon_{yy}(\omega)\omega^2}{c^2} - \alpha^2(\omega) - \gamma^2(\omega) & \frac{\epsilon_{yz}(\omega)\omega^2}{c^2} + \beta(\omega)\gamma(\omega) \\ \frac{\epsilon_{zx}(\omega)\omega^2}{c^2} + \alpha(\omega)\gamma(\omega) & \frac{\epsilon_{zy}(\omega)\omega^2}{c^2} + \beta(\omega)\gamma(\omega) & \frac{\epsilon_{zz}(\omega)\omega^2}{c^2} - \alpha^2(\omega) - \beta^2(\omega) \end{pmatrix} \quad (2.22)$$

Il s'agit d'un système linéaire homogène dont le déterminant doit être nul. L'équation

$$\det(S) = 0 \quad (2.23)$$

conduit à une relation entre les composantes du vecteur d'onde,  $\omega$  et  $\overleftarrow{\epsilon}(\omega)$  qui est l'équation de dispersion.

Pour un système contenant des interfaces parallèles, nous choisissons l'axe  $z$  comme perpendiculaire aux

plans moyens des interfaces. En vertu des lois de Descartes, les composantes parallèles aux interfaces du vecteur d'onde  $\vec{K}(\omega)$  (équation (2.12)) vont être conservées dans tous les milieux.  $(\alpha(\omega), \beta(\omega))$  sont ainsi des paramètres du problème. Les solutions de  $\det(S(\omega)) = 0$  sont quatre composantes  $\gamma(\omega)$  distinctes du vecteur d'onde. En fait, nous avons deux couples de solutions opposées :

$$(\gamma_1(\omega), \gamma_2(\omega) \neq \gamma_1(\omega)) \quad \text{et} \quad (\gamma_3(\omega) = -\gamma_1(\omega), \gamma_4(\omega) = -\gamma_2(\omega)). \quad (2.24)$$

Ces quatre solutions sont les valeurs propres de l'opérateur  $S(\omega)$ . En injectant une à une ces quatre valeurs propres dans l'opérateur  $S(\omega)$  de l'équation (2.22), les vecteurs propres correspondants sont calculés en résolvant l'équation (2.21). La forme analytique de ces vecteurs propres est en général très complexe. Elles est discutée dans la thèse de A. Vial. Nous avons donc quatre vecteurs propres qui sont les quatre modes possibles du champ électrique correspondant chacun à une valeur propre ( $\vec{E}_\zeta(\omega)$  avec  $\zeta = (1, 2, 3, 4)$ ) :

$$\vec{E}_\zeta(\omega) = \vec{E}_{0\zeta}(\omega) e^{i(\vec{K}_\zeta(\omega) \cdot \vec{R} - \omega t)}, \quad (2.25)$$

Dans un milieu uniaxe,  $\vec{E}_1(\omega)$  et  $\vec{E}_2(\omega)$  sont les ondes ordinaire et extraordinaire. Dans un milieu optiquement actif,  $\vec{E}_1(\omega)$  et  $\vec{E}_2(\omega)$  sont des ondes elliptiques gauche ou droite.

Le champ total dans un tel milieu est donc la somme des différents modes :

$$\vec{E}(\omega) = \sum_{\zeta} \vec{E}_\zeta(\omega). \quad (2.26)$$

Dans la suite de cette thèse au paragraphe 4.2, nous résolvons les équations de Maxwell pour exprimer les champs présents dans le système en fonction de l'onde incidente. Dans cette optique, nous exprimons les vecteurs propres sous la forme du produit de leur norme par le vecteur exprimant leur polarisation :

$$\begin{aligned} \vec{E}_\zeta(\omega) &= E_\zeta(\omega, t) \vec{V}_\zeta(\omega) \\ &= E_{0\zeta}(\omega, t) \vec{V}_\zeta(\omega) e^{i(\vec{K}_\zeta(\omega) \cdot \vec{R} - \omega t)}, \end{aligned} \quad (2.27)$$

où  $\vec{V}_\zeta(\omega)$  est le vecteur unitaire indiquant la polarisation du mode  $\vec{E}_\zeta(\omega)$  et son amplitude est dénotée par  $E_{0\zeta}(\omega)$ . Dans ce formalisme, le vecteur  $V_\zeta$  est donné à partir de la valeur propre  $\gamma_\zeta$ . Ce vecteur n'est donc pas une inconnue contrairement à l'amplitude  $E_{0\zeta}$  et à  $\gamma_\zeta$  qui sont des variables dans les équations de Maxwell.

Les quatre solutions coexistent dans une couche de milieu anisotrope. Dans un milieu semi-infini, au maximum deux solutions peuvent être créées.

Pour le second harmonique, nous devons résoudre l'équation (2.9) en deux temps comme pour le paragraphe 2.3.1. Il faut toutefois se rappeler que la partie non linéaire de la polarisation effective au second harmonique est fonction du champ électrique au premier harmonique. Dans notre cas, le champ électrique à  $\omega$  est formé en général de quatre modes. La polarisation effective non linéaire est donc considérée comme

### 2.3. PROPAGATION DANS LES MILIEUX NON LINÉAIRES HOMOGENES.

---

une superposition de quatre ondes, ce qui donne seize termes :

$$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega) = \sum_{\zeta} \sum_{\zeta'} \vec{\mathbb{P}}_{\zeta\zeta'}^{nl} = \sum_{\zeta} \sum_{\zeta'} \vec{\mathbb{P}}_{0\zeta\zeta'}^{nl} e^{i(\vec{K}_{nl\zeta\zeta'}(2\omega) \cdot \vec{R} - 2\omega t)}, \quad (2.28)$$

où

$$\vec{K}_{nl\zeta\zeta'}(2\omega) = \vec{K}_{\zeta}(\omega) + \vec{K}_{\zeta'}(\omega). \quad (2.29)$$

Chaque partie  $\vec{\mathbb{P}}_{\zeta\zeta'}^{nl}$  peut être considérée comme une source non linéaire indépendante reliée à chacun des couples  $(\zeta, \zeta')$  des champs électriques du premier harmonique.

La résolution sans second membre se fait de la même manière que précédemment pour le premier harmonique. C'est-à-dire que nous avons quatre modes possibles  $\vec{E}_{\zeta}(2\omega)$  correspondant aux valeurs propres  $\gamma_{\zeta}(2\omega)$ . Ces valeurs propres sont toujours les composantes  $z$  des vecteurs d'onde  $\vec{K}_{\zeta}(2\omega)$  des différents modes  $\zeta$ .

Nous considérons que la solution particulière  $\vec{E}_p(2\omega)$  de l'équation (2.9) pour le second harmonique est la somme des solutions particulières  $\vec{E}_{p\zeta\zeta'}(2\omega)$  obtenues en ne tenant compte que d'une source non linéaire  $\vec{\mathbb{P}}_{\zeta\zeta'}^{nl}$  à la fois :

$$\vec{E}_p(2\omega) = \sum_{\zeta} \sum_{\zeta'} \vec{E}_{p\zeta\zeta'}(2\omega). \quad (2.30)$$

Les différentes solutions  $\vec{E}_{p\zeta\zeta'}(2\omega)$  sont obtenues de la même façon que celle du paragraphe 2.3.1 en cherchant une solution particulière à l'équation :

$$S(2\omega) \vec{E}_{p\zeta\zeta'}(2\omega) = 4\mu_0 \omega^2 \vec{\mathbb{P}}_{\zeta\zeta'}^{nl}(2\omega), \quad (2.31)$$

où  $S(2\omega)$  est donné par la relation (2.22) dans laquelle il faut remplacer  $\omega$  par  $2\omega$ . Les solutions particulières sont choisies pour avoir le même vecteur d'onde que la polarisation non linéaire considérée :

$$\vec{E}_{p\zeta\zeta'}(2\omega) = \vec{E}_{0p\zeta\zeta'}(2\omega) e^{i(\vec{K}_{nl\zeta\zeta'}(p_x, p_y, z, 2\omega) \cdot \vec{R} - 2\omega t)}. \quad (2.32)$$

Toutefois, le résultat analytique est trop complexe pour être exploitable à cause du couplage entre les différentes composantes dans le système d'équations engendré par la relation (2.22). L'étude de la propagation d'une onde électromagnétique est donc fait de façon numérique.

Si nous reprenons le cas particulier où  $\epsilon(\omega_n)$  est un tenseur diagonal dont tous les termes sont égaux, tous les modes sont confondus aussi bien pour le premier que pour le second harmonique. Autrement dit, nous retrouvons les résultats du cas isotrope développé dans le paragraphe 2.3.1. Le cas des matériaux isotropes est donc un cas particulier du cas général traitant l'anisotropie des matériaux.

Pour conclure le cas général, nous avons le champ électrique du premier harmonique qui possède quatre modes généralement distincts. Ces quatre modes sont à l'origine des seize termes de la polarisation effective non linéaire (équation (2.28)). La solution générale pour le second harmonique à l'équation (2.9) est la somme des solutions particulières et des solutions sans second membre :

$$\vec{E}(2\omega) = \sum_{\zeta} \vec{E}_{\zeta}(2\omega) + \sum_{\zeta} \sum_{\zeta'} \vec{E}_{p\zeta\zeta'}(2\omega). \quad (2.33)$$



Il est à noter que cette solution générale ne peut pas être trouvée analytiquement. Cependant dans certaine configuration, le développement analytique de cette solution est possible comme dans l'article de Bloembergen *et al.*<sup>[34]</sup>.

Il faut enfin remarquer que tout comme dans le paragraphe précédent, la discussion sur la génération de second harmonique est indépendante de l'origine des sources non linéaires. La seule restriction à leur sujet est qu'elles soient de pulsation égale à deux fois la pulsation du premier harmonique. Nous pouvons donc appliquer ces résultats dans n'importe quel cas.

## 2.4 Conclusion.

Les effets non linéaires quels qu'ils soient sont naturellement compris dans le formalisme des équations de Maxwell (2.1). Ces équations décrivent le comportement non linéaire des ondes électromagnétiques<sup>1</sup> dans n'importe quel matériau, sans pour autant ajouter de sources extérieures. Ces sources non linéaires sont déjà prises en compte dans l'écriture des équations de Maxwell (voir équations (2.1c'-2.3)). À fortiori, cette remarque reste vraie pour la génération de second harmonique. Dans ce chapitre, nous avons laissé de côté toutes les autres sources non linéaires. C'est d'ailleurs le cas aussi dans la plus grande partie de ce document puisque nous nous concentrons principalement sur l'effet non linéaire de génération de second harmonique optique. Nous avons donc traité le cas où seules ces deux fréquences optiques étaient présentes. Nous avons ensuite remarqué que le premier harmonique et le second harmonique étaient généralement couplés, mais qu'ils peuvent être étudiés séparément dans l'hypothèse où les effets non linéaires restent négligeables devant les effets linéaires. Cette hypothèse implique donc que les équations de Maxwell peuvent se résoudre pour  $\omega$  puis pour  $2\omega$ .

Nous avons ensuite énoncé deux méthodes pour résoudre les équations de Maxwell. La première résout le système d'équations dans le domaine temporel (espace direct), la deuxième dans le domaine fréquentiel (espace de Fourier ou réciproque). Ces deux méthodes sont reprises dans le chapitre 4 plus précisément pour des cas particuliers. Qu'il s'agisse de l'une ou de l'autre des méthodes, le principe est similaire : il est basé sur la résolution d'une équation de propagation. Alors, le premier harmonique est déterminé sans tenir compte des effets non linéaires pour cette fréquence. Ensuite, la polarisation effective non linéaire au second harmonique est déduite du résultat du premier harmonique. Ceci permet enfin de résoudre les équations de Maxwell pour le second harmonique et d'en déduire le champ électromagnétique résultant. Dans un dernier paragraphe, nous avons étudié la propagation d'une onde électromagnétique dans les milieux isotropes et anisotropes. Dans les matériaux anisotropes, le champ électromagnétique possède quatre modes propres. En fait, dans ce cas, les quatre modes des milieux anisotropes sont dégénérés. L'anisotropie lève donc la dégénérescence sur la polarisation du champ et sur son vecteur d'onde. La discussion est

---

<sup>1</sup>c.à.d. génération d'harmonique, somme de fréquence, effet Kerr optique, ...

---

[34] N. BLOEMBERGEN & P. PERSHAN, "Light waves at boundary of non-linear media," Phys. Rev. **128**, 606–22 (1962).

aussi valable pour le second harmonique même si les sources non linéaires sont d'origines et d'expressions différentes pour les deux types de matériaux.

Il nous est donc possible grâce aux équations de Maxwell de décrire la propagation des champs électromagnétiques dans n'importe quel type de matériau. En particulier, nous sommes capables de caractériser la propagation du second harmonique généré dans différents milieux. Toutefois, nous n'avons pas explicité la polarisation effective non linéaire du second harmonique  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}$ . C'est le but du chapitre suivant, dans lequel nous déterminons les sources non linéaires pour différents types de symétries de matériaux. Dans ce chapitre, la différence ne se fait pas entre les matériaux isotropes et anisotropes, mais entre les matériaux centrosymétriques et non centrosymétriques.

# SOURCES NON LINÉAIRES

---

## Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Introduction. . . . .</b>	<b>26</b>
<b>3.2</b>	<b>Détermination des sources non linéaires dans l'approximation dipolaire ou locale. .</b>	<b>27</b>
<b>3.3</b>	<b>Extension aux effets non locaux. . . . .</b>	<b>31</b>
<b>3.4</b>	<b>Modifications des sources non linéaires dues à la présence d'une interface. . . . .</b>	<b>36</b>
<b>3.5</b>	<b>Discussion. . . . .</b>	<b>42</b>

---

### 3.1 Introduction.

Nous considérons que les sources non linéaires introduites au chapitre précédent sont uniquement à l'origine de la génération de second harmonique optique (c.à.d. une onde électromagnétique dont la pulsation est le double de celle de l'onde incidente). Elles sont représentées dans le chapitre 2 par le vecteur polarisation effective non linéaire :  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega)$ . Ici, nous discutons les différents effets qui contribuent à la formation de ces sources et leurs domaines de prédominance dans différents types de matériaux.

Les sources étudiées ici génèrent le second harmonique et apparaissent dans les équations de Maxwell sous la forme de la polarisation non linéaire  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega)$ .

L'approche quantique permet de calculer les vecteurs de polarisation non linéaire pour les atomes et les molécules, ce qui donne un développement multipolaire (équation (2.3)). Le passage au gaz et au liquide est plus ou moins trivial. Le passage au solide est délicat, il faut des relations de Clausius-Mosotti généralisées aux effets non linéaires. Armstrong *et al.* ont modélisé les effets non linéaires optiques dans des milieux diélectriques grâce à l'approche quantique<sup>[35]</sup>. Très rapidement, les regards se sont tournés vers les métaux. Ces matériaux, souvent centrosymétriques, devaient avoir un tenseur de susceptibilité non linéaire nul suivant la théorie sur les matériaux non centrosymétriques. Cependant, Pershan détermine théoriquement l'existence de sources de second harmonique dans les matériaux centrosymétriques<sup>[36]</sup>. Brown *et al.* mettent en évidence expérimentalement la génération de second harmonique (SHG) dans ce genre de matériaux<sup>[37]</sup>. Les effets des sources de volumes et de surfaces sont ensuite très longuement discutés<sup>[8,38,12,39]</sup>.

Pour éviter ces calculs, nous faisons une approche macroscopique des effets non linéaires identique à celle développée pour les effets linéaires<sup>[32]</sup>. Cette approche macroscopique de la génération de second harmonique est utilisée par Y.R. Shen<sup>[40]</sup>.

- 
- [35] J. ARMSTRONG, N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING & P. PERSHAN, "Interactions between light waves in nonlinear dielectric," *Phys. Rev.* **127**, 1918–39 (1962).
  - [36] P. PERSHAN, "Nonlinear optical properties of solids : energy considerations," *Phys. Rev.* **130**, 919–29 (1963).
  - [37] F. BROWN, R.E.PARKS & A. SLEEPER, "Nonlinear optical reflection from a metallic boundary," *Phys. Rev. Let.* **14**, 1029–31 (1965).
  - [8] N. BLOEMBERGEN, R. CHANG, S. JHA & C. LEE, "Optical second harmonic generation in reflexion from media with inversion symmetry," *Phys. Rev.* **174**, 813–22 (1968).
  - [38] J. RUDNICK & E. STERN, "Second-harmonic radiation from metal surface," *Phys. Rev. B* **4**, 4274–4290 (1971).
  - [12] J. SIPE, C. SO, M. FUKUI & G. STEGEMAN, "Analysis of second-harmonic generation at metal surfaces," *Phys. Rev. B* **21**, 4389–402 (1980).
  - [39] P. GUYOT-SIONNEST & Y. SHEN, "Local and nonlocal surface nonlinearities for surface optical second-harmonic generation," *Phys. Rev. B* **35**, 4420–6 (1987).
  - [32] J. JACKSON, *Classical electrodynamics* (Jhon Wiley & Sons, New York, 1998).
  - [40] Y. SHEN, *The principles of nonlinear optics* (A Wiley-interscience Publication, New York, 1984).

Dans un premier temps, nous considérons que les milieux sont homogènes. Autrement dit, il n'existe aucune surface. Nous discutons d'abord des sources de second harmoniques dans les milieux non centrosymétriques, puis celles des matériaux possédant un centre d'inversion de symétrie. Dans un deuxième temps, les effets de surface ne sont plus négligés. Nous étudions leurs influences dans les différents types de matériaux rencontrés dans le premier point.

Certes, cette étude ne peut pas être considérée comme rigoureuse, mais elle a l'avantage de définir simplement les différentes origines des sources non linéaires et leurs champs de validité, tout en restant qualitativement en corrélation avec des résultats plus rigoureux. Pour des études plus rigoureuses, il nous faut revenir aux calculs quantiques qui nous permettent de définir quantitativement les effets non linéaires en tenant compte des effets de surface<sup>[9,38]</sup>, des contributions des électrons de valence et libres<sup>[8]</sup>.

## 3.2 Détermination des sources non linéaires dans l'approximation dipolaire ou locale.

Dans l'approximation dipolaire, l'interaction entre les champs électromagnétiques et la matière se fait de manière locale. Dans ce cas, il est donc considéré qu'un atome en un point est uniquement sensible au champ en ce point et que les effets dus à la variation du champ autour de la position initiale sont négligeables. Cette approximation n'est valable que pour des matériaux dans lesquels le déplacement des électrons dû à l'application d'un champ reste négligeable devant la distance nécessaire pour que la variation de ce champ soit appréciable. Dans cette approximation, la génération de second harmonique ne peut être modélisée que pour des matériaux n'ayant pas d'électrons libres. En d'autres termes, nous modéliserons uniquement les matériaux diélectriques en utilisant l'approche locale pour l'interaction matière rayonnement. Pour modéliser le mouvement de l'électron lié à son noyau créé par un champ exciteur, nous utilisons le modèle de l'oscillateur anharmonique<sup>[40]</sup>.

### 3.2.1 Modélisation de l'interaction matière rayonnement dans les matériaux diélectriques.

Pour des matériaux diélectriques, il n'y a pas de porteurs de charges libres. Les électrons sont donc tous liés au noyau de l'atome. Ce sont des électrons de valence. La polarisation linéaire peut être décrite en considérant l'ensemble électrons noyau comme un oscillateur harmonique soumis à un champ électromagnétique. La force appliquée à cet oscillateur dérive du champ, c'est la force de Lorentz :

$$\vec{F} = q(\vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B}), \quad (3.1)$$

---

[9] P. GUYOT-SIONNEST, W. CHEN & Y. SHEN, "General considerations on optical second-harmonic generation from surfaces and interfaces," *Phys. Rev. B* **33**, 8254–63 (1986).

### 3.2. DÉTERMINATION DES SOURCES NON LINÉAIRES DANS L'APPROXIMATION DIPOLAIRE OU LOCALE.

---

où  $q$  est la charge de l'électron alors que les vecteurs  $\vec{v}$ ,  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  sont respectivement le vecteur vitesse de l'électron, le champ électrique et le champ magnétique. Dans un diélectrique nous considérons que la vitesse de l'électron est toujours négligeable devant celle de la lumière ( $c$ ). Il en découle que la force appliquée à l'oscillateur dans ce cas est la force de Coulomb :

$$\vec{F} = q\vec{E}. \quad (3.2)$$

C'est dans le potentiel anharmonique de l'oscillateur que les non linéarités apparaissent dans ce modèle. Pour simplifier la discussion, nous prenons un oscillateur anharmonique à une dimension avec perte repéré par son vecteur position  $\vec{r} = (x, y, z)$ . Le champ excitateur est une onde plane polarisée selon la direction de liberté de l'oscillateur (nous l'appellerons  $x$ ) et elle se propage dans une direction perpendiculaire (notée  $z$ ) suivant son vecteur d'onde  $\vec{k} = (\alpha, \beta, \gamma)$  dont la composante non nulle est  $\gamma$  suivant  $z$ . Sa pulsation est  $\omega$ . Alors, le champ électrique s'écrit :

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y = 0 \\ E_z = 0 \end{pmatrix} e^{i(\gamma z - \omega t)} \quad (3.3)$$

et d'après l'équation (2.1a), le champ magnétique devient  $\vec{B} = -i \frac{\text{rot}(\vec{E})}{\omega}$  avec  $i = \sqrt{-1}$ .

Nous pouvons donc déterminer le mouvement de l'électron grâce à son équation de mouvement (écrite en notation complexe) dans un potentiel harmonique corrigé par un potentiel anharmonique :

$$\frac{\partial^2 x}{\partial t^2} + a \frac{\partial x}{\partial t} + (\omega_0)^2 x + bx^2 = \frac{q}{m} E_x e^{i(\gamma z - \omega t)}. \quad (3.4)$$

Dans cette équation,  $m$  est la masse de l'électron,  $a$  représente le facteur d'amortissement,  $\omega_0$  la pulsation propre de l'oscillateur (liée au potentiel harmonique) et  $b$  le facteur de non linéarité quadratique (lié au potentiel anharmonique). Cette dernière est considérée comme très faible et peut être traitée comme une perturbation. Ainsi en reprenant la solution de l'oscillateur harmonique,

$$x(\omega) = \frac{qE_x e^{i(\gamma z - \omega t)}}{m(-\omega^2 + (\omega_0)^2 - ia\omega)}, \quad (3.5)$$

et en l'injectant dans l'expression de la non linéarité quadratique de l'équation (3.4), nous obtenons le déplacement de l'électron pour la fréquence du second harmonique :

$$x(2\omega) = - \frac{q^2 b E_x^2 e^{2i(\gamma z - \omega t)}}{m^2(-4\omega^2 + (\omega_0)^2 - 2ia\omega)(-\omega^2 + (\omega_0)^2 - ia\omega)^2}. \quad (3.6)$$

Si nous supposons que notre matériau peut être modélisé par un ensemble de  $N$  oscillateurs anharmoniques tous formés d'un électron lié à son noyau, la polarisation non linéaire  $P^{nl}$  sera la somme des contributions de chaque oscillateur :

$$P^{nl}(2\omega) = Nqx(2\omega). \quad (3.7)$$

En remplaçant  $x(2\omega)$  par sa forme analytique de l'équation (3.6), la polarisation non linéaire s'écrit de la façon suivante :

$$P^{nl}(2\omega) = \chi_{xxx} E_x^2 e^{2i(\gamma z - \omega t)}, \quad (3.8)$$

où  $\chi_{xxx}$  est la susceptibilité non linéaire du matériau. Dans notre cas, elle se déduit des équations (3.6) et (3.8) :

$$\chi_{xxx} = -\frac{Nq^3b}{m^2(-\omega^2 + \omega_0^2 - ia\omega)^2(-4\omega^2 + \omega_0^2 - 2ia\omega)}. \quad (3.9)$$

Ce travail peut être effectué dans un modèle à trois dimensions en incluant la non linéarité quadratique dans les équations de mouvement (3.4) pour chaque composante. Cette non linéarité peut être complétée en tenant compte du couplage entre chaque composante. Alors, l'équation (3.4) devient :

$$\frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} + A \frac{\partial \vec{r}}{\partial t} + \Omega_0^2 \vec{r} + B : \vec{r}\vec{r} = \frac{q}{m} \vec{E} e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)}, \quad (3.10)$$

où  $\vec{r}$  est le vecteur position de l'électron ( $\{x, y, z\}$ ),  $A$  et  $\Omega_0$  sont respectivement les tenseurs généralisés d'amortissement et de pulsation propre de rang deux.  $B$  est le tenseur de rang trois représentant la non linéarité quadratique avec les différents couplages entre les composantes<sup>1</sup> :

$$B = \begin{pmatrix} b_{xxx} & b_{xyy} & b_{xzz} & b_{xyz} & b_{xxz} & b_{xxy} \\ b_{yxx} & b_{yyy} & b_{yzz} & b_{yyz} & b_{yyz} & b_{yxy} \\ b_{zxx} & b_{zyy} & b_{zzz} & b_{zyz} & b_{zxx} & b_{zxy} \end{pmatrix}. \quad (3.11)$$

Ce tenseur fait l'objet d'un double produit tensoriel (dénnoté par le symbole “:”) avec le vecteur  $\vec{r}$ .

La source non linéaire  $\vec{P}^{nl}$  pour l'extension à trois dimensions est une généralisation de l'équation (3.8) :

$$\vec{P}^{nl}(2\omega) = \chi(2\omega : \omega, \omega) : \vec{E}_0(\omega) \vec{E}_0(\omega) e^{2i(\vec{k}(\omega) \cdot \vec{r} - \omega t)}, \quad (3.12)$$

où  $\chi(2\omega : \omega, \omega)$  est le tenseur de susceptibilité non linéaire de rang trois.

La polarisation non linéaire à la pulsation  $2\omega$  déduite de l'approximation dipolaire est de forme quadratique. De plus, elle ne fait intervenir que le caractère local du champ exciteur de pulsation  $\omega$  (aucune dérivée du champ). Cette forme est couramment utilisée dans les matériaux diélectriques. Toutefois, le caractère tensoriel de cette source la rend dépendante de la structure cristalline du matériau. C'est pourquoi il est nécessaire de discuter des domaines d'application de cette approximation.

### 3.2.2 Discussion quantitative et qualitative du modèle dipolaire.

Une des hypothèses de ce modèle est que le potentiel anharmonique de l'équation (3.4) soit traité comme une perturbation. En d'autres termes, la polarisation non linéaire  $\vec{P}^{nl}$  doit rester faible devant

<sup>1</sup>Dans le cas à une dimension sans couplage entre les composantes, traité plus avant, seul le terme  $b_{xxx}$  est non nul

### 3.2. DÉTERMINATION DES SOURCES NON LINÉAIRES DANS L'APPROXIMATION DIPOLAIRE OU LOCALE.

---

la polarisation linéaire  $\vec{P}^l$ . Pour vérifier cette hypothèse, nous revenons au cas simple de l'oscillateur anharmonique à une dimension de la section précédente 3.2.1 et nous supposons que nous sommes loin de la résonance, c'est-à-dire que la pulsation propre de l'oscillateur est nettement supérieure aux fréquences optiques non linéaires et linéaires :  $\omega_0 \gg 2\omega > \omega$ . Le résultat des équations (3.8) et (3.9) montre le terme de polarisation non linéaire explicité en fonction des divers paramètres de l'oscillateur anharmonique et du champ exciteur. En suivant le même raisonnement que pour la polarisation non linéaire, l'équation (3.5) donnant le déplacement de l'électron pour une pulsation  $\omega$  et l'équation (3.7) exprimée en fonction de  $\omega$ , nous permettent de définir la polarisation linéaire en fonction des mêmes paramètres que la polarisation non linéaire. Ainsi, nous donnons le rapport entre la polarisation non linéaire et linéaire :

$$R_{nl/l} = \left| \frac{P^{nl}}{P^l} \right| = \left| \frac{qbE}{m\omega_0^4} \right|. \quad (3.13)$$

Les grandeurs présentes dans l'extrême partie droite de l'équation (3.13) sont des grandeurs quantifiables sauf  $b$ , le coefficient lié au potentiel anharmonique définissant la non linéarité quadratique. Nous allons donc nous placer dans le cas où l'interaction entre la matière et le champ est telle que le déplacement de l'électron lié au noyau soit très grand. L'amplitude de ce déplacement implique alors que les forces des potentiels harmonique et anharmonique sont du même ordre de grandeur :  $m\omega_0^2 x(\omega) \sim mb(x(\omega))^2$ . Nous supposons aussi que les forces mises en jeu pour faire vibrer l'électron soient du même ordre de grandeur que la force d'ionisation :  $F_i = qE_{at}$  ( $E_{at}$  est le champ électrique atomique). Ces forces ne doivent pas dépasser la limite d'ionisation pour rester dans le cas des électrons liés à leur noyau. Ces équivalences nous permettent de donner un ordre de grandeur à la force atomique en fonction des paramètres de l'oscillateur :

$$|E_{at}| \sim \left| \frac{m\omega_0^2}{qb} \right|. \quad (3.14)$$

Alors en injectant cette dernière équation (3.14) dans l'équation (3.13), on obtient une nouvelle relation pour le rapport  $R_{nl/l}$  :

$$R_{nl/l} \sim \left| \frac{E}{E_{at}} \right|. \quad (3.15)$$

Nous pouvons donner un ordre de grandeur au module du champ électrique atomique en l'exprimant sous la forme :

$$|E_{at}| = \frac{q}{4\pi\epsilon_0 r^2}, \quad (3.16)$$

où  $\epsilon_0$  est la permittivité électrique du vide et  $r$  le rayon de l'atome d'hydrogène dans le modèle de Bohr. Cette expression donne un ordre de grandeur pour le module du champ atomique de  $10^{11}Vm^{-1}$ . Cet ordre de grandeur explique pourquoi il a fallu attendre l'invention du laser pour observer des effets non linéaires optiques. En effet, le module du champ lumineux du soleil étant de l'ordre de  $10^3Vm^{-1}$  et grâce à l'équation (3.15), nous trouvons un rapport  $10^{-8}$  entre les effets non linéaires et linéaires. À l'époque de l'invention du laser, le potentiel expérimental ne permettait pas de détecter des champs aussi faibles.



Mais grâce au laser, des énergies menant à des modules de champ électrique de l'ordre  $10^9 \text{Vm}^{-1}$  sont envisageables. Ainsi, le rapport  $R_{nl/l}$  est de l'ordre de  $10^{-2}$ , ce qui ramène la production d'effets non linéaires à des ordres de grandeurs détectables. En règle générale, nous pouvons dire que les phénomènes non linéaires sont toujours moins intenses que l'excitation qui les génère. Il faut toutefois rester prudent dans le traitement théorique de ces effets : si les non linéarités très faibles peuvent être considérées comme des perturbations négligeables dans la variation de l'intensité excitatrice, certaines induisent un transfert d'énergie de la fréquence d'excitation sur la fréquence non linéaire. Dans ce dernier cas, nous devons traiter ensemble les effets linéaires et non linéaires en les couplant à travers les équations de Maxwell. Dans le premier cas, les deux effets sont traités séparément.

Comme nous l'avons évoqué dans la section 3.2.1, les effets non linéaires sont sensibles à l'anisotropie dans le volume du matériau considéré. En effet, au travers des équations (3.11) et (3.12), la polarisation non linéaire dépend de coefficients eux mêmes dépendant de la direction qu'ils représentent. Autrement dit, la réponse non linéaire du matériau n'est pas la même suivant la polarisation et l'angle d'incidence du champ exciteur. Ainsi, les tenseurs  $B$  et  $\chi(2\omega : \omega, \omega)$  ont leurs coefficients déterminés pour chaque classe cristalline <sup>[41]</sup>. Nous montrons au chapitre 2 que les classes cristallines comportant un centre de symétrie dans leur ensemble d'opérateurs de symétrie ont un tenseur de susceptibilité non linéaire  $\chi(2\omega : \omega, \omega)$  nul. Par ce résultat, il vient que les matériaux centrosymétriques n'ont pas d'effets non linéaires d'ordre deux dus à une interaction dipolaire du champ électromagnétique avec la matière. Dans ces matériaux, il existe tout de même des effets non linéaires d'ordre deux. Ces effets ne sont pas définis par l'approximation dipolaire. Ils apparaissent dans une étude ne négligeant pas les contributions supérieures du développement multipolaire rencontré dans l'équation (2.3).

### 3.3 Extension aux effets non locaux.

Nous prenons en compte des sources non linéaires écartées auparavant pour s'affranchir des restrictions du cas précédent. Pour ce faire, nous regardons la variation du champ exciteur autour du point représentant la position de l'atome. Autrement dit, les effets non locaux sont introduits dans notre modèle. Cette étude est séparée en deux parties :

- Dans un premier temps, les effets non linéaires sont dus uniquement aux électrons liés au noyau. Le mouvement à la fréquence d'excitation d'un de ces électrons est toujours modélisé par un oscillateur harmonique amorti. Les non linéarités sont, quant à elles, introduites par la force excitatrice. En effet, alors que dans le cas de la fréquence fondamentale, le deuxième terme de la force de Lorentz (équation (3.1)) est négligé, il est pris en compte comme une quantité perturbative pour le second harmonique. C'est à travers ce terme que les non linéarités d'ordre deux apparaissent<sup>[40]</sup>.

---

[41] R. WEAST, *Handbook of lasers* (Chemical Rubber Co., 1971).

[40] Y. SHEN, *The principles of nonlinear optics* (A Wiley-interscience Publication, New York, 1984).

- Dans un deuxième temps, nous étudions la contribution des électrons libres dans la création des effets non linéaires d'ordre deux. La force à laquelle sont soumis ces électrons est toujours la force de Lorentz (équation (3.1)). Puisque ce sont des particules libres, leur mouvement à la fréquence d'excitation n'est plus tributaire d'un potentiel harmonique. Toutefois nous tenons compte des frottements<sup>[31]</sup>.

### 3.3.1 Contribution des électrons liés aux sources non linéaires

Dans ce paragraphe nous traitons l'influence des électrons liés à un noyau dans la production d'effets non linéaires. En première approche, le mouvement de ces électrons est modélisé par la vibration d'un oscillateur harmonique amorti. Dans un deuxième temps, les non linéarités sont introduites au travers de la force de Lorentz. L'équation de mouvement d'un de ces électrons autour de son noyau est :

$$\frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} + a \frac{\partial \vec{r}}{\partial t} + \omega_0^2 \vec{r} = \frac{q}{m} (\vec{E}(\omega) + \vec{v} \wedge \vec{B}(\omega)) \quad (3.17)$$

où  $a$  et  $\omega_0$  sont respectivement le coefficient d'amortissement et la pulsation propre de l'oscillateur harmonique.  $\vec{v} = \frac{\partial \vec{r}}{\partial t}$  est la vitesse de l'électron. L'onde formée par le champ électrique  $\vec{E}$  et magnétique  $\vec{B}$  est toujours une onde plane. Si on néglige le deuxième terme du membre de droite de l'équation (3.17), nous retrouvons l'équation de mouvement d'un oscillateur harmonique dont on extrait le vecteur position de l'électron excité à la fréquence excitatrice :

$$\vec{r}(\omega) = \frac{q\vec{E}(\omega)}{m(-\omega^2 + \omega_0^2 - ia\omega)}. \quad (3.18)$$

Cette solution est ensuite réinjectée dans l'équation (3.17) dans laquelle nous ne négligeons plus le deuxième terme de la force de Lorentz. Dans ce terme, le vecteur vitesse  $\vec{v}$  est remplacé par sa forme déduite de l'équation (3.18). Ainsi, une nouvelle excitation  $\vec{F}^{nl}$  apparaît :

$$\vec{F}^{nl} = \frac{q}{m} \frac{\partial \vec{r}(\omega)}{\partial t} \wedge \vec{B}(\omega). \quad (3.19)$$

Sa pulsation est  $2\omega$ . Le premier terme de la force de Lorentz  $q\vec{E}(\omega)$  n'a aucune contribution à cette pulsation. Le mouvement de l'électron autour de son noyau excité à la pulsation  $2\omega$  est déduit de l'équation suivante :

$$\frac{\partial^2 \vec{r}(2\omega)}{\partial t^2} + a \frac{\partial \vec{r}(2\omega)}{\partial t} + \omega_0^2 \vec{r}(2\omega) = \vec{F}^{nl} \quad (3.20)$$

La position de l'électron pour cette pulsation est donnée par :

$$\vec{r}(2\omega) = -i \frac{q^2 \omega \vec{E}(\omega) \wedge \vec{B}(\omega)}{m^2 (-\omega^2 + \omega_0^2 - ia\omega) (-4\omega^2 + \omega_0^2 - 2ia\omega)}. \quad (3.21)$$

[31] N. BLOEMBERGEN, *Nonlinear optics* (W.A. Benjamin, New York, 1965).

Cette solution est définie non seulement en fonction du champ électrique local à l'atome mais aussi en fonction du champ magnétique qui s'exprime, grâce aux équations de Maxwell, en fonction des dérivées du champ électrique. Ceci introduit le caractère non local de notre solution.

Comme dans la section 3.2.1, nous considérons que le matériau est constitué de  $N$  oscillateurs indépendants. La polarisation, qu'elle soit linéaire ou non, est la somme de la contribution de chacun des  $N$  oscillateurs :

$$\begin{aligned}\vec{\mathbb{P}}^l &= Nq\vec{r}(\omega) \\ \vec{\mathbb{P}}^{nl} &= Nq\vec{r}(2\omega)\end{aligned}\quad (3.22)$$

Dans ce modèle, la contribution des électrons liés à la production d'effets non linéaires d'ordre deux est décrite par l'équation suivante :

$$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega) = -i \frac{Nq^3 \omega \vec{E}(\omega) \wedge \vec{B}(\omega)}{m^2(-\omega^2 + \omega_0^2 - ia\omega)(-4\omega^2 + \omega_0^2 - 2ia\omega)}.\quad (3.23)$$

On pose :

$$\kappa_{lié}(2\omega) = -i \frac{Nq^3 \omega}{m^2(-\omega^2 + \omega_0^2 - ia\omega)(-4\omega^2 + \omega_0^2 - 2ia\omega)}.\quad (3.24)$$

Cette constante est indépendante des champs  $\vec{E}(\omega)$  et  $\vec{B}(\omega)$ .

Dans ce modèle, nous voulons aussi tenir compte des électrons libres, mais leur mouvement n'est pas soumis à un potentiel harmonique comme c'est le cas dans cette partie. Il faut donc écrire de nouvelles conditions de mouvement pour ce type d'électrons afin d'obtenir leur contribution à la production de non linéarités d'ordre deux.

### 3.3.2 Contribution des électrons libres aux sources non linéaires

Dans cette partie, nous considérons des matériaux où seuls les électrons libres produisent des effets non négligeables. Nous utilisons cette approximation dans l'étude d'effets non linéaires dans les métaux. L'étude d'un gaz d'électrons soumis à un champ permet de modéliser ce genre de matériaux lorsqu'ils sont excités. Les électrons de ce gaz sont soumis à la force de Lorentz (membre de droite de l'équation (3.17)), ainsi qu'à une force de frottement. Les différents termes caractérisant le mouvement des électrons libres sont détaillés dans l'équation suivante :

$$\frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} + a' \frac{\partial \vec{r}}{\partial t} = \frac{q}{m} (\vec{E}(\omega) + \vec{v} \wedge \vec{B}(\omega)),\quad (3.25)$$

où  $a'$  est le coefficient de frottement. La résolution est la même que pour les électrons liés. Il suffit de faire  $\omega_0 = 0$  dans les équations (3.23) et (3.24) pour obtenir la solution des électrons libres :

$$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega) = -i \frac{Nq^3 \omega \vec{E}(\omega) \wedge \vec{B}(\omega)}{m^2(-\omega^2 - ia'\omega)(-4\omega^2 - 2ia'\omega)}.\quad (3.26)$$

On pose :

$$\kappa_{lib}(2\omega) = -i \frac{Nq^3\omega}{m^2(-\omega^2 - ia'\omega)(-4\omega^2 - 2ia'\omega)}. \quad (3.27)$$

Cette constante, comme  $\kappa_{lié}$ , est indépendante des champs  $\vec{E}(\omega)$  et  $\vec{B}(\omega)$ .

Cette contribution, comme celle due aux électrons de valence, a été négligée dans la première approche de la section 3.2. Cette hypothèse est vérifiée dans le paragraphe suivant . De plus, contrairement au résultat de la section 3.2, les sources non linéaires dues aux électrons libres et liés ne sont pas celles utilisées couramment dans la littérature pour ce genre de matériaux (centro-symétriques, conducteurs). Il nous faut donc relier les résultats de cette section aux formes analytiques employées pour ces matériaux.

### 3.3.3 Discussion sur les sources non linéaires dans un modèle non local.

Les sources non linéaires déterminées pour les électrons libres et liés respectivement dans les sections 3.3.2 et 3.3.1 sont de forme analytique comparable, mais ne correspondent pas à ce qui est couramment trouvé dans la littérature. Toutefois, il est possible d'utiliser les identités vectorielles et les équations de Maxwell pour modifier les résultats précédents. Pour ne pas répéter deux fois le même principe, nous allons utiliser le fait que les deux résultats soient analytiquement comparables pour grouper les deux études. Ainsi, nous considérons une polarisation non linéaire qui représente les deux résultats :

$$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega) = \kappa(2\omega)\vec{E}(\omega) \wedge \vec{B}(\omega), \quad (3.28)$$

où  $\kappa(2\omega)$  peut aussi bien représenter le coefficient pour les électrons liés que celui pour les électrons libres.

En utilisant l'équation de Maxwell (2.1a) et en négligeant la dépendance temporelle, l'équation (3.28) devient :

$$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega) = \kappa(2\omega)\vec{E}(\omega) \wedge \vec{rot}(\vec{E}(\omega)). \quad (3.29)$$

En utilisant une identité vectorielle, nous modifions la forme analytique des sources non linéaires en lui donnant une expression connue :

$$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega) = \kappa(2\omega)\left(\frac{1}{2}\vec{grad}(\vec{E}(\omega) \cdot \vec{E}(\omega)) - (\vec{E}(\omega) \cdot \vec{grad})\vec{E}(\omega)\right). \quad (3.30)$$

Cette expression des sources non linéaires se retrouve dans plusieurs publications. Cette expression est donc utilisée pour modéliser les sources non linéaires des matériaux centrosymétriques dans la suite de notre travail.

Dans de nombreux travaux<sup>[42,10]</sup>, les sources non linéaires sont définies par un développement multipolaire. Il serait donc judicieux de relier les sources non linéaires dans les matériaux centrosymétriques à un

[42] N. BLOEMBERGEN, R. CHANG & C. LEE, "Second harmonic generation of light in reflection from media with inversion symmetry," Phys. Rev. Let. **16**, 986–89 (1966).

[10] J. SIPE, D. MOSS & H. VAN DRIEL, "Phenomenological theory of optical second- and third-harmonic generation from cubic and centrosymmetric crystals," Phys. Rev. B **35**, 1129–41 (1987).

des ordres de ce développement. Pour ce faire, nous allons nous placer dans le cas d'un matériau isotrope sans brisure de symétrie (c.à.d. sans surface) excité par une onde plane de pulsation  $\omega$  de propagation et de polarisation quelconque. D'une part, nous pouvons donc dire que  $Div(\vec{E}(\omega)) = 0$ , et d'autre part il est possible de trouver un vecteur  $\vec{C}$  tel que  $Div(\vec{C}) = \vec{E}(\omega) \cdot \vec{E}(\omega)$ . Alors, grâce à l'identité vectorielle du laplacien  $\nabla^2$  de  $\vec{C}$  :

$$\nabla^2 \vec{C} = \vec{grad}(Div(\vec{C})) - \vec{rot}(\vec{rot}(\vec{C})), \quad (3.31)$$

l'équation (3.30) devient

$$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega) = \kappa(2\omega) \left( \frac{1}{2} (\nabla^2 \vec{C} + \vec{rot}(\vec{rot}(\vec{C}))) - (\vec{E}(\omega) \cdot \vec{grad}) \vec{E}(\omega) \right). \quad (3.32)$$

Nous introduisons un vecteur  $\vec{L}$  tel que  $\nabla^2 \vec{C} = (\vec{L} \cdot \vec{grad}) \vec{C}$ . Alors, en utilisant une nouvelle identité vectorielle nous pouvons récrire l'équation (3.32) :

$$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega) = \kappa(2\omega) \left( \frac{1}{2} \vec{rot}(\vec{rot}(\vec{C})) - Div(\vec{E}(\omega) \otimes \vec{E}(\omega)) - \frac{1}{2} \vec{L} \otimes \vec{C} \right), \quad (3.33)$$

où  $\otimes$  représente le produit tensoriel entre deux vecteurs.

Cette dernière forme des sources non linéaires est à rapprocher des deuxième et troisième termes de l'équation (2.3) en divergence et rotationnel. Nous pouvons donc dire que les sources non linéaires dans les matériaux centrosymétriques correspondent aux termes dipolaires magnétiques (rotationnel) et quadripolaires électriques (divergence) du développement multipolaire de la polarisation non linéaire.

Nous devons maintenant vérifier que les sources non linéaires obtenues dans cette section sont négligeables devant celles de la section 3.2 et ce pour valider l'hypothèse sur la force de Lorentz. En effet rappelons nous que nous avons supposé le deuxième terme de la force de Lorentz négligeable devant le potentiel anharmonique pour obtenir le résultat de l'approximation dipolaire. Il faut donc que le rapport des sources non linéaires de l'approche non locale sur celles de l'approche dipolaire soit très petit.

Pour commencer, nous allons déterminer qu'elle est la source prédominante entre celle induite par les électrons liés et libres du modèle non local. Les équations (3.23) et (3.26) nous renseignent sur ce sujet en considérant les forces d'amortissement négligeables et en se plaçant loin de la résonance ( $\omega_0 \gg \omega$ ). Alors, le rapport de la contribution de électrons liés  $\vec{\mathbb{P}}_{lié}^{nl}$  sur celle des électrons libres  $\vec{\mathbb{P}}_{lib}^{nl}$  est donné par :

$$\frac{\vec{\mathbb{P}}_{lié}^{nl}}{\vec{\mathbb{P}}_{lib}^{nl}} = \frac{4\omega^4}{\omega_0^4} \ll 1 \quad (3.34)$$

Il est donc clair que la contribution des électrons liés est beaucoup plus faible que celle des électrons libres. Dans la littérature, l'étude de la génération de second harmonique dans les métaux se fait surtout à partir de la contribution des électrons libres.

Il nous reste maintenant à vérifier que la contribution des électrons libres à la production de second harmonique dans l'approche non locale est largement plus faible que la source non linéaire de second ordre de l'approximation locale. Pour ce faire, replaçons nous dans le cas simple à une dimension de la section

### 3.4. MODIFICATIONS DES SOURCES NON LINÉAIRES DUES À LA PRÉSENCE D'UNE INTERFACE.

---

3.2.1 et faisons le rapport de l'équation (3.26) sur l'équation (3.8). Alors, nous obtenons grâce à l'équation (3.3) :

$$|R_{nloc/loc}| = \frac{\omega_0^6 \gamma}{4\omega^4 b}. \quad (3.35)$$

Ce résultat est obtenu en nous plaçant loin de la résonance et en négligeant les forces de frottement. La composante du vecteur d'onde  $\gamma$  est voisin de  $\frac{\omega}{c}$  avec  $c$  la célérité. Ceci nous permet de récrire le rapport sous la forme :

$$|R_{nloc/loc}| = \frac{\omega_0^6}{4\omega^3 cb}. \quad (3.36)$$

L'équation aux dimensions de la relation (3.4) donne à  $b$  la dimension :  $T^{-2}L^{-1}$ . Alors,  $\Omega^3 = bc$  est homogène à une pulsation cube :  $T^{-3}$  et les résultats quantitatifs à propos du rapport de l'équation (3.13) dans la section 3.2.2 permettent d'obtenir l'inégalité suivante :  $\omega_0^3 \ll \Omega^3$  et de poursuivre pour donner  $\omega_0^6 \ll \omega^3 \Omega^3$ . Grâce à ces inégalités et à l'équation (3.35), nous pouvons dire que le résultat obtenu dans l'approximation locale reste très supérieur à la contribution définie dans l'approximation non locale.

Une dernière remarque doit être faite au sujet des sources de second harmonique générées dans l'approximation non locale. En nous plaçant dans le cas à une dimension dans des matériaux centrosymétriques excités par l'onde de la section 3.2.1, l'équation (3.28) s'écrit sous la forme suivante :

$$\mathbb{P}_z^{nl}(2\omega) = \frac{\gamma}{\omega} \kappa(2\omega) (E_{0x}(\omega))^2 e^{2i(\gamma z - \omega t)}, \quad (3.37)$$

où  $E_{0x}(\omega)$  est le module du champ électrique exciteur. Cette équation nous montre que les sources de second harmonique dans le volume des matériaux centrosymétriques ne se propagent pas, car elles sont longitudinales. Ainsi, la contribution des effets de volume d'un matériau centrosymétrique n'a pas une influence notable dans le phénomène de génération de second harmonique. Cette propriété reste vraie uniquement si nous sommes placés loin d'une modification de la densité de charge dans un grand volume. En effet, une perturbation dans la densité de charge crée une brisure de symétrie qui interdit l'utilisation des résultats obtenus sur les matériaux centrosymétriques. Autrement dit, si nous sommes au voisinage d'une surface, nous devons étudier de nouvelles conditions pour la génération de second harmonique en tenant compte des variations de la densité de charge dans le matériau.

## 3.4 Modifications des sources non linéaires dues à la présence d'une interface.

### 3.4.1 Cas des matériaux centrosymétriques conducteurs.

Dans cette section, nous reprenons le cas précédent des matériaux centrosymétriques ne comportant que des porteurs de charges libres (section 3.3.2) en considérant que le volume ait au moins une frontière

caractérisée par une surface plane. Ce calcul est une fois de plus extrait de travaux antérieurs<sup>[40]</sup>. Nous supposons que la surface sépare le milieu centrosymétrique du milieu d'incidence que nous considérons être le vide ou tout autre milieu linéaire homogène isotrope. Le modèle, choisi pour correspondre à la surface, introduit une variation de la densité de charge  $\rho(x, y, z)$  commençant à l'origine mathématique de la surface et pénétrant dans le volume du matériau centrosymétrique de l'épaisseur de quelques couches atomiques. De plus, la surface est supposée être perpendiculaire à la direction  $z$  (la densité de charge ne dépend que de  $z$  :  $\rho(z)$ ). Cette fonction est de ce fait très proche d'une marche, mais nous la considérons continue dérivable. En modélisant de telle sorte la surface, les équations (3.22) restent valides dans tout le volume sauf dans la zone où la densité de charge varie car la contribution des électrons de cette zone n'est pas la même que celle des électrons de volume. En effet, l'interaction des électrons libres avec la matière n'intervient pas dans le volume (annulation par symétrie centrale), alors que près de la surface, ces interactions existent et induisent une variation de la réponse à la stimulation de l'onde électromagnétique. Nous ne pouvons donc plus sommer les  $N$  contributions des électrons présents dans le matériau. Nous justifions alors le fait que l'épaisseur de cette zone ne dépasse pas quelques nanomètres car l'interaction d'un atome éloigné sur l'électron considéré est écrantée par les atomes situés entre eux. Pour que la brisure de symétrie intervienne dans la réponse à une excitation, l'électron devra être à une profondeur maximale de quelques couches atomiques sous la surface.

Dans cette fine couche, le modèle appliqué dans la section 3.3 n'est donc plus valide. Pour modéliser le mouvement d'un électron libre excité par une onde électromagnétique quand la densité de charge  $\rho$  varie dans l'espace, nous introduisons cette variation dans l'équation de continuité de charge et de courant. Ce gradient de charge implique une modification de la vitesse de l'électron en fonction de l'espace. Cette variation de la vitesse est introduite dans l'équation de mouvement. Il vient donc que non seulement le déplacement est une variable de ces équations mais aussi la densité de charge qui est modifiée par le rayonnement électromagnétique. Le système de deux équations à résoudre est donc composé de l'équation de mouvement (dans laquelle les frottements sont négligés) :

$$\frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} + \left( \frac{\partial \vec{r}}{\partial t} \cdot \vec{grad} \right) \frac{\partial \vec{r}}{\partial t} = \frac{q}{m} (\vec{E}(\omega) + \frac{\partial \vec{r}}{\partial t} \wedge \vec{B}(\omega)), \quad (3.38)$$

et de l'équation de continuité de charge et de courant :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\vec{J}) = 0, \quad (3.39)$$

où  $\vec{J} = \rho \frac{\partial \vec{r}}{\partial t}$ . Dans les sections précédentes nous avons implicitement considéré que la variable position  $\vec{r}$  et la polarisation  $\vec{P}$  se décomposaient en termes de série de Fourier :

$$\begin{aligned} \vec{r}(t) &= \vec{r}(\omega, t) + \vec{r}(2\omega, t) + \dots \\ \vec{P}(t) &= \vec{P}(\omega, t) + \vec{P}(2\omega, t) + \dots = Nq(\vec{r}(\omega, t) + \vec{r}(2\omega, t) + \dots) \end{aligned} \quad (3.40)$$

---

[40] Y. SHEN, *The principles of nonlinear optics* (A Wiley-interscience Publication, New York, 1984).

### 3.4. MODIFICATIONS DES SOURCES NON LINÉAIRES DUES À LA PRÉSENCE D'UNE INTERFACE.

---

où les termes à  $2\omega$  étaient considérés comme des perturbations des termes à  $\omega$ . Alors, nous reprenons cette méthode pour les variables  $\rho$  et  $\vec{r}$  caractérisant le mouvement d'un électron proche de la surface dans un matériau centrosymétrique et pour la polarisation  $\vec{P} = \rho\vec{r}$  :

$$\begin{aligned}\vec{r}(t) &= \vec{r}(\omega, t) + \vec{r}(2\omega, t) + \dots \\ \rho(t) &= \rho(O, t) + \rho(\omega, t) + \rho(2\omega, t) + \dots \\ \vec{\mathbb{P}}(t) &= \vec{\mathbb{P}}(\omega, t) + \vec{\mathbb{P}}(2\omega, t) + \dots = (\rho(O, t) + \rho(\omega, t) + \rho(2\omega, t) + \dots)(\vec{r}(\omega, t) + \vec{r}(2\omega, t) + \dots)\end{aligned}\quad (3.41)$$

où  $\rho_0 = \rho(O, t)$  est la densité de charge en l'absence de champ électromagnétique. Cette grandeur est intrinsèque au matériau. Les différents termes du développement de la polarisation  $\vec{P}$  découlent des dernières équations (3.41) et s'expriment en fonction de la position et de la densité de charge de la façon suivante :

$$\begin{aligned}\vec{\mathbb{P}}(\omega, t) &= \rho(O, t)\vec{r}(\omega, t) \\ \vec{\mathbb{P}}(2\omega, t) &= \rho(O, t)\vec{r}(2\omega, t) + \rho(\omega, t)\vec{r}(\omega, t)\end{aligned}\quad (3.42)$$

Nous résolvons donc le système formé des équations (3.38) et (3.39) pour trouver la polarisation  $\vec{\mathbb{P}}$ . Dans un premier temps, il faut déterminer les différents termes des développements de la densité de charge  $\rho$  et de la position  $\vec{r}$  nécessaires à calculer les termes de la polarisation des équations (3.42). On obtient en résolvant le système d'équations (3.38,3.39) :

$$\begin{aligned}\vec{r}(\omega) &= -\frac{q}{m\omega^2}\vec{E}(\omega) \\ \vec{r}(2\omega) &= -\frac{q^2}{2m^2\omega^4}((\vec{E}(\omega).\vec{grad})\vec{E}(\omega) - \vec{E}(\omega) \wedge \vec{rot}(\vec{E}(\omega))) \\ \rho(\omega) &= \frac{q}{m\omega^2}div(\rho_0\vec{E}(\omega)).\end{aligned}\quad (3.43)$$

Alors, les termes du développement de la polarisation dans les équations (3.42), exprimés en fonction de  $\vec{r}$  et  $\rho$ , deviennent :

$$\begin{aligned}\vec{\mathbb{P}}(\omega, t) &= -\frac{q\rho_0}{m\omega^2}\vec{E}(\omega) \\ \vec{\mathbb{P}}(2\omega, t) &= -\frac{q^2\rho_0}{m^2\omega^4}((\vec{E}(\omega).\vec{grad})\vec{E}(\omega) - \vec{E}(\omega) \wedge \vec{rot}(\vec{E}(\omega))) - \dots \\ &\quad \dots \frac{2q^2}{m^2\omega^4}div(\rho_0\vec{E}(\omega))\vec{E}(\omega).\end{aligned}\quad (3.44)$$

La polarisation non linéaire  $\vec{\mathbb{P}}(2\omega, t)$  que nous considérons comme la source de génération de second harmonique est composée par trois termes donnés dans la deuxième équation (3.44). Le deuxième terme dans la parenthèse est comparable au résultat de l'équation (3.26) dans la section 3.3.2. Ce terme correspond à la contribution des effets de volume pour la génération de second harmonique près d'une interface. Le premier terme de la parenthèse peut être considéré comme une correction des effets de volume générés



prés de la surface. Les deux termes dépendent de la variation du champ dans l'espace. Alors, dans un développement multipolaire de la polarisation, nous considérons ces deux termes comme appartenant aux effets quadripolaires électriques et dipolaires magnétiques. Enfin, le terme hors de la parenthèse peut être développé grâce à une identité vectorielle :

$$\operatorname{div}(\rho_0 \vec{E}(\omega)) \vec{E}(\omega) = \rho_0 \operatorname{div}(\vec{E}(\omega)) \vec{E}(\omega) + (\vec{\operatorname{grad}}(\rho_0) \cdot \vec{E}(\omega)) \vec{E}(\omega). \quad (3.45)$$

Le premier terme de cette équation dépend de la variation du champ électrique dans l'espace. C'est donc un effet non local dû à la surface. Il nous faut donc l'associer aux deux termes dans la parenthèse de la deuxième équation (3.44). Quant au dernier terme de l'équation (3.45), nous pouvons le rapprocher du résultat trouvé dans section 3.2 et plus particulièrement à l'équation (3.12). En suivant ce raisonnement, ce terme est dû aux effets dipolaires non nuls dans le voisinage de la surface. En effet, nous avons vu que la contribution des effets dipolaires pour la génération de second harmonique est nulle dans les matériaux centrosymétriques. Toutefois, le centre de symétrie n'existe plus dans le proche voisinage de la surface. Alors, les effets dipolaires ne sont plus interdits et c'est le deuxième terme de l'équation (3.45) qui les représente.

En utilisant les identités vectorielles, nous pouvons donc récrire la deuxième équation (3.44) :

$$\begin{aligned} \vec{\mathbb{P}}(2\omega, t) = & -\frac{q^2 \rho_0}{m^2 \omega^2} (\vec{\operatorname{grad}}(\vec{E}(\omega) \cdot \vec{E}(\omega)) + (\operatorname{div}(\vec{E}(\omega)) \vec{E}(\omega))) \dots \\ & \dots - \frac{2q^2}{m^2 \omega^2} (\vec{\operatorname{grad}}(\rho_0) \cdot \vec{E}(\omega)) \vec{E}(\omega), \end{aligned} \quad (3.46)$$

où les termes entre les grandes parenthèses représentent les phénomènes non locaux (effets quadripolaires électriques et dipolaires magnétiques), alors que le dernier terme est relié aux effets locaux ou dipolaires. Ce dernier terme peut être mis sous une forme tensorielle rappelant le résultat des matériaux non centrosymétriques. Nous obtenons alors cette nouvelle forme de l'équation (3.46) :

$$\begin{aligned} \vec{\mathbb{P}}(2\omega, t) = & -\frac{q^2 \rho_0}{m^2 \omega^2} (\vec{\operatorname{grad}}(\vec{E}(\omega) \cdot \vec{E}(\omega)) + (\operatorname{div}(\vec{E}(\omega)) \vec{E}(\omega))) \dots \\ & \dots - \chi^s(2\omega : \omega, \omega) : \vec{E}(\omega) \vec{E}(\omega), \end{aligned} \quad (3.47)$$

où  $\chi^s$  est le tenseur de susceptibilité non linéaire de la surface.

En prenant  $\vec{\operatorname{grad}}(\rho_0) = 0$ , nous retrouvons le résultat de l'équation (3.26). Le vecteur d'onde  $\vec{k}$  et le champ électrique deviennent orthogonaux. La divergence du champ électrique s'annule donc et le terme  $(\vec{E}(\omega) \cdot \vec{\operatorname{grad}}) \vec{E}(\omega)$  aussi. Le résultat de l'équation (3.44) devient alors similaire à celui de l'équation (3.26). Ainsi nous pouvons retrouver la propriété énoncée au paragraphe 3.3.3 qui stipule que dans un milieu centrosymétrique homogène, les sources de second harmonique ne créent pas d'onde propagatives.

Toutefois, dans le petit volume où la densité de charge varie, le vecteur d'onde  $\vec{k}$  n'est pas orthogonal au champ électrique  $\vec{E}(\omega)$  (c.à.d. le champ électrique n'est pas polarisé perpendiculairement à la propagation) et la polarisation non linéaire  $\vec{\mathbb{P}}(2\omega, t)$  n'est plus longitudinale. Ainsi, les sources non linéaires à  $2\omega$

### 3.4. MODIFICATIONS DES SOURCES NON LINÉAIRES DUES À LA PRÉSENCE D'UNE INTERFACE.

---

produisent un champ électromagnétique qui se propage dans les différents milieux séparés par la surface. Il est donc possible de détecter une intensité générée par le second harmonique dans les matériaux centrosymétriques grâce à la présence d'une surface brisant l'inversion de symétrie.

Comme nous l'avons fait pour les différents cas précédents (sections 3.2 et 3.3), il faut déterminer qui des termes à caractère local ou non local est prédominant pour les sources non linéaires émanant de la surface d'un matériau centrosymétrique. Dans ce paragraphe, nous avons considéré la surface comme une variation continue et dérivable de la densité de charge en fonction des variables d'espace. Alors, toutes les composantes des champs sont considérées continues et dérivables. De plus, les variations importantes se font suivant la direction normale à la surface. Nous tenons donc compte uniquement des dérivées suivant  $z$ . L'équation (3.46) devient alors :

$$\vec{\mathbb{P}}(2\omega, t) = -\frac{q^2}{m^2\omega^2} \begin{pmatrix} (\rho_0 \frac{\partial E_z(\omega)}{\partial z} + 2\frac{\partial \rho_0}{\partial z} E_z(\omega)) E_x(\omega) \\ (\rho_0 \frac{\partial E_z(\omega)}{\partial z} + 2\frac{\partial \rho_0}{\partial z} E_z(\omega)) E_y(\omega) \\ (3\rho_0 \frac{\partial E_z(\omega)}{\partial z} + 2\frac{\partial \rho_0}{\partial z} E_z(\omega)) E_z(\omega) \end{pmatrix} \quad (3.48)$$

Au vue de cette nouvelle forme de la polarisation non linéaire, nous pouvons dire que les contributions des effets locaux et non locaux ne peuvent être départagées. En effet, le caractère local dépend du taux de variation de la densité de charge suivant la direction  $z$ . La variation de la composante  $z$  du champ électrique correspond aux termes à caractère non local. La prédominance des uns sur les autres dépend beaucoup du cas étudié et de la nature intrinsèque du matériau que nous avons négligée dans cette étude (conductivité, symétrie globale, ...). Il en va de même pour la polarisation du vecteur polarisation non linéaire  $\vec{\mathbb{P}}^{nl} = \vec{\mathbb{P}}(2\omega, t)$ . En effet, les termes de chaque composante de l'équation (3.48) sont semblables, il nous est donc impossible de trancher. La prédominance de telle ou telle composante a été étudiée dans plusieurs travaux<sup>[43,39,44]</sup> et se ramène à la détermination des facteurs  $a(\omega)$  (pour les composantes normales à la surface) et  $b(\omega)$  (pour les composantes tangentielles à la surface)<sup>[38]</sup>.

Quoiqu'il en soit, cette source non linéaire est fortement dépendante de la variation de la densité de charge (brisure de symétrie) et de la composante normale à la surface.

Dans le chapitre 4, nous énonçons deux hypothèses sur les questions de prédominance entre les différentes contributions des sources non linéaires.

- La première : les phénomènes locaux dus à la surface dans les matériaux centrosymétriques sont prédominant pour la génération de second harmonique (seul le terme en  $\chi^s$  est pris en compte dans l'équation (3.47)).

- 
- [43] P. GUYOT-SIONNEST & Y. SHEN, "Bulk contribution in surface second-harmonic generation," Phys. Rev. B **38**, 7985–9 (1988).
- [39] P. GUYOT-SIONNEST & Y. SHEN, "Local and nonlocal surface nonlinearities for surface optical second-harmonic generation," Phys. Rev. B **35**, 4420–6 (1987).
- [44] K. BENNEMANN, *Nonlinear optics in metals* (Clarendon press, Oxford, New York, 1998).
- [38] J. RUDNICK & E. STERN, "Second-harmonic radiation from metal surface," Phys. Rev. B **4**, 4274–4290 (1971).

- La deuxième : les composantes normales à la surface donnent une contribution supérieure aux composantes tangentielles.

Ces hypothèses permettent de simplifier l'écriture de la polarisation effective non linéaire qui devient :

$$\mathbb{P}_z(2\omega, t) = \chi_{zzz}^s E_z(\omega) E_z(\omega) \quad (3.49)$$

Il faut donc vérifier la validité de ces hypothèses pour chaque résultat et prendre en compte toute les composantes de la polarisation non linéaire (équation (3.46) le cas échéant.

### 3.4.2 Rôle de la surface dans la génération de second harmonique pour les matériaux non centrosymétriques diélectriques.

Dans le paragraphe 3.4.1, nous voyons que seule la présence d'une surface peut être à l'origine de la génération de second harmonique dans le cas d'un matériau centrosymétrique.

Dans ce paragraphe, nous discutons de l'influence des effets de surface sur les sources non linéaires dans les matériaux diélectriques sans inversion de symétrie. Pour ce faire, nous reprenons l'équation de mouvement (3.4) en lui ajoutant la partie due à la surface (c.à.d. la variation de la vitesse). De plus, nous considérons la variation de la densité de charge, mais cette fois ce sont les porteurs de charges liés qui sont pris en compte. Cette variation est introduite en utilisant l'équation de continuité de charge et de courant (équation (3.39)). Le système d'équations formalisant ceci est donné ci-dessous :

$$\frac{\partial^2 \vec{r}}{\partial t^2} + \left( \frac{\partial \vec{r}}{\partial t} \cdot \vec{grad} \right) \frac{\partial \vec{r}}{\partial t} + \omega_0 \vec{r} + b \vec{r}^2 = \frac{q}{m} \vec{E} \quad (3.50)$$

La résolution de cette équation se fait de la même façon qu'au paragraphe précédent et mène à une polarisation non linéaire contenant à la fois les termes dus à la présence de la surface et ceux de volume :

$$\vec{\mathbb{P}}(2\omega, t) = - \frac{q^2}{m^2(-4\omega^2 + (\omega_0)^2)(-\omega^2 + (\omega_0)^2)^2} \left( (\vec{E}(\omega) \cdot \vec{grad}) \vec{E}(\omega) + b(\vec{E}(\omega))^2 \right) \quad (3.51)$$

Le terme dû à la surface dépend du gradient du champ électrique. Le dernier terme de l'équation (3.51) ( $b(\vec{E}(\omega))^2$ ) est la contribution des termes de volume calculée près de la surface. Ce terme est celui trouvé pour les sources non linéaires dans un matériau diélectrique sans inversion de symétrie (équation (3.6)). Nous devons donc comparer les différents termes induit par la surface avec le terme de volume pour savoir si la présence d'une surface implique des changements radicaux dans les sources non linéaires des milieux diélectriques non centrosymétriques. La discussion sur les ordres de grandeur des sources non linéaires au début du paragraphe 3.2.2, nous conduit à négliger la variation du champ électrique devant la constante du potentiel anharmonique  $b$ .

Alors, prendre en compte la surface ne modifie donc pas le caractère local des sources non linéaires dans les matériaux sans inversion de symétrie. De plus, La présence d'une surface ne change en rien le calcul

de la polarisation non linéaire dans ce type de matériaux.

Cette remarque est vraie que l'accord de phase soit réalisé ou non. En effet, l'épaisseur de la couche active concernant le terme de surface en gradient ne dépasse pas l'ordre du nanomètre, alors que l'épaisseur de la couche dans laquelle le terme dipolaire de volume est généré dépasse la centaine de nanomètres et ce, même pour le cas hors accord de phase.

La surface ne change donc, ni le caractère local, ni la dépendance au champ électrique des sources non linéaires dans les matériaux diélectriques sans inversion de symétrie. Le travail de ce paragraphe ne tient pas compte des anisotropies de surface. Ces anisotropies peuvent aussi bien être présentes avec des surfaces rugueuses qu'avec des surface planes. La génération de second harmonique peut ainsi varier significativement en fonction de la polarisation et de l'azimut de l'onde incidente<sup>[45,46]</sup>.

Il faut donc noter que ce paragraphe, à l'instar des deux précédents 3.2 et 3.3, est à caractère qualitatif. Ces paragraphes permettent d'appréhender rapidement le mécanisme de la génération de second harmonique dans différents types de matériaux.

### 3.5 Discussion.

Dans les sections précédentes de ce chapitre, nous développons une théorie macroscopique pour rendre compte des effets non linéaires d'ordre deux dans les matériaux denses. Toutes ces modèles représentent l'interaction entre la matière et le rayonnement comme une action sur les électrons libres ou liés de la matière due au champ excitateur. Alors, le mouvement d'un électron lié à un noyau atomique est modélisé par un oscillateur anharmonique soumis à une force électromagnétique. Quant aux électrons libres, leur mouvement est considéré être celui d'une particule de gaz soumis à une force électromagnétique. Dans un premier temps, nous avons discuté des effets non linéaires d'ordre deux dans les matériaux diélectriques sans inversion de symétrie. Nous supposons que ces matériaux ne comportent que des électrons liés. Les effets non linéaires générés par un atome dans ces matériaux sont dépendants d'une forme quadratique de la valeur du champ électromagnétique à l'emplacement de l'atome. C'est pourquoi, ce genre d'effet est qualifié de local ou de dipolaire électrique, au contraire des effets dépendants de la variation du champ électromagnétique autour de la position de l'atome. Ces derniers, dits à caractère non local, ont été négligés dans les matériaux non centrosymétriques car ils sont beaucoup plus faibles que les effets dipolaires. Toutefois, ce n'est plus le cas dans les matériaux centrosymétriques où les effets dipolaires sont nuls (paragraphe 3.2.2). Pour ce genre de matériau considéré comme pouvant être conducteur, les non linéarités sont introduites par l'intermédiaire de la force de Lorentz. Ainsi, les effets non linéaires générés par un électron libre ou lié sont bien fonction de la forme quadratique de la variation du champ autour de la po-

---

[45] H. TOM & G. AUMILLER, "Observation of rotational anisotropy in the second-harmonic generation from a metal surface," *Phys. Rev. B* **33**, 8818–21 (1986).

[46] P. FISHER & A. BUCKINGHAM, "Surface second-order nonlinear optical activity," *J. Opt. Soc. Am. A* **15**, 2951–7 (1998).

sition de l'électron. Dans un développement multipolaire, nous avons vu que ces sources sont apparentées aux contributions dipolaires magnétiques et quadripolaires électriques.

Il existe d'autres différences que la dépendance au champ électrique entre les effets locaux (autrement dit les effets dipolaires) et les effets non locaux (dipolaires magnétiques et quadripolaires électriques). En effet, les effets dipolaires génèrent une onde à la fréquence du second harmonique qui se propage dans le volume d'un matériau non centrosymétrique, alors que les effets non locaux n'ont pas de contribution cohérente à la génération d'une onde électromagnétique au second harmonique dans le volume des matériaux centrosymétriques. Les effets non locaux sont à l'origine d'une source non linéaire polarisée dans la direction de son vecteur d'onde. Cette source ne peut donc pas créer d'onde se propageant dans le volume des matériaux centrosymétriques. Pour ce genre de matériaux, il faut la présence d'une interface pour générer une onde non linéaire capable de se propager. Ceci grâce à la brisure de symétrie et aussi grâce à la variation importante de certaines composantes du champ électromagnétique durant le passage de l'interface. Tous ces résultats sont récapitulés dans le tableau (3.1)

Type de matériaux	origine des sources non linéaires	Dépendance au champ électrique	Effet de volume cohérents
non centrosymétriques diélectriques	potentiel anharmonique	locale	oui
centrosymétriques conducteurs	forces de Lorentz	non locale	non

TAB. 3.1: Récapitulatif des résultats sur les sources non linéaires.

Les surfaces jouent donc un rôle important dans la génération de second harmonique pour les matériaux centrosymétriques. D'une part, elles permettent de rendre cohérente la polarisation non linéaire (c.à.d. l'onde non linéaire peut se propager). D'autre part, les surfaces modifient la dépendance au champ électrique. En effet, les sources non linéaires sont à caractère totalement non local dans le volume en négligeant la présence d'une surface (section 3.3), alors que la prise en compte de la surface introduit des termes à caractère local. L'étude de ce chapitre est faite pour une surface plane.

Pour généraliser à des surfaces quelconques, il faut considérer la normale en chaque point de la surface. En effet, dans notre problème surface plane, le résultat est largement dépendant de la composante  $z$  du champ électrique et des variations suivant la même direction  $z$  de la densité de charge. La direction  $z$  étant la normale à la surface, nous étendons ce résultat à des surfaces rugueuses en prenant non plus  $z$  comme normale à la surface, mais en choisissant en chaque point la normale effective.

Par contre, la contribution des surfaces dans la génération de second harmonique pour des matériaux non centrosymétriques est négligeable.

Les résultats quantitatifs du paragraphe 3.2.2 donnent une bonne indication sur l'ordre de grandeur des différentes sources non linéaires les unes par rapport aux autres (voir aussi paragraphe 3.3.3 ou 3.4.1).

Toutefois, il faut remarquer que même si les modèles précédents sont qualitativement en accord avec des modèles plus rigoureux, ils ne permettent pas de déterminer la valeur numérique exacte aux différents coefficients qui permettrait une comparaison avec diverses études expérimentales. En effet l’approche classique ne peut pas appréhender toutes les subtilités microscopiques de l’interaction matière rayonnement. Pour ce faire, il faut une approche quantique. Nous ne traiterons pas ce travail qui à fait l’objet de nombreuses études<sup>[9,8,12]</sup>. L’objet de ce chapitre n’est pas d’obtenir l’expression théorique de la polarisation non linéaire la plus exacte possible, mais de déterminer l’origine de ces sources non linéaires dans les différentes configurations rencontrées. Pour modéliser qualitativement et quantitativement telle ou telle expérience, nous prenons les résultats d’expériences s’y rapportant en les associant aux résultats qualitatifs des modèles présentés.

Les résultats de ce chapitre pour les différents types de matériaux rencontrés sont récapitulés dans le tableau 3.2, où  $\chi(2\omega, \omega, \omega)$ ,  $\gamma$ ,  $\beta$  et  $\chi^s$  sont des paramètres intrinsèques des matériaux étudiés.

Type de matériaux	matériaux non centrosymétriques	matériaux centrosymétriques
Forme analytique des sources non linéaires	$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega) = \chi(2\omega, \omega, \omega)\vec{E}(\omega)\vec{E}(\omega)$	$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega) = \gamma\vec{grad}((\vec{E}(\omega))^2) + \beta\vec{E}(\omega)\text{div}(\vec{E}(\omega)) + \chi^s\vec{E}(\omega)\vec{E}(\omega)$

TAB. 3.2: Les sources non linéaires dans les différents matériaux pour une onde plane de pulsation  $\omega$  comme champ exciteur.

Remarquons que, dans la suite de cette thèse, nous nous plaçons dans le cadre des deux hypothèses énoncées au paragraphe 3.4.1. Nous rappelons que ces hypothèses impliquent que, pour les matériaux centrosymétriques, la polarisation non linéaire est définie uniquement à l’aide de  $\chi_{zzz}^s E_z(\omega)E_z(\omega)$ . Les sources non linéaires que nous venons de caractériser, permettent de résoudre de façon qualitative et quantitative les équations de Maxwell du chapitre 2 dans lesquelles elles apparaissent. La manière de résoudre ce système et d’obtenir ainsi le champ électromagnétique non linéaire peut se faire à partir de différentes méthodes. L’exposé des méthodes employées dans notre travail est le sujet du chapitre 4.

- 
- [9] P. GUYOT-SIONNEST, W. CHEN & Y. SHEN, “General considerations on optical second-harmonic generation from surfaces and interfaces,” *Phys. Rev. B* **33**, 8254–63 (1986).
- [8] N. BLOEMBERGEN, R. CHANG, S. JHA & C. LEE, “Optical second harmonic generation in reflexion from media with inversion symmetry,” *Phys. Rev.* **174**, 813–22 (1968).
- [12] J. SIPE, C. SO, M. FUKUI & G. STEGEMAN, “Analysis of second-harmonic generation at metal surfaces,” *Phys. Rev. B* **21**, 4389–402 (1980).

# MÉTHODES THÉORIQUES

---

## Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Introduction. . . . .</b>	<b>46</b>
<b>4.2</b>	<b>Méthode de Rayleigh perturbative. . . . .</b>	<b>47</b>
<b>4.3</b>	<b>Méthode des différences finies dans le domaine temporel : FDTD. . . . .</b>	<b>69</b>
<b>4.4</b>	<b>Conclusion. . . . .</b>	<b>86</b>

---

## 4.1 Introduction.

Dans les chapitres précédents, les équations de Maxwell ont été écrites en tenant compte des sources non linéaires (chapitre 2) qui ont été caractérisées pour différents types de matériaux (chapitre 3). Les solutions de ces équations ont été déterminées d'une manière générale sans expliciter les sources présentes et ceci aussi bien pour le premier que pour le second harmonique. Le but de ce chapitre est donc de relier théoriquement les solutions générales aux sources. Plusieurs méthodes théoriques sont disponibles pour résoudre ce problème. Ces méthodes ont, déjà, pour la plupart, été utilisées pour calculer les réponses non linéaires d'un matériau à une excitation électromagnétique. Nous pouvons citer entre autre les méthodes perturbatives<sup>[47,48,27]</sup>, les méthodes intégrales<sup>[49,50]</sup>, les méthodes différentielles<sup>[51]</sup>, les méthodes des modes couplés<sup>[52,53,54]</sup>, les méthodes des éléments finis<sup>[55]</sup> ou encore les méthodes des différences finies dans le domaine temporel (FDTD)<sup>[56,57,58,59]</sup>. Notre choix s'est porté sur deux de ces

- 
- [47] G. AGARWAL & S. JHA, "Surface enhanced second harmonic generation at a metallic grating," *Phys. Rev. B* **26**, 482–96 (1982).
  - [48] S. ENOCH, "Second-harmonic scattered light from one-dimensional rough thin films," *Opt. Com.* **148**, 137–43 (1998).
  - [27] R. DEPINE & M. GIGLI, "Diffraction from corrugated gratings made with biaxial crystals : Rayleigh methods," *Opt. Com.* **130**, 109–21 (1996).
  - [49] D. MAYSTRE, M. NEVIÈRE, R. REINISCH & J. COUTAZ, "Integral theory for metallic gratings in nonlinear optics and comparaison with experimental results on second-harmonic generation," *J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 338–46 (1988).
  - [50] E. POPOV & M. NEVIÈRE, "Surface-enhanced second-harmonic generation in nonlinear corrugated dielectrics : new theoretical approaches," *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 1555–64 (1994).
  - [51] M. NEVIÈRE, P. VINCENT, D. MAYSTRE, R. REINISCH & J. COUTAZ, "Differential theory for metallic gratings in nonlinear optics : second harmonic generation," *J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 330–6 (1988).
  - [52] G. D'AGUANO, M. CENTINI, C. SIBILIA, M. BERTOLOTTI, M. BLOEMER & C. BOWDEN, "Generalized coupled-mode theory for  $\chi^{(2)}$  interactions in finite multilayered structures," *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 2111–21 (2002).
  - [53] W. NAKAGAWA, R. TYAN & Y. FAINMAN, "Analysis of enhanced second-harmonic generation in periodic nanostructures using modified rigorous coupled-wave analysis in the undepleted-pump approximation," *J. Opt. Soc. Am. A* **19**, 1919–28 (2002).
  - [54] J. HAUS, B. SOON, M. SCALORA, C. SIBILIA & I. MEL'NIKOV, "Coupled-mode equations for Kerr media with periodically modulated linear and nonlinear coefficients," *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 2282–91 (2002).
  - [55] R. FIKRI, D. BARCHIESI, F. H'DHILI, R. BACHELOT, A. VIAL & P. ROYER, "Modeling recent experiments of apertureless near-field optical microscopy using 2D finite element method," *Opt. Com.* **221**, 13–22 (2003).
  - [56] R. JOSEPH & A. TAFLOVE, "FDTD Maxwell's equations models for nonlinear electrodynamics and optics," *IEEE Transactions on Antennas and Propagation* **45**, 364–74 (1997).
  - [57] M. GOORJIAN, A. TAFLOVE & M. J. ANS S.C. HAGNESS, "Computational modeling of femtosecond optical solitons from Maxwell's equations," *IEEE J. Quantum Electronics* **28**, 2416–22 (1992).
  - [58] A. BOURGEADE & E. FREYSZ, "Computational modeling of second harmonic generation by solution of full-wave vector Maxwell equations," *J. Opt. Soc. Am. B* **17**, 226–34 (2000).
  - [59] T.-W. LEE & S. HAGNESS, "Pseudospectral time-domain methods for modeling optical wave propagation in second-order nonlinear materials," *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 330–342 (2004).



méthodes : la méthode de Rayleigh perturbative déjà développée dans le cadre de l'optique du champ proche linéaire<sup>[24,60,61]</sup> et la méthode des différences finies dans le domaine temporel<sup>[28,29]</sup> qui est déjà largement employée dans ce cadre.

Notre choix s'est tout d'abord tourné vers la méthode de Rayleigh perturbative pour des raisons historiques propre au laboratoire, mais surtout pour la facilité de sa mise en œuvre. Nous avons pu ainsi vérifier rapidement nos résultats sur quelques exemples et valider notre modèle pour les sources non linéaires. Le domaine d'investigation de cette méthode est toutefois limité par ses hypothèses. Une méthode rigoureuse est donc souhaitable pour traiter un plus large spectre d'expériences. Le choix s'est porté sur la FDTD car elle est bien maîtrisée au laboratoire, mais aussi et surtout, pour les possibilités de cette méthode. Grâce à elle, il est possible de fournir la réponse à une excitation électromagnétique d'un matériau en fonction de la fréquence, mais également d'étudier l'évolution des phénomènes transitoires. De plus, cette méthode supporte d'être utilisée pour n'importe quel type de géométrie. Ce qui n'est pas le cas de la méthode perturbative.

Dans ce chapitre, nous voyons dans un premier temps le développement de la méthode de Rayleigh perturbative dans le cas de matériaux non linéaires (matériaux centrosymétriques et matériaux anisotropes). Dans un deuxième temps, la méthode des différences finies dans le domaine temporel est traitée non seulement pour les différentes classes de symétrie des matériaux non linéaires, mais aussi en fonction de la dispersion de la réponse linéaire de ces matériaux en fonction de la fréquence.

## 4.2 Méthode de Rayleigh perturbative.

La méthode de Rayleigh perturbative s'applique très bien dans le cadre des systèmes multicouches rugueux. Elle permet de déterminer les différentes composantes du champ électromagnétique dans un tel système. Cette méthode repose à la fois sur la notion d'espace de Fourier (équation (2.6)) et sur celle de spectre d'onde plane<sup>[62]</sup>. La méthode de Rayleigh perturbative dépend aussi comme son nom l'indique de

- 
- [24] D. V. LABEKE & D. BARCHIESI, "Scanning tunneling optical microscopy : a theoretical macroscopic approach," *J. Opt. Soc. Am. A* **9**, 732–738 (1992).
  - [60] D. V. LABEKE, A. VIAL & D. BARCHIESI, "Near-field theoretical study of a magneto-optical grating," *Ultramicroscopy* **61**, 51–5 (1995).
  - [61] D. V. LABEKE, A. VIAL, V. NOVOSAD, Y. SOUCHE, M. SCHLENKER & A. D. SANTOS, "Diffraction of light by corrugated magnetic grating : experimental results and calculation using a perturbation approximation to the Rayleigh method," *Opt. Com.* **124**, 519–28 (1996).
  - [28] G. PARENT, D. VAN-LABEKE & F. BAIDA, "Theoretical study of transient phenomena in near-field optics," *Journal of Microscopy* **202**, 296–306 (2001).
  - [29] F. BAIDA & D. V. LABEKE, "Light transmission by subwavelength annular aperture arrays in metallic films," *Opt. Com.* **209**, 17–22 (2002).
  - [62] R. PETIT, *Electromagnetic Theory of Gratings* (Springer-Verlag, New York, 1980).

l'hypothèse de Rayleigh<sup>[25]</sup>. En toute rigueur, le développement en spectre d'ondes planes n'est valable que dans des milieux homogènes. Faire l'hypothèse de Rayleigh consiste à considérer que le développement en spectre d'ondes planes est encore valable dans les rugosités. La validité de cette hypothèse a été abondamment discutée<sup>[62,63,64]</sup>. Avant d'énoncer les critères de validité de cette hypothèse, nous devons poser les notations pour les différentes couches de notre système schématisé sur la figure 4.1. Nous considérons donc un système multicouche où les différents matériaux homogènes sont séparés par des interfaces rugueuses. Le plan moyen des interfaces est perpendiculaire à l'axe des  $z$  (le plan moyen est donc parallèle à  $(x, y)$ ). Chaque couche est repérée par un indice  $j \in \mathbb{N}$ . La valeur de cet indice croît en même temps que la position en  $z$  de la couche considérée. Ainsi, la couche  $j$  est au-dessous de la couche  $(j + 1)$ . L'interface séparant ces deux milieux est repérée par sa coordonnée  $z_{(j)}$ . L'épaisseur d'une couche  $j$  est notée  $e_{(j)} = z_{(j)} - z_{(j-1)}$ . L'équation de la surface repérée  $j$  est représentée par une fonction  $f_{(j)}(x, y)$  :

$$z = f_{(j)}(x, y) = z_{(j)} + h_{(j)}(x, y), \quad (4.1)$$

où  $h_{(j)}(x, y)$  est une fonction qui indique la hauteur des rugosités de la surface  $j$  par rapport au plan moyen. Dans ce chapitre, nous considérons que toutes les surfaces sont périodiques suivant  $x$  et  $y$  et que ces périodes sont toutes identiques. La fonction  $h_{(j)}(x, y)$  peut alors s'exprimer en fonction des coefficients  $\tilde{h}_{(j)}(x, y)$  de la série de Fourier correspondante :

$$h_{(j)}(x, y) = \sum_{p_x=-\infty}^{p_x=+\infty} \sum_{p_y=-\infty}^{p_y=+\infty} \tilde{h}_{(j)}(p_x, p_y) e^{i(\frac{2\pi}{a_x} p_x x + \frac{2\pi}{a_y} p_y y)}, \quad (4.2)$$

où  $a_x$  et  $a_y$  sont respectivement les périodes sur les axes  $x$  et  $y$ . Les variables réciproques de  $a_x$  et  $a_y$  dans l'espace de Fourier sont  $p_x$  et  $p_y$  regroupées dans le vecteur  $\vec{p} = (p_x, p_y)$ . Nous rappelons ici un point de notation :

- si une des directions a une période infinie, le réseau est dit à une dimension (1D)
- sinon, le réseau est dit à deux dimensions (2D) (représentation sur la figure 4.1).

Une fois la surface définie, nous pouvons revenir à l'hypothèse de Rayleigh énoncée plus haut. Il a été démontré pour un réseau sinusoïdal en métal parfait que l'hypothèse reste valable tant que  $\frac{h_{(j)}}{\min(a_x, a_y)} < 0,0713$ <sup>[63]</sup>. Ce résultat a été étendu à d'autres profils plus compliqués comme les profils rectangulaires ou triangulaires<sup>[64]</sup>. Cependant, l'approximation de Rayleigh fournit de très bons résultats dans de nombreux cas et cela même hors des limites fixées théoriquement<sup>[63,65]</sup>.

[25] L. RAYLEIGH, *Theory of Sound* (Dover, New-York, 1945), Vol. 2.

[62] R. PETIT, *Electromagnetic Theory of Gratings* (Springer-Verlag, New York, 1980).

[63] D. MAYSTRE, in *Progress in Optics XXI* (North-Holland Physics Publishing, 1984), Chap. Rigorous vector theories of diffraction gratings.

[64] M. BAGIEU & D. MAYSTRE, "Waterman and Rayleigh methods for diffraction grating problems : extension of the convergence domain," *J. Opt. Soc. Am. A* pp. 1566–76 (1998).

[65] R. CARMINATI & J. GREFFET, "Influence of dielectric contrast and topography on the near field scattered by an inhomogeneous surface," *J. Opt. Soc. Am. A* **12**, 2716–2725 (1995).

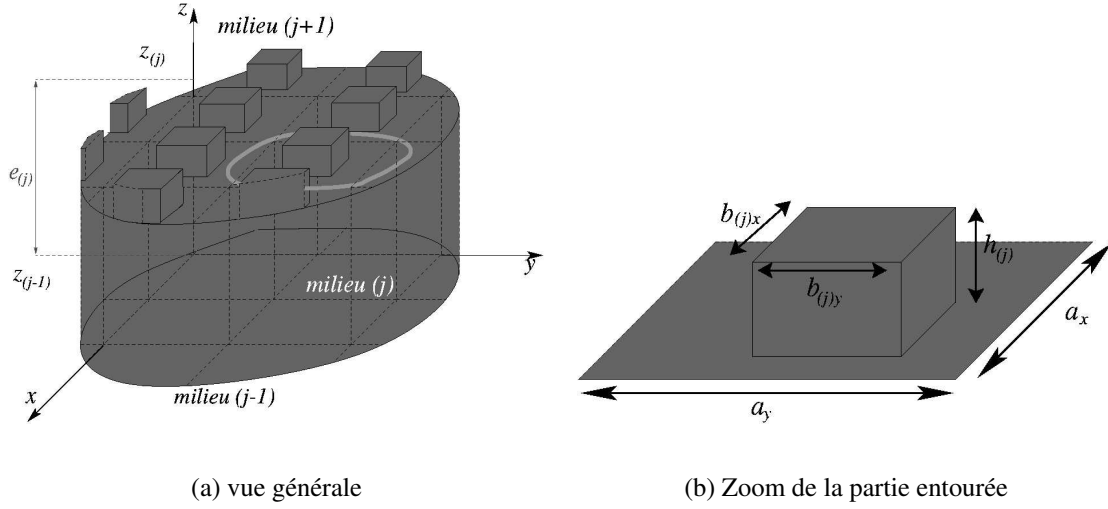


FIG. 4.1: Exemple de systèmes multicouches. Représentation de trois couches successives. (a) Les différentes couches sont dénotées par les indices  $j$  et leur épaisseur respective est notée  $e_{(j)}$ . La position du plan moyen de la surface séparant les milieux  $j$  et  $j-1$  est repérée par  $z_{(j)}$ . (b)  $h_{(j)}$  représente la hauteur des rugosités de la surface  $j$ .  $b_{(j)x}$  et  $b_{(j)y}$  sont les dimensions du motif du réseau de la surface  $j$  respectivement pour les axes  $x$  et  $y$ . Les périodes des réseaux  $a_x$  et  $a_y$ , respectivement pour les axes  $x$  et  $y$ , sont les mêmes pour toutes les surfaces.

Au chapitre 2, la résolution des équations de Maxwell donne l'expression des champs dans les différents milieux. Pour calculer ces champs en fonction de l'onde incidente par la méthode perturbative de Rayleigh, ils doivent être exprimés à partir de leur spectre d'ondes planes. Les spectres sont discrets puisque nous avons des surfaces périodiques :

$$\vec{E}_{(j)}(x, y, z, \omega_n) = \sum_{p_x=-\infty}^{p_x=+\infty} \sum_{p_y=-\infty}^{p_y=+\infty} \vec{E}_{(j)0}(p_x, p_y, z, \omega_n) e^{i(\alpha_{(j)}(p_x, p_y, \omega_n)x + \beta_{(j)}(p_x, p_y, \omega_n)y + \gamma_{(j)}(p_x, p_y, \omega_n)z - \omega_n t)}, \quad (4.3)$$

où  $\vec{E}_{(j)}(x, y, z, \omega_n)$  est un champ électrique de pulsation  $\omega_n$  et  $\vec{E}_{(j)0}(p_x, p_y, z, \omega_n)$  est un des coefficients du spectre d'ondes planes du champ électrique.  $\alpha_{(j)}(p_x, p_y, \omega_n)$ ,  $\beta_{(j)}(p_x, p_y, \omega_n)$  et  $\gamma_{(j)}(p_x, p_y, \omega_n)$  sont les composantes du vecteur d'onde de ce coefficient.

Pour calculer les différents coefficients des spectres d'onde plane, il faut utiliser les équations de continuités [11,32,66] écrites pour les différentes interfaces en  $z = f_{(j)}(x, y)$ . Elles sont déduites des équations de Maxwell :

$$\vec{D}_{n(j+1)}(\omega_n) - \vec{D}_{n(j)}(\omega_n) = 0 \quad (4.4a)$$

$$\vec{B}_{n(j+1)}(\omega_n) - \vec{B}_{n(j)}(\omega_n) = 0 \quad (4.4b)$$

$$\vec{H}_{t(j+1)}(\omega_n) - \vec{H}_{t(j)}(\omega_n) = 0 \quad (4.4c)$$

$$\vec{E}_{t(j+1)}(\omega_n) - \vec{E}_{t(j)}(\omega_n) = 0, \quad (4.4d)$$

- [11] T. HEINZ, in *Second-Order Nonlinear Optical Effects at Surfaces and Interfaces*, H. Ponath & G. Stegeman, eds., (Elsevier, Amsterdam, 1991).
- [32] J. JACKSON, *Classical electrodynamics* (Jhon Wiley & Sons, New York, 1998).
- [66] M. NEVIÈRE, E. POPOV, R. REINISCH & G. VITRANT, *Electromagnetic resonances in nonlinear optics* (Gordon and Breach science publisher, 2000).

où  $n$  et  $t$  sont respectivement les composantes normales et tangentielles des champs.

L'exponentielle liée à chacun des coefficients des spectres d'onde plane de l'équation (4.3) où apparaît le profil de la surface  $f_{(j)}(x, y)$  de l'équation (4.2) peut se développer en série<sup>[67]</sup> en considérant la surface comme une perturbation. Ce développement implique que cette méthode ne pourra tenir compte que des profils de faible amplitude devant la longueur d'onde<sup>[24]</sup> :

$$e^{i\gamma_{E(j)}(p_x, p_y)f_{(j)}(x, y)} = 1 + i\gamma_{E(j)}(p_x, p_y)f_{(j)}(x, y) + \dots \quad (4.5)$$

Le développement est tronqué à l'ordre un de perturbation. Dans notre cas nous n'utilisons pas les ordres supérieurs de perturbation. Chaque coefficient du spectre de l'équation (4.3) est lui aussi développé en série de termes de perturbation :

$$\vec{E}_{(j)0}(p_x, p_y, z, \omega_n) = \vec{E}_{(j)0}^{(0)}(p_x, p_y, z, \omega_n) + \vec{E}_{(j)0}^{(1)}(p_x, p_y, z, \omega_n) + \dots \quad (4.6)$$

Dans ce développement aussi, nous ne tenons compte que des deux premiers ordres de perturbation.

Une fois les coefficients des spectres déduits des équations de continuité, les spectres d'ondes planes peuvent être entièrement calculés pour retrouver le champ global.

Cette méthode est employée dans les deux prochains paragraphes 4.2.1 et 4.2.2 pour les cas des matériaux centrosymétriques et non centrosymétriques. En effet, nous avons tout d'abord remarqué dans le chapitre 2 que la résolution des équations de Maxwell était beaucoup plus compliquée pour les milieux anisotropes. Cette résolution doit d'ailleurs se faire de façon numérique sans atteindre l'expression analytique des champs. De plus, dans le chapitre 3, nous montrons que les sources non linéaires s'expriment de façon différente dans les milieux non centrosymétriques et centrosymétriques. Les milieux non centrosymétriques étant anisotropes, nous prendrons les solutions du paragraphe 2.3.2 avec l'expression des sources non linéaires du paragraphe 3.4.1. Dans cette thèse, les milieux centrosymétriques sont eux considérés comme isotropes, alors nous tiendrons compte des solutions des équations de Maxwell du paragraphes 2.3.1 et de l'expression des non linéarités déduites du paragraphes 3.4.2.

Quel que soit le type de matériau considéré, la méthode de Rayleigh perturbative s'applique de la même manière pour le premier et le second harmonique.

### 4.2.1 Matériaux non centrosymétriques.

À l'intérieur des matériaux ne possédant pas de centre d'inversion de symétrie et à fortiori dans les matériaux anisotropes, les équations de Maxwell sont résolues dans le paragraphe 2.3.2 pour le premier et le second harmonique. Dans une couche quelconque notée  $j$ , le champ électrique est donné en fonction de ses modes propres et de son spectre d'ondes planes pour chaque harmonique (voir équations (2.28, 2.30)) :

[67] D. BARCHIESI & D. V. LABEKE, "A perturbative diffraction theory of a multilayer system : applications to near-field optical microscopy SNOM and STOM," *Ultramicroscopy* **57**, 196–203 (1995).

[24] D. V. LABEKE & D. BARCHIESI, "Scanning tunneling optical microscopy : a theoretical macroscopic approach," *J. Opt. Soc. Am. A* **9**, 732–738 (1992).

$$\vec{E}_{(j)}(x, y, z, \omega) = \sum_{p_x=-\infty}^{p_x=+\infty} \sum_{p_y=-\infty}^{p_y=+\infty} \sum_{\zeta=1}^{\zeta=4} \vec{E}_{(j)\zeta 0}(p_x, p_y, z, \omega) e^{i(\vec{K}_{(j)\zeta}(p_x, p_y, z, \omega) \cdot \vec{R} - \omega t)} \quad (4.7)$$

$$\begin{aligned} \vec{E}_{(j)}(x, y, z, 2\omega) &= \sum_{p_x=-\infty}^{p_x=+\infty} \sum_{p_y=-\infty}^{p_y=+\infty} \sum_{\zeta=1}^{\zeta=4} \left( \vec{E}_{(j)\zeta 0}(p_x, p_y, z, 2\omega) e^{i(\vec{K}_{(j)\zeta}(p_x, p_y, z, 2\omega) \cdot \vec{R} - 2\omega t)} \right. \\ &\quad \left. + \sum_{\zeta'=1}^{\zeta'=4} \vec{E}_{p(j)\zeta\zeta' 0}(p_x, p_y, z, 2\omega) e^{i(\vec{K}_{nl(j)\zeta\zeta'}(p_x, p_y, z, 2\omega) \cdot \vec{R} - 2\omega t)} \right). \end{aligned} \quad (4.8)$$

Cette écriture générale est valable pour tous les ordres de perturbations de l'équation (4.6). Les relations précédentes font apparaître les différentes inconnues des systèmes d'équations formés par les relations de continuité pour les différentes fréquences ( $\omega$  et  $2\omega$ ).

### Premier harmonique.

Tout d'abord, nous résolvons le système pour le premier harmonique. Les inconnues de ce système sont les coefficients de Fourier  $\vec{E}_{(j)\zeta 0}(p_x, p_y, z, \omega)$  du champ électrique. Cette résolution a été effectuée dans la thèse d'A. Vial. Il faut tout d'abord écrire les équations de continuité (4.4) en fonction du champ électrique  $\vec{E}_{(j)}(x, y, f_{(j)}, \omega)$ . Pour ce faire, nous devons poser un vecteur  $\vec{n}_{(j)}$  normal à la surface  $j$  :

$$\vec{n}_l = \frac{\vec{grad}(z_{(j)} - z + h_{(j)}(x, y))}{\|\vec{grad}(z_{(j)} - z + h_{(j)}(x, y))\|} = \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\partial h_{(j)}(x, y)}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial h_{(j)}(x, y)}{\partial y}\right)^2}} \begin{pmatrix} \frac{\partial h_{(j)}(x, y)}{\partial x} \\ \frac{\partial h_{(j)}(x, y)}{\partial y} \\ -1 \end{pmatrix} \quad (4.9)$$

Ainsi, nous pouvons exprimer la partie du champ électrique tangentielle à la surface :

$$\vec{n}_{(j)} \wedge \vec{E}_{(j)}(x, y, f_{(j)}, \omega) = \begin{pmatrix} E_{(j)z}(x, y, f_{(j)}, \omega) \frac{\partial h_{(j)}}{\partial y} + E_{(j)y}(x, y, f_{(j)}, \omega) \\ -E_{(j)z}(x, y, f_{(j)}, \omega) \frac{\partial h_{(j)}}{\partial x} - E_{(j)x}(x, y, f_{(j)}, \omega) \\ E_{(j)y}(x, y, f_{(j)}, \omega) \frac{\partial h_{(j)}}{\partial x} - E_{(j)x}(x, y, f_{(j)}, \omega) \frac{\partial h_{(j)}}{\partial y} \end{pmatrix}, \quad (4.10)$$

et la partie normale :

$$(\vec{n}_{(j)} \cdot \vec{E}_{(j)}(f_{(j)}, \omega)) \vec{n}_{(j)} = \left( E_{(j)x}(f_{(j)}, \omega) \frac{\partial h_{(j)}}{\partial x} + E_{(j)y}(f_{(j)}, \omega) \frac{\partial h_{(j)}}{\partial y} - E_{(j)z}(f_{(j)}, \omega) \right) \vec{n}_{(j)}. \quad (4.11)$$

De plus, nous ne tenons pas compte des effets magnétiques. L'induction magnétique et le champ magnétique sont reliés de la même façon que pour le vide. Ceci implique que l'équation (4.4c) devient :

$$\vec{B}_{(j+1)t}(\omega_n) - \vec{B}_{(j)t}(\omega_n) = 0. \quad (4.12)$$

Alors, grâce aux relations (4.10) et (4.11), nous pouvons exprimer l'équation (4.12) en fonction des différentes composantes du champ magnétique :

$$\vec{B}_{(j+1)t}(\omega_n) - \vec{B}_{(j)t}(\omega_n) = \vec{n}_{(j)} \wedge (\vec{B}_{(j+1)}(x, y, f_{(j+1)}, \omega) - \vec{B}_{(j)}(x, y, f_{(j)}, \omega)) = 0. \quad (4.13)$$

Grâce aux équations de Maxwell, nous pouvons exprimer le champ magnétique en fonction du champ électrique :

$$\vec{B}_{j+1}(\omega) = \frac{\vec{K}_{(j+1)}(\omega) \wedge \vec{E}_{(j+1)}(\omega)}{\omega} \quad (4.14)$$

À partir de là, l'équation (4.13) s'exprime en fonction des composantes du champ électrique.

Nous n'utilisons pas toutes les équations de passage. Comme expliqué plus haut, l'inconnue  $\vec{E}_{(j)\zeta 0}(p_x, p_y, z, \omega)$  peut se mettre sous la forme du produit de sa norme et de son vecteur polarisation :

$$\vec{E}_{(j)\zeta 0}(p_x, p_y, z, \omega) = E_{(j)\zeta 0}(p_x, p_y, z, \omega) \vec{V}_{(j)\zeta}(\omega), \quad (4.15)$$

où  $\vec{V}_{(j)\zeta}(\omega)$  est connu et donc seul  $E_{(j)\zeta 0}(p_x, p_y, z, \omega)$  reste une inconnue. Pour chaque ordre de diffraction, nous avons alors quatre inconnues  $E_{(j)\zeta 0}(p_x, p_y, z, \omega)$  correspondant aux quatre modes propres trouvés lors de la résolution, pour chaque ordre de perturbation, des équations de Maxwell énoncées au paragraphe 2.3.2. Nous n'avons donc besoin que de quatre équations. Nous en possédons déjà deux si nous prenons les composantes suivant  $x$  et  $y$  de la relation (4.13). Les deux équations restantes sont trouvées en prenant les mêmes composantes dans l'équation (4.4d). La résolution des équations de continuité se fait de façon classique. Nous les résolvons dans un premier temps pour l'ordre zéro de perturbation, dénoté par l'exposant  $(0)$ , puis pour l'ordre un, dénoté par  $(1)$ .

Dans le cas de l'ordre zéro de perturbation (voir équation (4.6)), nous remarquons grâce à l'équation (4.2) que tous les ordres de diffraction sont nuls sauf l'ordre zéro. La somme sur les ordres de diffraction dans l'équation (4.7) se résume donc au terme correspondant à  $px = py = 0$ . Le système d'équation de continuité se résume de façon matricielle :

$$M_{(j)}^{(0)}(\omega) F_{(j)}^{(0)}(\omega) = M_{(j+1)}^{(0)}(\omega) \mathfrak{P}_{(j+1)}^{(0)}(\omega) F_{(j+1)}^{(0)}(\omega) \quad (4.16)$$

où la matrice  $M_{(j)}^{(0)}(\omega)$  appelée matrice dynamique<sup>[68]</sup> s'exprime :

$$M_{(j)}^{(0)}(\omega) = \begin{pmatrix} V_{(j)1x}^{(0)} & V_{(j)2x}^{(0)} & V_{(j)3x}^{(0)} & V_{(j)4x}^{(0)} \\ \gamma_{(j)1}^{(0)} V_{(j)1x}^{(0)} - \alpha V_{(j)1z}^{(0)} & \gamma_{(j)2}^{(0)} V_{(j)2x}^{(0)} - \alpha V_{(j)2z}^{(0)} & \gamma_{(j)3}^{(0)} V_{(j)3x}^{(0)} - \alpha V_{(j)3z}^{(0)} & \gamma_{(j)4}^{(0)} V_{(j)4x}^{(0)} - \alpha V_{(j)4z}^{(0)} \\ V_{(j)1y}^{(0)} & V_{(j)2y}^{(0)} & V_{(j)3y}^{(0)} & V_{(j)4y}^{(0)} \\ \beta V_{(j)1z}^{(0)} - \gamma_{(j)1}^{(0)} V_{(j)1y}^{(0)} & \beta V_{(j)2z}^{(0)} - \gamma_{(j)2}^{(0)} V_{(j)2y}^{(0)} & \beta V_{(j)3z}^{(0)} - \gamma_{(j)3}^{(0)} V_{(j)3y}^{(0)} & \beta V_{(j)4z}^{(0)} - \gamma_{(j)4}^{(0)} V_{(j)4y}^{(0)} \end{pmatrix}, \quad (4.17)$$

et où le vecteur  $F_{(j)}^{(0)}(\omega)$  regroupe les quatre inconnues :

$$F_{(j)}^{(0)}(\omega) = \begin{pmatrix} E_{(j)10}^{(0)}(\omega) \\ E_{(j)20}^{(0)}(\omega) \\ E_{(j)30}^{(0)}(\omega) \\ E_{(j)40}^{(0)}(\omega) \end{pmatrix}. \quad (4.18)$$

[68] P. YEH, "Electromagnetic propagation in birefringent layered media," J. Opt. Soc. Am. A **69**, 742–755 (1979).

La matrice de passage  $\mathfrak{P}_{(j+1)}^{(0)}(\omega)$  s'exprime ainsi :

$$\mathfrak{P}_{(j+1)}^{(0)}(\omega) = \begin{pmatrix} e^{-i\gamma_{(j+1)1}^{(0)}e^{(j+1)}} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & e^{-i\gamma_{(j+1)2}^{(0)}e^{(j+1)}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{-i\gamma_{(j+1)3}^{(0)}e^{(j+1)}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e^{-i\gamma_{(j+1)4}^{(0)}e^{(j+1)}} \end{pmatrix}. \quad (4.19)$$

La matrice de passage est égale à un si on se trouve dans le cas où il n'y a qu'une surface.

Une fois l'ordre zéro résolu, le système d'équations pour l'ordre un de perturbation peut être résolu pour chaque ordre de diffraction. La solution s'écrit de façon similaire à celle de l'ordre zéro de perturbation :

$$\begin{aligned} M_{(j)}^{(1)}(\omega)F_{(j)}^{(1)}(\omega) = & M_{(j+1)}^{(1)}(\omega)\mathfrak{P}_{(j+1)}^{(1)j+1}(\omega)F_{(j+1)}^{(1)}(\omega) \\ & + i\tilde{f}_{(j)}(p_x, p_y)(L_{(j+1)}^{(0)}(\omega)\mathfrak{P}_{(j+1)}^{(0)}F_{(j+1)}^{(0)}(\omega) - L_{(j)}^{(0)}(\omega)F_{(j)}^{(0)}(\omega)) \end{aligned} \quad (4.20)$$

où les matrices  $M_{(j)}^{(1)}$ ,  $\mathfrak{P}_{(j+1)}^{(1)}$  et le vecteur  $F_{(j)}^{(1)}$  sont donnés par les équations (4.17-4.19) en remplaçant les différentes composantes du vecteur d'onde et du vecteur de polarisation  $V_{(j)}^{(0)}$  de l'ordre zéro par leurs homologues de l'ordre un de perturbation. La matrice  $L_{(j)}^{(0)}$ , quant à elle, s'exprime ainsi :

$$L_{(j)}^{(0)}(\omega) = \begin{pmatrix} \gamma_{(j)1}^{(0)}V_{(j)1x}^{(0)} + g_xV_{(j)1z}^{(0)} & \gamma_{(j)2}^{(0)}V_{(j)2x}^{(0)} + g_xV_{(j)2z}^{(0)} & \dots \\ (\gamma_{(j)1}^{(0)})^2V_{(j)1x}^{(0)} - \alpha^{(0)}\gamma_{(j)1}^{(0)}V_{(j)1z}^{(0)} & (\gamma_{(j)2}^{(0)})^2V_{(j)2x}^{(0)} - \alpha^{(0)}\gamma_{(j)2}^{(0)}V_{(j)2z}^{(0)} & \dots \\ \gamma_{(j)1}^{(0)}V_{(j)1y}^{(0)} + g_yV_{(j)1z}^{(0)} & \gamma_{(j)2}^{(0)}V_{(j)2y}^{(0)} + g_yV_{(j)2z}^{(0)} & \dots \\ \beta^{(0)}\gamma_{(j)1}^{(0)}V_{(j)1z}^{(0)} - (\gamma_{(j)1}^{(0)})^2V_{(j)1y}^{(0)} & \beta^{(0)}\gamma_{(j)2}^{(0)}V_{(j)2z}^{(0)} - (\gamma_{(j)2}^{(0)})^2V_{(j)2y}^{(0)} & \dots \\ \dots & \gamma_{(j)3}^{(0)}V_{(j)3x}^{(0)} + g_xV_{(j)3z}^{(0)} & \gamma_{(j)4}^{(0)}V_{(j)4x}^{(0)} + g_xV_{(j)4z}^{(0)} \\ \dots & (\gamma_{(j)3}^{(0)})^2V_{(j)3x}^{(0)} - \alpha^{(0)}\gamma_{(j)3}^{(0)}V_{(j)3z}^{(0)} & (\gamma_{(j)4}^{(0)})^2V_{(j)4x}^{(0)} - \alpha^{(0)}\gamma_{(j)4}^{(0)}V_{(j)4z}^{(0)} \\ \dots & \gamma_{(j)3}^{(0)}V_{(j)3y}^{(0)} + g_yV_{(j)3z}^{(0)} & \gamma_{(j)4}^{(0)}V_{(j)4y}^{(0)} + g_yV_{(j)4z}^{(0)} \\ \dots & \beta^{(0)}\gamma_{(j)3}^{(0)}V_{(j)3z}^{(0)} - (\gamma_{(j)3}^{(0)})^2V_{(j)3y}^{(0)} & \beta^{(0)}\gamma_{(j)4}^{(0)}V_{(j)4z}^{(0)} - (\gamma_{(j)4}^{(0)})^2V_{(j)4y}^{(0)} \end{pmatrix}, \quad (4.21)$$

où  $g_x = \frac{2\pi p_x}{a_x}$  et  $g_y = \frac{2\pi p_y}{a_y}$ . La résolution se fait indépendamment pour chaque ordre de diffraction.

Nous n'avons pas noté la dépendance par rapport à la fréquence du premier harmonique par soucis de clarté dans les équations. Pour récapituler, la solution finale au premier harmonique est la somme des ordres zéro et un de perturbation respectivement solution des équations (4.16) et (4.20) :

$$\begin{aligned} \vec{E}_{(j)}(x, y, z, \omega) = & \sum_{\zeta=1}^{\zeta=4} \vec{E}_{(j)\zeta 0}^{(0)}(p_x = 0, p_y = 0, \omega) e^{i(\vec{K}_{(j)\zeta}^{(0)}(\omega) \cdot \vec{R} - \omega t)} + \\ & \sum_{p_x=-\infty}^{p_x=+\infty} \sum_{p_y=-\infty}^{p_y=+\infty} \sum_{\zeta=1}^{\zeta=4} \vec{E}_{(j)\zeta 0}^{(1)}(p_x, p_y, z, \omega) e^{i(\vec{K}_{(j)\zeta}^{(1)}(p_x, p_y, z, \omega) \cdot \vec{R} - \omega t)} \end{aligned} \quad (4.22)$$

Dans le cas général, la résolution est assez fastidieuse. De plus, quelque soit le système étudié, pour un grand nombre de couches, la résolution ne peut pas se faire analytiquement. C'est pourquoi nous avons choisi de résoudre ce problème numériquement, sauf bien sûr pour les cas très simples.

**Second harmonique.**

Pour le second harmonique, la résolution se fait de la même façon. Les sources de second harmonique apparaissent dans l'équation (4.8) sous la forme de la solution particulière  $\vec{E}_p$  à l'équation de propagation. Cette source est fonction de la polarisation non linéaire effective (3.12) :

$$\vec{\mathbb{P}}_{(j)}^{nl}(2\omega) = \chi(2\omega : \omega, \omega) : \vec{E}_{(j)}(\omega) \vec{E}_{(j)}(\omega). \quad (4.23)$$

Le terme d'ordre zéro du développement perturbatif de la polarisation effective non linéaire est déduit de l'équation (4.22) :

$$\vec{\mathbb{P}}_{(j)}^{nl(0)}(2\omega) = \sum_{\zeta=1}^{\zeta=4} \sum_{\zeta'=1}^{\zeta'=4} \chi(2\omega : \omega, \omega) : \vec{E}_{(j)\zeta_0}^{(0)}(\omega) \vec{E}_{(j)\zeta'_0}^{(0)}(\omega) e^{i((\vec{K}_{(j)\zeta}^{(0)} + \vec{K}_{(j)\zeta'}^{(0)}) \cdot \vec{R} - 2\omega t)}. \quad (4.24)$$

L'ordre un de perturbation est obtenu en croisant le terme d'ordre zéro de perturbation du champ électrique et ceux de l'ordre un :

$$\begin{aligned} \vec{\mathbb{P}}_{(j)}^{nl(1)}(2\omega) &= \sum_{p_x=-\infty}^{p_x=+\infty} \sum_{p_y=-\infty}^{p_y=+\infty} \sum_{\zeta=1}^{\zeta=4} \sum_{\zeta'=1}^{\zeta'=4} \vec{\mathbb{P}}_{(j)\zeta\zeta'_0}^{nl(1)}(p_x, p_y, z, 2\omega) e^{i(\vec{K}_{nl(j)\zeta\zeta'}(p_x, p_y, z, 2\omega) \cdot \vec{R} - 2\omega t)} \\ &= \chi(2\omega : \omega, \omega) : \left( \sum_{\zeta=1}^{\zeta=4} \vec{E}_{(j)\zeta_0}^{(0)}(p_x = 0, p_y = 0, z, \omega) e^{i(\vec{K}_{(j)\zeta}^{(0)}(p_x=0, p_y=0, z, \omega) \cdot \vec{R} - \omega t)} \right) \\ &\quad \left( \sum_{p_x=-\infty}^{p_x=+\infty} \sum_{p_y=-\infty}^{p_y=+\infty} \sum_{\zeta'=1}^{\zeta'=4} \vec{E}_{(j)\zeta'_0}^{(1)}(p_x, p_y, z, \omega) e^{i(\vec{K}_{(j)\zeta'}^{(1)}(p_x, p_y, z, \omega) \cdot \vec{R} - \omega t)} \right). \end{aligned} \quad (4.25)$$

La multiplication des termes de l'ordre un de perturbation par eux mêmes donnerait l'ordre deux de perturbation de la polarisation non linéaire.

Chaque ordre de diffraction de la polarisation effective non linéaire est donc formé de l'ordre de diffraction équivalent à l'ordre un de perturbation du champ électrique, à la fréquence du premier harmonique, multiplié par l'ordre zéro de perturbation :

$$\begin{aligned} \vec{\mathbb{P}}_{(j)\zeta\zeta'_0}^{nl(1)}(p_x, p_y, z, 2\omega)(p_x, p_y, z, 2\omega) &= \\ \chi(2\omega : \omega, \omega) : \vec{E}_{(j)\zeta_0}^{(0)}(p_x = 0, p_y = 0, z, \omega) \vec{E}_{(j)\zeta'_0}^{(1)}(p_x, p_y, z, \omega) & \\ e^{i((\vec{K}_{(j)\zeta}^{(0)}(p_x=0, p_y=0, z, \omega) + \vec{K}_{(j)\zeta'}^{(1)}(p_x, p_y, z, \omega)) \cdot \vec{R} - 2\omega t} & \end{aligned} \quad (4.26)$$

Il est facile de comprendre en voyant la complexité de cette relation que les sources non linéaire sont généralement calculées numériquement. Seuls certains cas particuliers pourront donner une forme analytique exploitable. La solution particulière  $\vec{E}_p$ , étant elle même fonction de la polarisation non linéaire, nous ne pouvons pas lui donner de forme analytique simple pour le cas général.

Une fois la source non linéaire déterminée (analytiquement ou dans le cas général numériquement), nous



pouvons résoudre le système d'équations de continuité. Ce système se résume pour l'ordre zéro de perturbation à une relation matricielle similaire à l'équation (4.16) :

$$\begin{aligned} M_{(j)}^{(0)}(2\omega)F_{(j)}^{(0)}(2\omega) - M_{(j+1)}^{(0)}(2\omega)\mathfrak{P}_{(j+1)}^{(0)}(2\omega)F_{(j+1)}^{(0)}(2\omega) = \\ R_{(j+1)}^{(0)}(2\omega)\mathfrak{P}_{nl(j+1)}^{(0)}(2\omega) - R_{(j)}^{(0)}(2\omega), \end{aligned} \quad (4.27)$$

où la matrice dynamique  $M_{(j)}^{(0)}(2\omega)$ , la matrice de passage  $\mathfrak{P}_{(j+1)}^{(0)}(2\omega)$  et le vecteur des solutions  $F_{(j)}^{(0)}(2\omega)$  s'écrivent de la même façon que pour le premier harmonique en remplaçant toutes les grandeurs par leurs homologues du second harmonique. La matrice  $R_{(j)}^{(0)}(2\omega)$  dénote la source non linéaire  $\vec{E}_p$  :

$$R_{(j)}^{(0)}(2\omega) = \begin{pmatrix} E_{p(j)0x}^{(0)}(2\omega) \\ \gamma_{nl(j)}^{(0)} E_{p(j)0x}^{(0)}(2\omega) - 2\alpha^{(0)}(\omega) E_{p(j)0z}^{(0)}(2\omega) \\ E_{p(j)0y}^{(0)}(2\omega) \\ 2\beta^{(0)}(\omega) E_{p(j)0z}^{(0)}(2\omega) - \gamma_{nl(j)}^{(0)} E_{p(j)0y}^{(0)}(2\omega) \end{pmatrix}. \quad (4.28)$$

La matrice de passage  $\mathfrak{P}_{nl(j+1)}^{(0)}(2\omega)$  pour la solution particulière se résume à un scalaire :  $e^{-i\gamma_{nl(j+1)}^{(0)}e^{(j+1)}}$ . Il ne faut pas oublier que le second membre de l'équation (4.27) est en fait la somme de toutes les contributions des différents couplages entre les modes  $\zeta$  et  $\zeta'$  (voir équation (4.25)).

La résolution pour l'ordre un de perturbation se fait de façon analogue au premier harmonique en prenant la relation matricielle correspondante :

$$\begin{aligned} M_{(j)}^{(1)}(2\omega)F_{(j)}^{(1)}(2\omega) = M_{(j+1)}^{(1)}(2\omega)\mathfrak{P}_{(j+1)}^{(1)}(2\omega)F_{(j+1)}^{(1)}(2\omega) \\ + R_{(j+1)}^{(1)}(2\omega)\mathfrak{P}_{nl(j+1)}^{(1)}(2\omega) - R_{(j)}^{(1)}(2\omega) \\ + i\tilde{f}_{(j)}(p_x, p_y)(L_{(j+1)}^{(0)}(2\omega)\mathfrak{P}_{(j+1)}^{(0)}F_{(j+1)}^{(0)}(2\omega) - L_{(j)}^{(0)}(2\omega)F_{(j)}^{(0)}(2\omega) \\ + \tau_{(j+1)}^{(0)}(2\omega)\mathfrak{P}_{nl(j+1)}^{(0)}(2\omega) - \tau_{(j)}^{(0)}(2\omega)), \end{aligned} \quad (4.29)$$

où toutes les matrices déjà rencontrées s'écrivent de la même façon en prenant les grandeurs correspondantes. Quant à la matrice  $\tau_{(j)}^{(0)}(2\omega)$ , elle est donnée par la relation suivante :

$$\tau_{(j)}^{(0)}(\omega) = \begin{pmatrix} \gamma_{nl(j)}^{(0)}(2\omega)E_{p(j)x}^{(0)}(2\omega) + g_x E_{p(j)z}^{(0)}(2\omega) \\ (\gamma_{nl(j)}^{(0)}(2\omega))^2 E_{p(j)x}^{(0)}(2\omega) - \alpha^{(0)}(2\omega)\gamma_{nl(j)}^{(0)}(2\omega)E_{p(j)z}^{(0)}(2\omega) \\ \gamma_{nl(j)}^{(0)}(2\omega)E_{p(j)y}^{(0)}(2\omega) + g_y E_{p(j)z}^{(0)}(2\omega) \\ \beta^{(0)}(2\omega)\gamma_{nl(j)}^{(0)}(2\omega)E_{p(j)z}^{(0)}(2\omega) - (\gamma_{nl(j)}^{(0)}(2\omega))^2 E_{p(j)y}^{(0)}(2\omega) \end{pmatrix}. \quad (4.30)$$

Là encore, les expressions liées à cette matrice dans l'équation (4.29) sont les sommes des différents couplages entre les modes  $\zeta$  et  $\zeta'$ . Comme pour le premier harmonique dans l'équation (4.22), la solution générale du second harmonique est la somme de l'ordre zéro et de l'ordre un de perturbation pour tous

les ordres de diffraction. Il ne faut cependant pas oublier de rajouter les différents ordres de perturbation de la solution particulière calculée au préalable pour que la solution des équations de Maxwell dans les différents milieux formant le système étudié soit complète.

### En résumé

La méthode développée pour les matériaux anisotropes et à fortiori non centrosymétriques nous donne numériquement les champs dans les différentes couches d'un système quelconque. Il est très compliqué de fournir une relation analytique pour le cas général, d'une part à cause de la solution particulière qui est elle-même de forme assez complexe et d'autre part le nombre de couches du système est un facteur aggravant de la complexité de la solution. Toutefois, la solution peut être donnée analytiquement dans certains cas où la symétrie de la géométrie permet des simplifications. C'est le cas dans les matériaux anisotropes uniaxes avec un certain type d'éclairage (voir chapitre 5). C'est aussi le cas des matériaux isotropes (ou dans notre cas centrosymétriques) que nous traitons dans le paragraphe suivant.

### 4.2.2 Matériaux centrosymétriques.

Dans la section 2.3, nous montrons que la propagation d'une onde électromagnétique dans les matériaux isotropes est un cas particulier des milieux anisotropes. En effet, les quatre modes de propagation sont dégénérés dans les milieux isotropes. Seulement deux modes sont présents. Ceci simplifie énormément la résolution énoncée dans le paragraphe précédent sur les matériaux anisotropes et une approche analytique peut être tentée même en tenant compte des effets non linéaires. Cette résolution peut se faire de deux façons :

- Nous pouvons reprendre la méthode modale que nous venons d'exposer au paragraphe précédent.
- La deuxième méthode consiste à résoudre les équations de continuité de chaque interface directement pour les composantes du champ électrique sans passer par ses modes de propagation.

Dans ce paragraphe, nous utilisons la seconde méthode dans le cas où il n'y a pas d'effet magnétique en reprenant les mêmes caractéristiques pour les surfaces que dans le paragraphe précédent.

Pour ce faire, nous considérons que le champ électrique de chaque couche  $\vec{E}_{(j)}(\omega_n)$  se dissocie en une partie montante  $\vec{E}_{(j+)}(\omega_n)$  et en une autre descendante  $\vec{E}_{(j-)}(\omega_n)$  (voir figure 4.2). Ces champs sont toujours solutions des équations de Maxwell. Ils sont donnés par les équations (2.11) (2.19) (2.26) (2.33). Les champs magnétiques sont calculés à posteriori grâce à l'équation de Maxwell-Ampère. Si le système est composé de  $m$  interfaces (soit  $m + 1$  couches), nous avons donc  $6m$  inconnues. Admettons que la couche 1 soit la couche incidente, que la couche  $m$  soit semi-infinie et qu'elles soient toutes les deux isotropes linéaires. Alors, le champ au premier harmonique montant dans la couche 1 est connu puisque c'est le champ incident. Il ne reste donc plus que le champ descendant au premier harmonique comme inconnue dans cette couche. De plus, le milieu  $m$  ne contenant pas de sources, il n'existe que le champ montant au

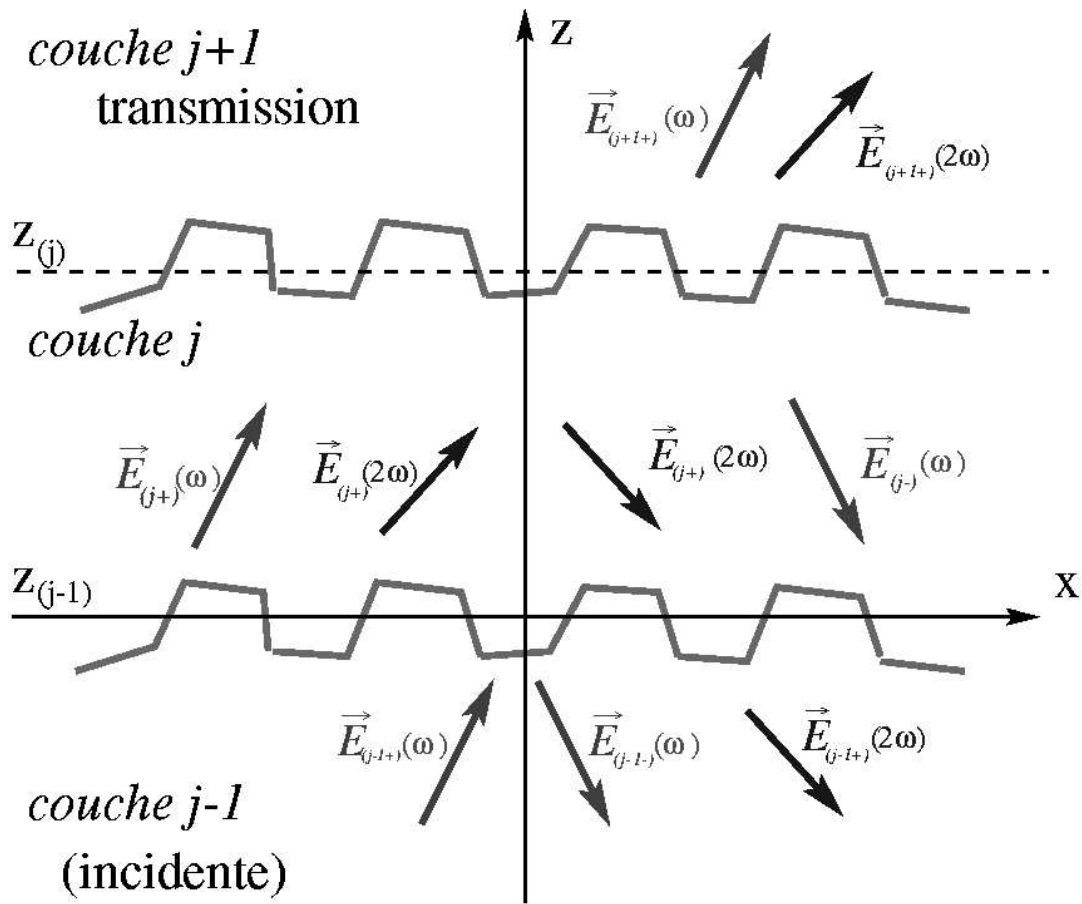


FIG. 4.2: Séparation des champs présents dans une couche  $j$  pour le premier et le second harmonique. Les parties montantes sont repérées par un indice  $+$  et l'indice  $-$  dénote celles descendantes. Dans le cas considéré, la couche  $j-1$  est le milieu incident et la couche  $j+1$  celui de transmission. Ces deux milieux sont linéaires isotropes, alors que le milieu  $j$  est le seul à être non linéaire tout en restant isotrope.

premier harmonique qui est le champ transmis du milieu  $m - 1$  vers le milieu  $m$ . Pour ces deux milieux, le premier harmonique compte deux champs indéterminés ayant chacun trois composantes dans le repère  $(x, y, z)$ , ce qui fait six inconnues au total. Les  $m - 1$  autres couches ont chacune six inconnues. Au total, nous avons bien  $6m$  inconnues pour un système à  $m$  interfaces. Pour résoudre ce système, il nous faut donc  $6m$  équations. Ces équations sont fournies par les relations de continuité et les équations de Maxwell. Nous allons résoudre ce système pour le cas où  $m = 2$ . Il nous faut donc douze équations par harmonique, six pour la première interface et six pour la seconde. Nous posons que ces trois milieux ont une permittivité électrique relative linéaire notée  $\epsilon_{(j)}^l(\omega_n)$ . Seul le milieu 2 est supposé être non linéaire, mais les trois milieux sont isotropes.

### Premier harmonique

Nous prenons tout d'abord la relation de continuité sur les composantes tangentielles du champ électrique (4.4d). Cette relation, grâce à l'équation (4.10), nous donne deux équations indépendantes pour chaque surface :

– pour la surface  $z = f_{(1)}(x, y) = z_{(1)} + h_{(1)}(x, y)$

$$\begin{aligned} (E_{(1+)z}(\omega) + E_{(1-)z}(\omega)) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial y} + E_{(1+)y}(\omega) + E_{(1-)y}(\omega) = \\ (E_{(2+)z}(\omega) + E_{(2-)z}(\omega)) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial y} + E_{(2+)y}(\omega) + E_{(2-)y}(\omega) \end{aligned} \quad (4.31)$$

$$\begin{aligned} (E_{(1+)z}(\omega) + E_{(1-)z}(\omega)) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial x} + E_{(1+)x}(\omega) + E_{(1-)x}(\omega) = \\ (E_{(2+)z}(\omega) + E_{(2-)z}(\omega)) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial x} + E_{(2+)x}(\omega) + E_{(2-)x}(\omega) \end{aligned} \quad (4.32)$$

– pour la surface  $z = f_{(2)}(x, y) = z_{(2)} + h_{(2)}(x, y)$

$$(E_{(2+)z}(\omega) + E_{(2-)z}(\omega)) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial y} + E_{(2+)y}(\omega) + E_{(2-)y}(\omega) = E_{(3+)z}(\omega) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial y} + E_{(3+)y}(\omega) \quad (4.33)$$

$$(E_{(2+)z}(\omega) + E_{(2-)z}(\omega)) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial x} + E_{(2+)x}(\omega) + E_{(2-)x}(\omega) = E_{(3+)z}(\omega) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial x} + E_{(3+)x}(\omega) \quad (4.34)$$

Dans ces équations, les différentes composantes de  $E^{1+}(\omega)$  sont assimilées au champ incident, elles sont donc connues. Toutes les autres sont des inconnues.

Deux autres équations peuvent être obtenues pour chaque surface en prenant la relation (4.4c) sur les composantes tangentielles du champ magnétique. En tenant compte de l'équation (4.10) et en exprimant le champ magnétique en fonction du champ électrique, ces équations s'écrivent ainsi :

– pour la surface  $z = f_{(1)}(x, y) = z_{(1)} + h_{(1)}(x, y)$

$$\begin{aligned} & (\alpha(\omega)(E_{(1+)y}(\omega) + E_{(1-)y}(\omega)) - \beta(\omega)(E_{(1+)x}(\omega) + E_{(1-)x}(\omega))) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial y} \\ & + \gamma_{(1+)}(\omega)E_{(1+)x}(\omega) + \gamma_{(1-)}(\omega)E_{(1-)x}(\omega) - \alpha(\omega)(E_{(1+)z}(\omega) + E_{(1-)z}(\omega)) = \\ & (\alpha(\omega)(E_{(2+)y}(\omega) + E_{(2-)y}(\omega)) - \beta(\omega)(E_{(2+)x}(\omega) + E_{(2-)x}(\omega))) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial y} \\ & + \gamma_{(2+)}(\omega)E_{(2+)x}(\omega) + \gamma_{(2-)}(\omega)E_{(2-)x}(\omega) - \alpha(\omega)(E_{(2+)z}(\omega) + E_{(2-)z}(\omega)), \end{aligned} \quad (4.35)$$

$$\begin{aligned} & (\alpha(\omega)(E_{(1+)y}(\omega) + E_{(1-)y}(\omega)) - \beta(\omega)(E_{(1+)x}(\omega) + E_{(1-)x}(\omega))) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial x} \\ & - \gamma_{(1+)}(\omega)E_{(1+)y}(\omega) - \gamma_{(1-)}(\omega)E_{(1-)y}(\omega) + \beta(\omega)(E_{(1+)z}(\omega) + E_{(1-)z}(\omega)) = \\ & (\alpha(\omega)(E_{(2+)y}(\omega) + E_{(2-)y}(\omega)) - \beta(\omega)(E_{(2+)x}(\omega) + E_{(2-)x}(\omega))) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial x} \\ & - \gamma_{(2+)}(\omega)E_{(2+)y}(\omega) - \gamma_{(2-)}(\omega)E_{(2-)y}(\omega) + \beta(\omega)(E_{(2+)z}(\omega) + E_{(2-)z}(\omega)) \end{aligned} \quad (4.36)$$

– pour la surface  $z = f_{(2)}(x, y) = z_{(2)} + h_{(2)}(x, y)$

$$\begin{aligned} & (\alpha(\omega)(E_{(2+)y}(\omega) + E_{(2-)y}(\omega)) - \beta(\omega)(E_{(2+)x}(\omega) + E_{(2-)x}(\omega))) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial y} \\ & + \gamma_{(2+)}(\omega)E_{(2+)x}(\omega) + \gamma_{(2-)}(\omega)E_{(2-)x}(\omega) - \alpha(\omega)(E_{(2+)z}(\omega) + E_{(2-)z}(\omega)) = \\ & (\alpha(\omega)E_{(3+)y}(\omega) - \beta(\omega)E_{(3+)x}(\omega)) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial y} + \gamma_{(3+)}(\omega)E_{(3+)x}(\omega) - \alpha(\omega)E_{(3+)z}(\omega) \end{aligned} \quad (4.37)$$

$$\begin{aligned} & (\alpha(\omega)(E_{(2+)y}(\omega) + E_{(2-)y}(\omega)) - \beta(\omega)(E_{(2+)x}(\omega) + E_{(2-)x}(\omega))) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial x} \\ & - \gamma_{(2+)}(\omega)E_{(2+)y}(\omega) - \gamma_{(2-)}(\omega)E_{(2-)y}(\omega) + \beta(\omega)(E_{(2+)z}(\omega) + E_{(2-)z}(\omega)) = \\ & (\alpha(\omega)E_{(3+)y}(\omega) - \beta(\omega)E_{(3+)x}(\omega)) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial x} - \gamma_{(3+)}(\omega)E_{(3+)y}(\omega) + \beta(\omega)E_{(3+)z}(\omega) \end{aligned} \quad (4.38)$$

La relation (4.4a) nous donne encore une équation par surface grâce à l'équation (4.11) :

– pour la surface  $z = f_{(1)}(x, y) = z_{(1)} + h_{(1)}(x, y)$

$$\begin{aligned} & \varepsilon_{(1)}(\omega) \left( (E_{(1+)x}(\omega) + E_{(1-)x}(\omega)) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial x} + (E_{(1+)y}(\omega) + E_{(1-)y}(\omega)) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial y} + E_{(1+)z}(\omega) + E_{(1-)z}(\omega) \right) = \\ & \varepsilon_{(2)}(\omega) \left( (E_{(2+)x}(\omega) + E_{(2-)x}(\omega)) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial x} + (E_{(2+)y}(\omega) + E_{(2-)y}(\omega)) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial y} + E_{(2+)z}(\omega) + E_{(2-)z}(\omega) \right) \end{aligned} \quad (4.39)$$

– pour la surface  $z = f_{(2)}(x, y) = z_{(2)} + h_{(2)}(x, y)$

$$\begin{aligned} & \varepsilon_{(2)}(\omega) \left( (E_{(2+)x}(\omega) + E_{(2-)x}(\omega)) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial x} + (E_{(2+)y}(\omega) + E_{(2-)y}(\omega)) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial y} + E_{(2+)z}(\omega) + E_{(2-)z}(\omega) \right) = \\ & \varepsilon_{(3)}(\omega) \left( E_{(3+)x}(\omega) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial x} + E_{(3+)y}(\omega) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial y} + E_{(3+)z}(\omega) \right) \end{aligned} \quad (4.40)$$

Nous avons donc dix équations. Il manque deux équations, une pour chaque surface. Ces équations sont données par l'équation de Maxwell (2.1d) :

– pour la surface  $z = f_{(1)}(x, y) = z_{(1)} + h_{(1)}(x, y)$

$$\begin{aligned} & \alpha(\omega)(E_{(1+)x}(\omega) + E_{(1-)x}(\omega)) + \beta(\omega)(E_{(1+)y}(\omega) + E_{(1-)y}(\omega)) + \gamma_{(1+)}(\omega)E_{(1+)z}(\omega) + \gamma_{(1-)}(\omega)E_{(1-)z}(\omega) = \\ & \alpha(\omega)(E_{(2+)x}(\omega) + E_{(2-)x}(\omega)) + \beta(\omega)(E_{(2+)y}(\omega) + E_{(2-)y}(\omega)) + \gamma_{(2+)}(\omega)E_{(2+)z}(\omega) + \gamma_{(2-)}(\omega)E_{(2-)z}(\omega) \end{aligned} \quad (4.41)$$

– pour la surface  $z = f_{(2)}(x, y) = z_{(2)} + h_{(2)}(x, y)$

$$\begin{aligned} & \alpha(\omega)(E_{(2+)x}(\omega) + E_{(2-)x}(\omega)) + \beta(\omega)(E_{(2+)y}(\omega) + E_{(2-)y}(\omega)) + \gamma_{(2+)}(\omega)E_{(2+)z}(\omega) + \gamma_{(2-)}(\omega)E_{(2-)z}(\omega) = \\ & \alpha(\omega)E_{(3+)x}(\omega) + \beta(\omega)E_{(3+)y}(\omega) + \gamma_{(3+)}(\omega)E_{(3+)z}(\omega) \end{aligned} \quad (4.42)$$

Les équations (4.31-(4.42)) représentent donc le système qui permet de calculer les douze inconnues en fonction du champ incident  $\vec{E}_{1+}(\omega)$ . À part ce dernier, tous les champs se décomposent en série de termes perturbatifs (équation (4.6)) et en spectre d'ondes planes (équation (4.3)). Ce système doit donc être résolu séparément pour chaque ordre de perturbation, mais aussi pour chaque ordre du spectre d'ondes planes. À l'ordre zéro de perturbation, seul l'ordre zéro de diffraction est non nul. Ceci simplifie fortement les équations du système précédent puisque nous les récrivons comme si les surfaces étaient planes. Posons  $z_{(1)} = 0$ , alors  $f_{(1)} = 0$  et  $f_{(2)} = z_{(2)}$ . Pour l'ordre zéro de perturbation, le système d'équations dépend de la distance entre les deux surfaces, mais pas des rugosités de celles-ci. Ce système est formé par les équations (A.1-A.12) de l'annexe A. Il est à noter qu'une simplification peut être faite au niveau des composantes  $\gamma$ . En effet, d'après les lois de Descartes, nous pouvons écrire  $\gamma_{(j)} = \gamma_{j+} = -\gamma_{j-}$  quelque soit le milieu considéré. Ces mêmes lois ont été employées pour écrire les composantes  $\alpha$  et  $\beta$  identiques dans tous les milieux. Toutefois, même pour l'ordre zéro de perturbation, le système est assez imposant et sa résolution fastidieuse. Dans ce chapitre, nous donnons seulement le résultat de la résolution du système dans le tableau 4.1. La résolution de ce système est effectuée dans l'annexe A.1.2. Dans ce paragraphe, nous ne mentionnons pas la fréquence pour des raisons de clarté, mais tous les champs ont une fréquence correspondant au premier harmonique. Dans le tableau 4.1, il apparaît de nouvelles grandeurs ( $deno_z^{(0)}$ ,  $deno^{(0)}$ ,  $A_x^{(0)}$ ,  $B_x^{(0)}$ ,  $A_y^{(0)}$  et  $B_y^{(0)}$ ), elles sont toutes fonction des composantes du champ incident,  $\vec{E}_{(1+)}^{(0)}$ . Ces grandeurs ont pour unique but de simplifier l'écriture des composantes des différents champs. Elles sont exprimées dans les équations (A.13-A.18) de l'annexe A.1.2. Ces résultats sont compliqués, mais ils se simplifient très rapidement si nous prenons une polarisation incidente spécifique (transverse électrique TE ou magnétique TM).

Ces résultats peuvent être vérifiés en les corrélant avec les différents coefficients de réflexion et de transmission d'un système à plusieurs surfaces planes parallèles pour des ondes planes polarisées TE (parallèle à la surface) ou TM (polarisée dans un plan perpendiculaire à la surface). Dans cette thèse, nous ne com-

	Polarisations		
	$E_{0x}^{(0)}$	$E_{0y}^{(0)}$	$E_{0z}^{(0)}$
milieu 1	$E_{(1-)x0}^{(0)} = E_{(2+)x0}^{(0)} + E_{(2-)x0}^{(0)} - E_{(1+)x0}^{(0)}$	$E_{(1-)y0}^{(0)} = E_{(2+)y0}^{(0)} + E_{(2-)y0}^{(0)} - E_{(1+)y0}^{(0)}$	$E_{(1-)z0}^{(0)} = \frac{\epsilon_{(2)}}{\epsilon_{(1)}} (E_{(2+)z0}^{(0)} + E_{(2-)z0}^{(0)}) - E_{(1+)z0}^{(0)}$
milieu 2	$E_{(2+)x0}^{(0)} = \frac{1}{deno^{(0)}} \left( (\gamma_{(1)}^{(0)} - \gamma_{(2)}^{(0)}) B_x^{(0)} - (2\gamma_{(1)}^{(0)} E_{(1+)x0}^{(0)} + A_x^{(0)}) (\gamma_{(3)}^{(0)} + \gamma_{(2)}^{(0)}) e^{-i\gamma_{(2)}^{(0)} z_{(2)}} \right)$ $E_{(2-)x0}^{(0)} = \frac{-1}{deno^{(0)}} \left( (\gamma_{(1)}^{(0)} + \gamma_{(2)}^{(0)}) B_x^{(0)} - (2\gamma_{(1)}^{(0)} E_{(1+)x0}^{(0)} + A_x^{(0)}) (\gamma_{(3)}^{(0)} - \gamma_{(2)}^{(0)}) e^{i\gamma_{(2)}^{(0)} z_{(2)}} \right)$	$E_{(2+)y0}^{(0)} = \frac{1}{deno^{(0)}} \left( (\gamma_{(1)}^{(0)} - \gamma_{(2)}^{(0)}) B_y^{(0)} - (2\gamma_{(1)}^{(0)} E_{(1+)y0}^{(0)} + A_y^{(0)}) (\gamma_{(3)}^{(0)} + \gamma_{(2)}^{(0)}) e^{-i\gamma_{(2)}^{(0)} z_{(2)}} \right)$ $E_{(2-)y0}^{(0)} = \frac{-1}{deno^{(0)}} \left( (\gamma_{(1)}^{(0)} + \gamma_{(2)}^{(0)}) B_y^{(0)} - (2\gamma_{(1)}^{(0)} E_{(1+)y0}^{(0)} + A_y^{(0)}) (\gamma_{(3)}^{(0)} - \gamma_{(2)}^{(0)}) e^{i\gamma_{(2)}^{(0)} z_{(2)}} \right)$	$E_{(2+)z0}^{(0)} = \frac{\gamma_{(1)}^{(0)} \epsilon_{(1)} (\epsilon_{(3)} \gamma_{(1)}^{(0)} - \epsilon_{(2)} \gamma_{(3)}^{(0)}) e^{-i\gamma_{(2)}^{(0)} z_{(2)}}}{deno_z^{(0)}} E_{(1+)z0}^{(0)}$ $E_{(2-)z0}^{(0)} = \frac{\gamma_{(1)}^{(0)} \epsilon_{(1)} (\epsilon_{(3)} \gamma_{(1)}^{(0)} + \epsilon_{(2)} \gamma_{(3)}^{(0)}) e^{i\gamma_{(2)}^{(0)} z_{(2)}}}{deno_z^{(0)}} E_{(1+)z0}^{(0)}$
milieu 3	$E_{(3+)x0}^{(0)} = (E_{(2+)x0}^{(0)} e^{i\gamma_{(2)}^{(0)} z_{(2)}} + E_{(2+)x0}^{(0)} e^{-i\gamma_{(2)}^{(0)} z_{(2)}}) e^{-i\gamma_{(3)}^{(0)} z_{(2)}}$	$E_{(3+)y0}^{(0)} = (E_{(2+)y0}^{(0)} e^{i\gamma_{(2)}^{(0)} z_{(2)}} + E_{(2+)y0}^{(0)} e^{-i\gamma_{(2)}^{(0)} z_{(2)}}) e^{-i\gamma_{(3)}^{(0)} z_{(2)}}$	$E_{(3+)z0}^{(0)} = \frac{\epsilon_{(2)}}{\epsilon_{(3)}} (E_{(2+)z0}^{(0)} e^{i\gamma_{(2)}^{(0)} z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)} e^{-i\gamma_{(2)}^{(0)} z_{(2)}}) e^{-i\gamma_{(3)}^{(0)} z_{(2)}}$

 TAB. 4.1: Composantes de l'ordre zéro de perturbation des champs électriques du premier harmonique en fonction des composantes du champ incident,  $\vec{E}_{(1+)}^{(0)}$ .

parons pas nos résultats avec ceux d'autres méthodes<sup>[69,70,71]</sup>, car nous ne traitons que des effets non linéaires. Toutefois, il est facile de remarquer que si la polarisation incidente est TE (ce qui veut dire que la composante  $z$  du champ incident est nulle), les ondes transmises et réfléchies sont elles aussi polarisées TE. Ce qui est en accord avec les autres méthodes théoriques et avec les résultats expérimentaux.

Pour ce qui est de l'ordre un de perturbation à la fréquence du premier harmonique, la résolution du système est encore plus longue et fastidieuse avec une polarisation incidente quelconque que pour l'ordre zéro. C'est pourquoi pour simplifier l'écriture des solutions, nous avons introduit quatorze nouvelles grandeurs ( $A_i^{(1)}(\omega)$  avec  $i$  variant de un à douze et deux dénominateurs,  $deno_z^{(1)}(\omega)$  et  $deno^{(1)}(\omega)$ ) uniquement fonction des résultats de l'ordre zéro et de la transformée de Fourier des surfaces. Le système d'équations de continuité écrit pour l'ordre un de perturbation à la fréquence du premier harmonique est donné par les équations (A.19-A.30) de l'annexe A.2.1. Nous donnons les résultats de la résolution de l'annexe A.2.2 sans plus de détails dans le tableau 4.2. En plus des lois de Descartes qui définissent l'égalité entre toutes les composantes  $x$  et  $y$  des vecteurs d'ondes dans les différents milieux, il est à noter que les équations de continuité impliquent les relations suivantes pour ces mêmes composantes :

$$\alpha^{(1)}(p_x, \omega) = \alpha^{(0)}(\omega) + \frac{2\pi}{a_x} p_x \quad (4.43)$$

$$\beta^{(1)}(p_y, \omega) = \beta^{(0)}(\omega) + \frac{2\pi}{a_y} p_y \quad (4.44)$$

Ces résultats pour une polarisation incidente quelconque sont une fois encore très peu utilisables, mais dès que nous spécifions l'orientation de la polarisation par rapport aux axes de symétrie des surfaces d'importantes simplifications peuvent être effectuées dans les formules du tableau 4.2.

### Second harmonique

Pour les milieux centrosymétriques, la forme analytique de la polarisation non linéaire énoncée dans l'équation (4.23) n'est plus valable. Dans la section 3.2, nous voyons, en effet, que cette forme est valable dans une approche dipolaire et que l'existence d'un centre de symétrie dans un matériau annule cette contribution. Ce sont les sections 3.3 et 3.4 qui nous donnent la forme analytique de la polarisation non linéaire dans les matériaux centrosymétriques. Le tableau 3.2 et l'équation (3.48) nous donnent les expressions globales et simplifiées des sources non linéaires dans les matériaux centrosymétriques. Nous pouvons toutefois faire quelques hypothèses sur la prédominance de telle ou telle contribution, hypothèses qu'il nous faut vérifier.

- 
- [69] F. ABELÈS, "Investigations on the propagation of sinusoidal electromagnetic waves in stratified media. Application to thin films," *Ann. Phys. Paris* 5 **596**, 706–782 (1950).  
 [70] M. BORN & L. WOLF, *Principles of Optics* (Pergamon Press, Oxford, 1959).  
 [71] J. VIGOUREUX, "Use of Einstein's addition law in studies of reflection by stratified planar structures," *J. Opt. Soc. Am. A* **9**, 1313 (1992).



	Polarisations		
	$E_{0x}^{(1)}(p_x, p_y, \omega)$	$E_{0y}^{(1)}(p_x, p_y, \omega)$	$E_{0z}^{(1)}(p_x, p_y, \omega)$
milieu 1	$E_{(1-)x0}^{(1)} = E_{(2+)x0}^{(1)} + E_{(2-)x0}^{(1)} - A_1^{(1)}$	$E_{(1-)y0}^{(1)} = E_{(2+)y0}^{(1)} + E_{(2-)y0}^{(1)} - A_2^{(1)}$	$E_{(1-)z0}^{(1)} = \frac{1}{\varepsilon_{(1)}}(A_5^{(1)} - \varepsilon_{(2)}(E_{(2+)z0}^{(1)} + E_{(2-)z0}^{(1)}))$
milieu 2	$E_{(2+)x0}^{(1)} = \frac{1}{deno^{(1)}} \left( (\gamma_{(3)}^{(1)} A_7^{(1)} - A_9^{(1)}) (\gamma_{(2)}^{(1)} - \gamma_{(1)}^{(1)}) + (-\gamma_{(1)}^{(1)} A_1^{(1)} - A_3^{(1)}) (\gamma_{(3)}^{(1)} + \gamma_{(2)}^{(1)}) e^{-i\gamma_{(2)}^{(1)} z_{(2)}} \right)$	$E_{(2+)y0}^{(1)} = \frac{1}{deno^{(1)}} \left( (\gamma_{(3)}^{(1)} A_8^{(1)} - A_{10}^{(1)}) (\gamma_{(2)}^{(1)} - \gamma_{(1)}^{(1)}) + (-\gamma_{(1)}^{(1)} A_2^{(1)} - A_3^{(1)}) (\gamma_{(3)}^{(1)} + \gamma_{(2)}^{(1)}) e^{-i\gamma_{(2)}^{(1)} z_{(2)}} \right)$	$E_{(2+)z0}^{(1)} = \frac{1}{deno_z^{(1)}} \left( (\varepsilon_{(3)} \gamma_{(2)}^{(1)} + \varepsilon_{(2)} \gamma_{(3)}^{(1)}) (\gamma_{(2)}^{(1)} A_5^{(1)} - \varepsilon_{(1)} A_6^{(1)}) e^{-i\gamma_{(2)}^{(1)} z_{(2)}} + (\varepsilon_{(1)} \gamma_{(2)}^{(1)} - \varepsilon_{(2)} \gamma_{(1)}^{(1)}) (\gamma_{(3)}^{(1)} A_{11}^{(1)} - \varepsilon_{(3)} A_{12}^{(1)}) \right)$
	$E_{(2-)x0}^{(1)} = \frac{1}{deno^{(1)}} \left( (\gamma_{(3)}^{(1)} A_7^{(1)} - A_9^{(1)}) (\gamma_{(2)}^{(1)} + \gamma_{(1)}^{(1)}) + (-\gamma_{(1)}^{(1)} A_1^{(1)} - A_3^{(1)}) (\gamma_{(2)}^{(1)} - \gamma_{(3)}^{(1)}) e^{i\gamma_{(2)}^{(1)} z_{(2)}} \right)$	$E_{(2-)y0}^{(1)} = \frac{1}{deno^{(1)}} \left( (\gamma_{(3)}^{(1)} A_8^{(1)} - A_{10}^{(1)}) (\gamma_{(2)}^{(1)} + \gamma_{(1)}^{(1)}) + (-\gamma_{(1)}^{(1)} A_2^{(1)} - A_3^{(1)}) (\gamma_{(2)}^{(1)} - \gamma_{(3)}^{(1)}) e^{i\gamma_{(2)}^{(1)} z_{(2)}} \right)$	$E_{(2-)z0}^{(1)} = \frac{1}{deno_z^{(1)}} \left( (\varepsilon_{(3)} \gamma_{(2)}^{(1)} - \varepsilon_{(2)} \gamma_{(3)}^{(1)}) (\gamma_{(2)}^{(1)} A_5^{(1)} - \varepsilon_{(1)} A_6^{(1)}) e^{i\gamma_{(2)}^{(1)} z_{(2)}} + (\varepsilon_{(1)} \gamma_{(2)}^{(1)} + \varepsilon_{(2)} \gamma_{(1)}^{(1)}) (\gamma_{(3)}^{(1)} A_{11}^{(1)} - \varepsilon_{(3)} A_{12}^{(1)}) \right)$
milieu 3	$E_{(3+)x0}^{(1)} = (A_7^{(1)} + E_{(2+)x0}^{(1)}) e^{i\gamma_{(2)}^{(1)} z_{(2)}} + E_{(2+)x0}^{(1)} e^{-i\gamma_{(2)}^{(1)} z_{(2)}} e^{-i\gamma_{(3)}^{(1)} z_{(2)}}$	$E_{(3+)y0}^{(1)} = (A_8^{(1)} + E_{(2+)y0}^{(1)}) e^{i\gamma_{(2)}^{(1)} z_{(2)}} + E_{(2+)y0}^{(1)} e^{-i\gamma_{(2)}^{(1)} z_{(2)}} e^{-i\gamma_{(3)}^{(1)} z_{(2)}}$	$E_{(3+)z0}^{(1)} = \frac{1}{\varepsilon_{(3)}} (A_{11}^{(1)} - \varepsilon_{(2)} (E_{(2+)z0}^{(1)} e^{i\gamma_{(2)}^{(1)} z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(1)} e^{-i\gamma_{(2)}^{(1)} z_{(2)}})) e^{-i\gamma_{(3)}^{(1)} z_{(2)}}$

 TAB. 4.2: Composantes d'un ordre de diffraction  $(p_x, p_y)$  à l'ordre un de perturbation des champs électriques du premier harmonique en fonction des composantes de l'ordre zéro de perturbation des champs électriques.

Nous montrons dans la section 3.3 que les effets non linéaires dans les matériaux centrosymétriques ne peuvent exister que par la présence d'une surface et que cette même surface induit l'apparition de phénomènes dipolaires localisés dans son proche voisinage. C'est pourquoi nous faisons l'hypothèse que les effets locaux sont prédominants dans la génération de second harmonique. Une seconde hypothèse peut être énoncée : nous considérons aussi que la composante normale à la surface de ces effets locaux est largement supérieure à celles tangentielles. Ces deux hypothèses ne sont pas triviales, elles sont mêmes arbitraires comme nous l'expliquons dans la section 3.4. Toutefois, elles simplifient grandement les résultats du chapitre 3 pour donner la forme analytique suivante de la polarisation non linéaire dans les milieux centrosymétriques :

$$\vec{\mathbb{P}}_{(j)\vec{n}}^{nl}(2\omega) = \chi_{\vec{n}\vec{n}\vec{n}}^s(2\omega : \omega, \omega) \vec{E}_{(j)\vec{n}}(\omega) \vec{E}_{(j)\vec{n}}(\omega), \quad (4.45)$$

où  $\vec{n}$  est le vecteur unitaire normal à la surface. Nous considérons donc que la contribution normale à la surface des composantes de la polarisation non linéaire est prédominante et qu'elle est uniquement fonction de celle du champ électrique à la fréquence du premier harmonique. La relation entre la polarisation non linéaire et le champ électrique à la fréquence fondamentale se fait par l'intermédiaire de la composante  $\chi_{\vec{n}\vec{n}\vec{n}}^s$  du tenseur de susceptibilité  $\chi^s$ . Ce tenseur de rang trois est discuté dans différents travaux<sup>[45,11]</sup> et il est considéré nul dans tout l'espace sauf à la proximité des interfaces du milieu non linéaire (dans notre cas le milieu 2). Dans la section 3.4.1, nous discutons l'épaisseur de la couche où le tenseur  $\chi^s$  est non nul. Cette épaisseur est de l'ordre du nanomètre sous la surface dans le matériau non linéaire. Cette couche de matière est appelée non linéaire active, elle a la même permittivité électrique linéaire que le reste du milieu.

Il est évident que le formalisme de la polarisation non linéaire de l'équation (4.45) n'est valable que pour certains cas. Par exemple, pour une surface plane, l'équation (4.45) devient :

$$\vec{\mathbb{P}}_{(j)z}^{nl}(2\omega) = \chi_{zzz}^s(2\omega : \omega, \omega) \vec{E}_{(j)z}(\omega) \vec{E}_{(j)z}(\omega), \quad (4.46)$$

similaire à l'équation (3.48) si nous tenons compte des hypothèses précédentes. Alors, si l'onde incidente à la fréquence du premier harmonique est polarisée TE (ce qui veut dire que  $\vec{E}_z(\omega) = 0$  quelque soit  $j$ ), notre modèle ne prédit pas d'effets non linéaires. Ce qui va à l'encontre des résultats expérimentaux<sup>[37]</sup>. Dans ce cas, il est évident que la contribution tangentielle à la surface des composantes du champ électrique à la fréquence du premier harmonique n'est plus négligeable. Cependant, nous gardons cette approximation pour traiter tous les autres cas (e.g. les surfaces rugueuses ou autres configurations plus complexes comme les pointes...).

- 
- [45] H. TOM & G. AUMILLER, "Observation of rotational anisotropy in the second-harmonic generation from a metal surface," Phys. Rev. B **33**, 8818–21 (1986).
- [11] T. HEINZ, in *Second-Order Nonlinear Optical Effects at Surfaces and Interfaces*, H. Ponath & G. Stegeman, eds., (Elsevier, Amsterdam, 1991).
- [37] F. BROWN, R.E.PARKS & A. SLEEPER, "Nonlinear optical reflection from a metallic boundary," Phys. Rev. Let. **14**, 1029–31 (1965).

Une fois la polarisation déterminée, nous devons l'écrire comme la somme de l'ordre zéro et un de perturbation :

$$\vec{\mathbb{P}}_{(j)\vec{n}}^{nl}(2\omega) = \vec{\mathbb{P}}_{(j)\vec{n}}^{nl(0)}(2\omega) + \sum_{p_x=-\infty}^{p_x=+\infty} \sum_{p_y=-\infty}^{p_y=+\infty} \vec{\mathbb{P}}_{(j)\vec{n}}^{nl(1)}(p_x, p_y, 2\omega), \quad (4.47)$$

où l'ordre zéro s'exprime en fonction du champ électrique :

$$\vec{\mathbb{P}}_{(j)\vec{n}}^{nl(0)}(2\omega) = \chi_{\vec{n}\vec{n}\vec{n}}^s(\vec{E}_{(2+)\vec{n}0}^{(0)}(\omega)e^{2i\vec{K}_{(2+)}^{(0)}\cdot\vec{R}} + \vec{E}_{(2-)\vec{n}}^{(0)}(\omega)e^{-2i\vec{K}_{(2+)}^{(0)}\cdot\vec{R}})e^{-2i\omega t}, \quad (4.48)$$

et l'ordre un de perturbation exprimé pour un des ordres de diffraction  $(p_x, p_y)$  s'écrit :

$$\begin{aligned} \vec{\mathbb{P}}_{(j)\vec{n}}^{nl(1)}(p_x, p_y, 2\omega) = & \chi_{\vec{n}\vec{n}\vec{n}}^s(\vec{E}_{(2+)\vec{n}0}^{(0)}(\omega)e^{2i\vec{K}_{(2+)}^{(0)}\cdot\vec{R}} + \vec{E}_{(2-)\vec{n}0}^{(0)}(\omega)e^{-2i\vec{K}_{(2+)}^{(0)}\cdot\vec{R}}) \\ & (\vec{E}_{(2+)\vec{n}0}^{(1)}(p_x, p_y, \omega)e^{2i\vec{K}_{(2+)}^{(1)}\cdot\vec{R}} + \vec{E}_{(2-)\vec{n}0}^{(1)}(p_x, p_y, \omega)e^{-2i\vec{K}_{(2+)}^{(1)}\cdot\vec{R}})e^{-2i\omega t}. \end{aligned} \quad (4.49)$$

Sans plus attendre, nous pouvons donner les relations exprimant les composantes tangentiels à la surface des vecteurs d'onde :

$$\alpha^{(0)}(p_x, 2\omega) = 2\alpha^{(0)}(\omega) \quad (4.50)$$

$$\beta^{(0)}(p_y, 2\omega) = 2\beta^{(0)}(\omega) \quad (4.51)$$

$$\alpha^{(1)}(p_x, 2\omega) = 2\alpha^{(0)}(\omega) + \frac{2\pi}{a_x}p_x \quad (4.52)$$

$$\beta^{(1)}(p_y, 2\omega) = 2\beta^{(0)}(\omega) + \frac{2\pi}{a_y}p_y. \quad (4.53)$$

Dès lors, la solution particulière  $\vec{E}_{p(j)}$  que nous avons rencontrée dans la section 2.3.1 et les ordres de perturbation lui correspondant peuvent être formulés à partir des équations (4.45'-4.49) et (2.19). Nous ne donnons pas ici son formalisme dans le cas général, nous préférons le discuter dans les cas particuliers de la partie II de ce document. Il est toutefois à noter que là aussi la solution particulière et la polarisation non linéaire sont les sommes des termes croisés dans les relations (4.48) et (4.49).

Avant d'écrire les équations de continuité aux différentes interfaces, il reste un problème à résoudre. En effet, nous avons introduit, à chaque interface dans le milieu 2, les couches actives non linéaires. Ces deux couches supplémentaires sont les seules à contenir les sources non linéaires. Cependant elles gardent la permittivité électrique linéaire de la couche mère (c.à.d. la couche 2). Nous avons donc un ensemble de cinq couches dont deux aux propriétés non linéaires (voir figure 4.3) pour lesquelles il nous faut écrire les équations de continuité, soit quatre jeux de six équations de continuité. Nous pouvons nous ramener au même nombre d'équations que pour le premier harmonique. En effet, la solution particulière s'annule lors du passage d'une couche active au milieu 2, mais la deuxième partie du champ reste inchangée. Si nous avons les champs dans les couches actives, nous connaissons les champs dans le milieu 2. Alors, les mêmes équations que pour le premier harmonique suffisent pour calculer toutes les composantes des champs du second harmonique. Cependant, le champ électrique du second harmonique s'écrit comme la somme de

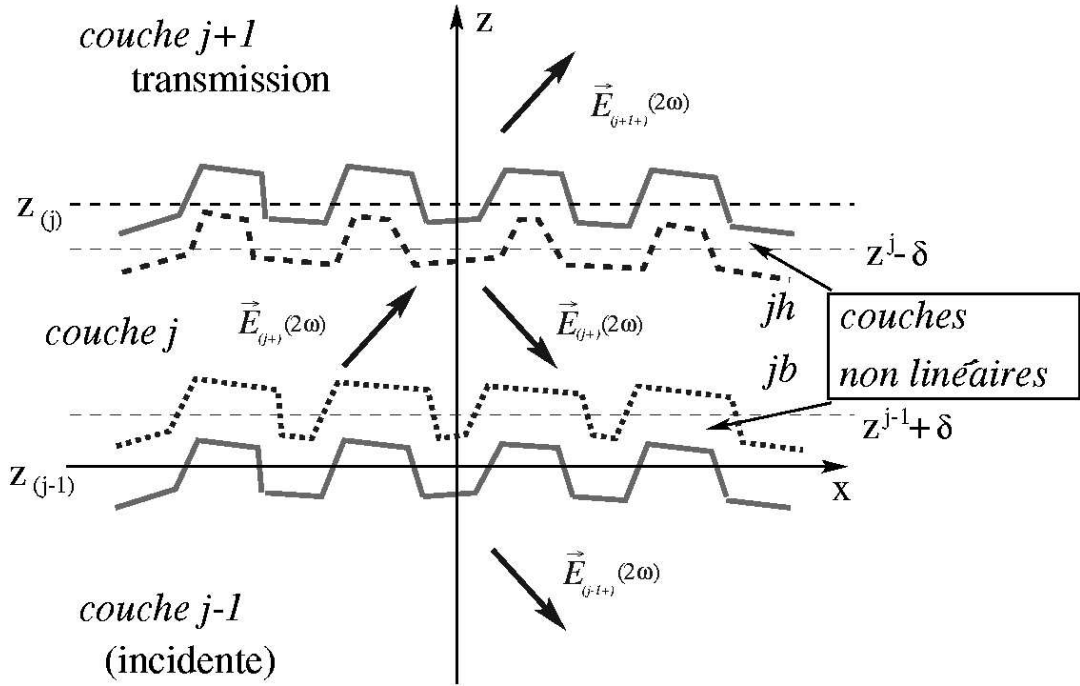


FIG. 4.3: Représentation des couches actives non linéaires. Ce sont les couches comprises entre les traits montrant les surfaces et les traits pointillés suivant le profil de la surface. La couche active inférieure est notée  $jb$  et la supérieure  $jh$ . Les champs à l'intérieur de ces deux couches sont indiqués de la même façon. L'épaisseur des deux couches est notée  $\delta$ . Elle est de l'ordre du nanomètre.

deux champs (voir équation (2.19)) pour un milieu qui contient des sources non linéaires. Le système est donc celui du premier harmonique dans lequel on introduit la solution particulière et la polarisation non linéaire :

- pour commencer, nous écrivons les équations qui décrivent la continuité des composantes tangentes à la surface du champ électrique à la fréquence du second harmonique
- pour la surface  $z = f_{(1)}(x, y) = z_{(1)} + h_{(1)}(x, y)$ , soit le passage entre les milieux 1 et  $2b$ , seul le milieu  $2b$  contient des sources non linéaires. De plus, nous notons les champs comme appartenant au milieu 2 puisque ce sont les mêmes. Seule la solution particulière est différenciée par l'indice  $b$  :

$$E_{(1-)z}(2\omega) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial y} + E_{(1-)y}(2\omega) = (E_{(2+)z}(2\omega) + E_{(2-)z}(2\omega) + E_{pz}^b(2\omega)) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial y} + E_{(2+)y}(2\omega) + E_{(2-)y}(2\omega) + E_{py}^b(2\omega) \quad (4.54)$$

$$E_{(1-)z}(2\omega) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial x} + E_{(1-)x}(2\omega) = (E_{(2+)z}(2\omega) + E_{(2-)z}(2\omega) + E_{pz}^b(2\omega)) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial x} + E_{(2+)x}(2\omega) + E_{(2-)x}(2\omega) + E_{px}^b(2\omega) \quad (4.55)$$

- pour la surface  $z = f_{(2)}(x, y) = z_{(2)} + h_{(2)}(x, y)$ , on applique les mêmes remarques que pour la

surface 1

$$\begin{aligned} (E_{(2+)z}(2\omega) + E_{(2-)z}(2\omega) + E_{pz}^h(2\omega)) \frac{\partial f(2)}{\partial y} + E_{(2+)y}(2\omega) + E_{(2-)y}(2\omega) + E_{py}^h(2\omega) = \\ E_{(3+)z}(2\omega) \frac{\partial f(2)}{\partial y} + E_{(3+)y}(2\omega) \end{aligned} \quad (4.56)$$

$$\begin{aligned} (E_{(2+)z}(2\omega) + E_{(2-)z}(2\omega) + E_{pz}^h(2\omega)) \frac{\partial f(2)}{\partial x} + E_{(2+)x}(2\omega) + E_{(2-)x}(2\omega) + E_{px}^h(2\omega) = \\ E_{(3+)z}(2\omega) \frac{\partial f(2)}{\partial x} + E_{(3+)x}(2\omega) \end{aligned} \quad (4.57)$$

- Nous faisons de même pour les composantes tangentielles du champ magnétique :
  - pour la surface  $z = f_{(1)}(x, y) = z_{(1)} + h_{(1)}(x, y)$

$$\begin{aligned} (\alpha(2\omega)E_{(1-)y}(2\omega) - \beta(2\omega)E_{(1-)x}(2\omega)) \frac{\partial f(1)}{\partial y} - \gamma_{(1)}(2\omega)E_{(1-)x}(2\omega) - \alpha(2\omega)E_{(1-)z}(2\omega) = \\ (\alpha(2\omega)(E_{(2+)y}(2\omega) + E_{(2-)y}(2\omega) + E_{py}^b(2\omega)) - \beta(2\omega)(E_{(2+)x}(2\omega) + E_{(2-)x}(2\omega) + E_{px}^b(2\omega))) \frac{\partial f(1)}{\partial y} \\ + \gamma_{(2)}(2\omega)(E_{(2+)x}(2\omega) - E_{(2-)x}(2\omega)) + \gamma_{nl}(2\omega)E_{px}^b(2\omega) - \alpha(2\omega)(E_{(2+)z}(2\omega) + E_{(2-)z}(2\omega) + E_{pz}^b(2\omega)), \end{aligned} \quad (4.58)$$

$$\begin{aligned} (\alpha(2\omega)E_{(1-)y}(2\omega) - \beta(2\omega)E_{(1-)x}(2\omega)) \frac{\partial f(1)}{\partial x} + \gamma_{(1)}(2\omega)E_{(1-)y}(2\omega) + \beta(2\omega)E_{(1-)z}(2\omega) = \\ (\alpha(2\omega)(E_{(2+)y}(2\omega) + E_{(2-)y}(2\omega) + E_{py}^b(2\omega)) - \beta(2\omega)(E_{(2+)x}(2\omega) + E_{(2-)x}(2\omega) + E_{px}^b(2\omega))) \frac{\partial f(1)}{\partial x} \\ - \gamma_{(2)}(2\omega)(E_{(2+)y}(2\omega) - E_{(2-)y}(2\omega)) - \gamma_{nl}(2\omega)E_{py}^b(2\omega) + \beta(2\omega)(E_{(2+)z}(2\omega) + E_{(2-)z}(2\omega) + E_{pz}^b(2\omega)) \end{aligned} \quad (4.59)$$

- pour la surface  $z = f_{(2)}(x, y) = z_{(2)} + h_{(2)}(x, y)$

$$\begin{aligned} (\alpha(2\omega)(E_{(2+)y}(2\omega) + E_{(2-)y}(2\omega) + E_{py}^h(2\omega)) - \beta(2\omega)(E_{(2+)x}(2\omega) + E_{(2-)x}(2\omega) + E_{px}^h(2\omega))) \frac{\partial f(2)}{\partial y} \\ + \gamma_{(2)}(2\omega)(E_{(2+)x}(2\omega) - E_{(2-)x}(2\omega)) + \gamma_{nl}(2\omega)E_{px}^h(2\omega) - \alpha(2\omega)(E_{(2+)z}(2\omega) + E_{(2-)z}(2\omega) + E_{pz}^h(2\omega)) = \\ (\alpha(2\omega)E_{(3+)y}(2\omega) - \beta(2\omega)E_{(3+)x}(2\omega)) \frac{\partial f(1)}{\partial y} + \gamma_{(3+)}(2\omega)E_{(3+)x}(2\omega) - \alpha(2\omega)E_{(3+)z}(2\omega) \end{aligned} \quad (4.60)$$

$$\begin{aligned} (\alpha(2\omega)(E_{(2+)y}(2\omega) + E_{(2-)y}(2\omega) + E_{py}^h(2\omega)) - \beta(2\omega)(E_{(2+)x}(2\omega) + E_{(2-)x}(2\omega) + E_{px}^h(2\omega))) \frac{\partial f(2)}{\partial x} \\ - \gamma_{(2)}(2\omega)(E_{(2+)y}(2\omega) - E_{(2-)y}(2\omega)) - \gamma_{nl}(2\omega)E_{py}^h(2\omega) + \beta(2\omega)(E_{(2+)z}(2\omega) + E_{(2-)z}(2\omega) + E_{pz}^h(2\omega)) = \\ (\alpha(2\omega)E_{(3+)y}(2\omega) - \beta(2\omega)E_{(3+)x}(2\omega)) \frac{\partial f(1)}{\partial x} - \gamma_{(3+)}(2\omega)E_{(3+)y}(2\omega) + \beta(2\omega)E_{(3+)z}(2\omega) \end{aligned} \quad (4.61)$$

- pour les composantes normales à la surface du vecteur déplacement électrique :

– pour la surface  $z = f_{(1)}(x, y) = z_{(1)} + h_{(1)}(x, y)$

$$\begin{aligned} \varepsilon_{(1)}(2\omega) \left( E_{(1-)x}(2\omega) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial x} + E_{(1-)y}(2\omega) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial y} + E_{(1-)z}(2\omega) \right) = \\ \varepsilon_{(2)}(2\omega) \left( (E_{(2+)x}(2\omega) + E_{(2-)x}(2\omega) + E_{px}^b(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_x^{nlb}(2\omega)}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}}) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial x} \right. \\ \left. + (E_{(2+)y}(2\omega) + E_{(2-)y}(2\omega) + E_{py}^b(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_y^{nlb}(2\omega)}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}}) \frac{\partial f_{(1)}}{\partial y} + \right. \\ \left. E_{(2+)z}(2\omega) + E_{(2-)z}(2\omega) + E_{pz}^b(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_z^{nlb}(2\omega)}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}} \right) \end{aligned} \quad (4.62)$$

– pour la surface  $z = f_{(2)}(x, y) = z_{(2)} + h_{(2)}(x, y)$

$$\begin{aligned} \varepsilon_{(2)}(2\omega) \left( (E_{(2+)x}(2\omega) + E_{(2-)x}(2\omega) + E_{px}^h(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_x^{nlh}(2\omega)}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}}) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial x} + (E_{(2+)y}(2\omega) + E_{(2-)y}(2\omega) + E_{py}^h(2\omega) \right. \\ \left. + \frac{\mathbb{P}_y^{nlh}(2\omega)}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}}) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial y} + E_{(2+)z}(2\omega) + E_{(2-)z}(2\omega) + E_{pz}^h(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_z^{nlh}(2\omega)}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}} \right) = \\ \varepsilon_{(3)}(2\omega) \left( E_{(3+)x}(2\omega) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial x} + E_{(3+)y}(2\omega) \frac{\partial f_{(2)}}{\partial y} + E_{(3+)z}(2\omega) \right) \end{aligned} \quad (4.63)$$

– enfin l'équation de Maxwell (2.1d) donne :

– pour la surface  $z = f_{(1)}(x, y) = z_{(1)} + h_{(1)}(x, y)$

$$\begin{aligned} \alpha(2\omega) E_{(1-)x}(2\omega) + \beta(2\omega) E_{(1-)y}(2\omega) - \gamma_{(1)}(2\omega) E_{(1-)z}(2\omega) = \\ \alpha(2\omega) \left( E_{(2+)x}(2\omega) + E_{(2-)x}(2\omega) + E_{px}^b(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_x^{nlb}(2\omega)}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}} \right) \\ + \beta(2\omega) \left( E_{(2+)y}(2\omega) + E_{(2-)y}(2\omega) + E_{py}^b(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_y^{nlb}(2\omega)}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}} \right) + \gamma_{(2)}(2\omega) (E_{(2+)z}(2\omega) - E_{(2-)z}(2\omega)) + \\ \gamma_{nl}(2\omega) \left( E_{pz}^b(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_z^{nlb}(2\omega)}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}} \right) \end{aligned} \quad (4.64)$$

– pour la surface  $z = f_{(2)}(x, y) = z_{(2)} + h_{(2)}(x, y)$

$$\begin{aligned} \alpha(2\omega) \left( E_{(2+)x}(2\omega) + E_{(2-)x}(2\omega) + E_{px}^h(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_x^{nlh}(2\omega)}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}} \right) + \\ \beta(2\omega) \left( E_{(2+)y}(2\omega) + E_{(2-)y}(2\omega) + E_{py}^h(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_y^{nlh}(2\omega)}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}} \right) \\ + \gamma_{(2)}(2\omega) (E_{(2+)z}(2\omega) - E_{(2-)z}(2\omega)) + \gamma_{nl}(2\omega) \left( E_{px}^h(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_z^{nlh}(2\omega)}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}} \right) = \\ \alpha(2\omega) E_{(3+)x}(2\omega) + \beta(2\omega) E_{(3+)y}(2\omega) + \gamma_{(3+)}(2\omega) E_{(3+)z}(2\omega) \end{aligned} \quad (4.65)$$

La résolution de ce système se fait de la même façon que pour le premier harmonique. La lourdeur des équations dans le cas général nous pousse à introduire les mêmes grandeurs que dans le cas de l'ordre un

de perturbation du premier harmonique. Pour le second harmonique, ces grandeurs sont  $A_i^{(0)}(2\omega)$  (avec  $i$  variant de un à douze),  $deno_z^{(0)}(2\omega)$  et  $deno^{(0)}(2\omega)$  dans le cas de l'ordre zéro de perturbation.  $A_i^{(1)}(2\omega)$ ,  $deno_z^{(1)}(2\omega)$  et  $deno^{(1)}(2\omega)$  sont les grandeurs de l'ordre un de perturbation. La forme des solutions est donnée par les résultats du tableau 4.2 aussi bien dans le cas de l'ordre zéro de perturbation que dans le cas de l'ordre un. Il suffit de remplacer les grandeurs du premier harmonique par celles appropriées du second. Toutes les grandeurs du second harmonique sont données dans les annexes A.3 et A.4.

### En résumé

La résolution des systèmes d'équations de continuité, tant pour le premier harmonique que pour le second, est très complexe dans le cas général. Nous donnons les solutions générales sous une forme condensée même si nous ne les exploitons pas dans ce chapitre. Nous préférons étudier ces résultats sur des cas particuliers (dans la deuxième partie) où les simplifications des solutions permettent de discuter analytiquement le phénomène.

En guise de rappel général sur la méthode de Rayleigh perturbative, il faut noter que les résultats de cette section sont valides dans le cas où les rugosités des surfaces ne sont pas trop importantes. Nous donnons les résultats utilisant cette méthode dans la deuxième partie de cette thèse. Ces résultats sont comparés à ceux obtenus par la méthode des différences finies exposée dans la section suivante.

## 4.3 Méthode des différences finies dans le domaine temporel : FDTD.

La méthode des différences finies dans le domaine temporel (FDTD) est une autre méthode permettant la résolution des équations de Maxwell. Contrairement à la méthode de Rayleigh perturbative, la FDTD est exclusivement numérique. C.à.d., la résolution des équations de Maxwell exprimées dans le domaine temporel donne directement la valeur numérique des champs. Ceci complique l'analyse d'un phénomène physique en fonction de différents paramètres. Toutefois, cette méthode peut être employée dans toutes les configurations géométriques sans aucune restriction. Dans cette section, les matériaux sont considérés sans propriétés magnétiques ( $\mu = \mu_0$ ), mais ils peuvent être isotropes ou anisotropes ainsi que linéaires ou non linéaires. Si les non linéarités existent, elles sont négligeables par rapport aux phénomènes linéaires. Ainsi, les équations de Maxwell sont découplées en fréquence (voir section 2.2). Les fréquences  $\omega_m = (\omega, 2\omega)$  sont alors traitées successivement. La démarche de cette méthode est largement décrite dans de nombreux ouvrages<sup>[72,73]</sup>. Toutefois, la méthode FDTD est peu employée pour décrire les phénomènes non linéaires et entre autre la génération de second harmonique. Nous la développons ci-dessous pour cet effet.

---

[72] K. KUNZ & R. J. LUEBBERS, *The finite difference time domain method for electromagnetics* (CRC press, 1993).

[73] A. TAFLOVE & S. HAGNESS, *Computational electrodynamics : The finite difference time domain method*, 2nd edition ed. (Artech House, Northwood, 2000).

Les équations de Maxwell (2.1a et c) sont à l'origine de l'équation de propagation d'une onde électromagnétique. Ce sont donc ces deux équations qui forment le système à résoudre de la méthode FDTD :

$$\vec{r}\partial_t(\vec{E}(t)) = -\frac{\partial \vec{B}(t)}{\partial t} \quad (4.66a) \quad \vec{r}\partial_t(\vec{H}(t)) = \frac{\partial \vec{D}(t)}{\partial t}. \quad (4.66b)$$

Le champ magnétique  $\vec{H}(t)$  et le vecteur déplacement électrique  $\vec{D}(t)$  sont respectivement reliés à l'induction magnétique  $\vec{B}(t)$  et au champ électrique  $\vec{E}(t)$  par les équations constitutives :

$$\vec{D}(t) = \epsilon_0 \vec{E}(t) + \vec{\mathbb{P}}^l(t) + \vec{\mathbb{P}}^{nl}(t) \quad (4.67a) \quad \vec{H}(t) = \frac{\vec{B}(t)}{\mu_0}, \quad (4.67b)$$

où les polarisations linéaire  $\vec{\mathbb{P}}^l(t)$  et non linéaire  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}(t)$  dépendent du champ électrique. Dans la suite de notre travail, cette dépendance est instantanée pour la polarisation non linéaire alors qu'elle ne l'est pas pour la polarisation linéaire :

$$\vec{\mathbb{P}}^l(t) = \int_{-\infty}^t \chi^l(t') \vec{E}(t-t') dt', \quad (4.68)$$

$$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(t) = \begin{cases} \chi^{nl}(t) \vec{E}(t) \vec{E}(t) & \text{si le matériau est non centrosymétrique} \\ \chi_{\vec{n}\vec{n}\vec{n}}^{nls}(t) \vec{E}_{\vec{n}}(t) \vec{E}_{\vec{n}}(t) & \text{si le matériau est centrosymétrique} \end{cases}, \quad (4.69)$$

où  $\chi^l$  est la susceptibilité électrique linéaire.

Les contributions non linéaires suivent les mêmes propriétés que dans la section 4.2 que ce soit pour des matériaux anisotropes ou non. En d'autres termes, nous ne tenons pas compte de la dispersion en fréquence des effets non linéaires car elle est très mal connue.

Dans le cas où la dispersion au voisinage de la fréquence d'excitation est faible, la réponse linéaire du matériau peut être considérée comme instantanée :

$$\vec{\mathbb{P}}^l(t) = \chi^l(t) \vec{E}(t). \quad (4.70)$$

Alors, l'équation (4.67a) devient :

$$\vec{D}(t) = \epsilon_0 \epsilon^l(t) \vec{E}(t) + \vec{\mathbb{P}}^{nl}(t), \quad (4.71)$$

avec  $\epsilon^l(t)$  la permittivité relative linéaire du matériau.

Pour commencer, nous donnons la méthode en négligeant la dispersion et les effets non linéaires. Puis, nous expliquons comment on tient compte de ces effets.

### 4.3.1 Algorithme de Yee

Kane Yee a développé un algorithme basé sur les différences finies<sup>[74]</sup> pour les équations de Maxwell (4.66a, 4.66b). Elles sont développées pour chaque composante spatiale ( $x, y, z$ ) en se rappelant que nous

---

[74] K. YEE, "Numerical Solution of Initial Boundary Value Problems involving Maxwell's Equations," IEEE Trans. Antennas and Propagation **14**, 302–7 (1966).



laissons de côté la dispersion en fréquence de la réponse linéaire et les effets non linéaires du matériau. Ce développement des équations est valable pour chaque fréquence  $\omega_m$  ( $\omega_m = \omega$  ou  $2\omega$ ) :

\* L'équation (4.66b) se développe pour chaque composante en tenant compte de la relation constitutive (4.71) sans effet non linéaire :

$$\frac{\partial E_x(\omega_m)}{\partial t} = \frac{1}{\epsilon_0 \epsilon} \left( \frac{\partial H_z(\omega_m)}{\partial y} - \frac{\partial H_y(\omega_m)}{\partial z} \right) \quad (4.66bx)$$

$$\frac{\partial E_y(\omega_m)}{\partial t} = \frac{1}{\epsilon_0 \epsilon} \left( \frac{\partial H_x(\omega_m)}{\partial z} - \frac{\partial H_z(\omega_m)}{\partial x} \right) \quad (4.66by)$$

$$\frac{\partial E_z(\omega_m)}{\partial t} = \frac{1}{\epsilon_0 \epsilon} \left( \frac{\partial H_y(\omega_m)}{\partial x} - \frac{\partial H_x(\omega_m)}{\partial y} \right) \quad (4.66bz)$$

\* On effectue la même opération sur l'équation (4.66a) avec la relation constitutive (4.67b) :

$$\frac{\partial H_x(\omega_m)}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \left( \frac{\partial E_z(\omega, t)}{\partial y} - \frac{\partial E_y(\omega, t)}{\partial z} \right) \quad (4.66ax)$$

$$\frac{\partial H_y(\omega_m)}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \left( \frac{\partial E_x(\omega, t)}{\partial z} - \frac{\partial E_z(\omega, t)}{\partial x} \right) \quad (4.66ay)$$

$$\frac{\partial H_z(\omega_m)}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \left( \frac{\partial E_y(\omega, t)}{\partial x} - \frac{\partial E_x(\omega, t)}{\partial y} \right) \quad (4.66az)$$

Ces six équations sont suffisantes pour trouver les six inconnues du système que sont les composantes des vecteurs  $\vec{E}(\omega_m, t)$  et  $\vec{H}(\omega_m, t)$ . En résolvant les deux champs électrique et magnétique, l'algorithme de Yee permet d'avoir une stabilité numérique plus importante qu'en utilisant une équation de propagation dans laquelle n'apparaît que l'un des deux champs. De plus, cette algorithm permet de prendre en compte directement les conditions de passage d'une interface séparant deux milieux de caractère électromagnétique différent.

Le deuxième point important de l'algorithme de Yee est la description de l'espace dans lequel se trouve le système étudié. Cet espace est nécessairement borné définissant ainsi une boîte parallélépipédique de volume  $l_x l_y l_z$  ( $l_x, l_y, l_z$  sont les côtés de la boîte suivant les directions  $x, y, z$ ). Les sources se trouvant à l'intérieur de ce domaine émettent des ondes qui y restent piégées, se réfléchissant sur les bords. Sans conditions de bords (périodicité, absorption ...), les frontières de cet espace se comportent comme des miroirs qui conduisent à des artefacts. Ces conditions de bords sont explicitées un peu plus loin dans ce chapitre. Le point important de la caractérisation de l'espace est la discrétisation de tout son volume. En effet, l'espace borné est divisé en cellules ou mailles qui représentent la division volumique élémentaire de l'espace. Chaque direction de l'espace ( $x, y, z$ ) est divisée respectivement en  $N_x, N_y$  et  $N_z$ . Ceci définit une unité élémentaire de longueur pour chaque axe :  $\Delta_x = \frac{l_x}{N_x}$  et de même pour les deux autres directions. Ces unités élémentaires définissent le volume de maille élémentaire (voir figure 4.4)  $V_m = \Delta_x \Delta_y \Delta_z$  et chaque

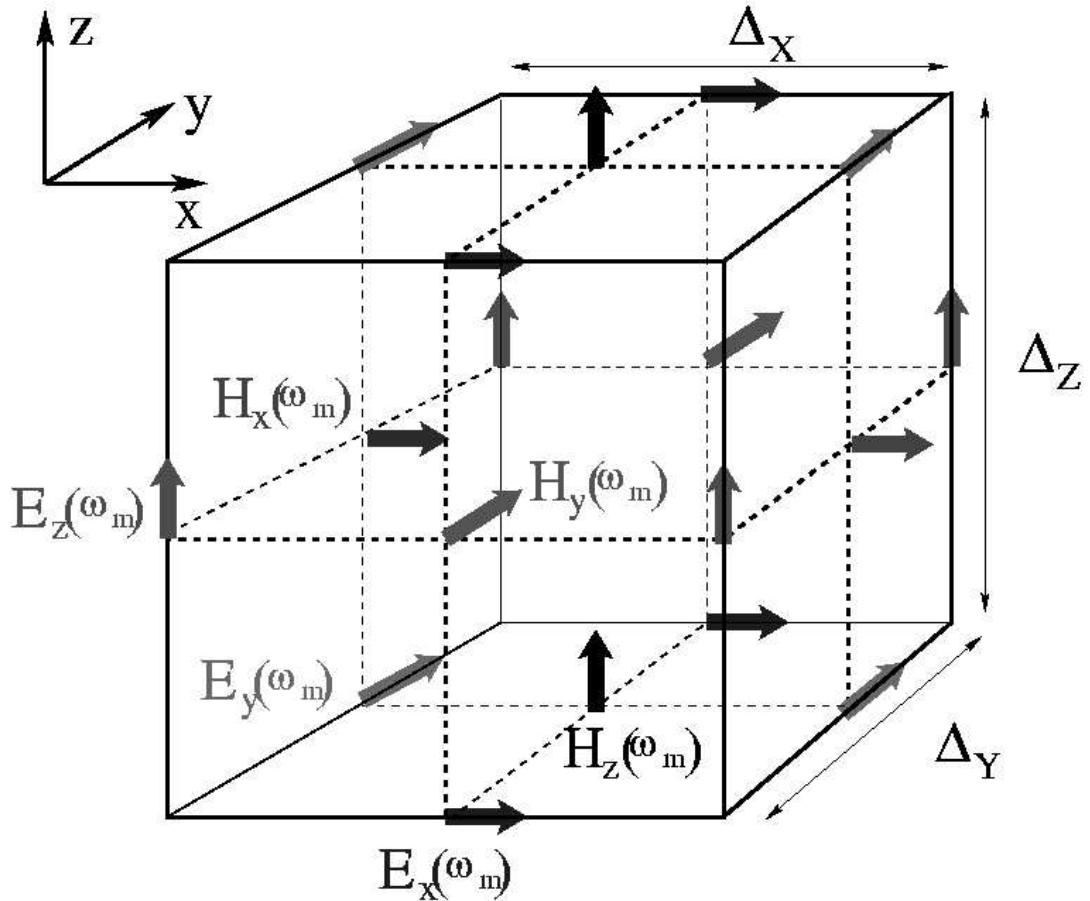


FIG. 4.4: Représentation de la maille élémentaire  $(i, j, k)$  faisant partie de l'ensemble formant l'espace parallélépipédique discrétisé dans l'algorithme de Yee.  $(i, j, k)$  sont les coordonnées discrétisées de la maille suivant les axes respectifs  $(x, y, z)$ . L'origine du repère discrétisé est assimilée à un des sommets de la boîte formant l'espace. Les dimensions de la maille sont notées  $\Delta_x, \Delta_y, \Delta_z$ . Les composantes des champs électriques et magnétiques pour la fréquence  $\omega_m$  sont indiquées pour la maille  $(i, j, k)$ . Les autres flèches dénotent les composantes des champs dans les mailles adjacentes. Les composantes des champs dans chaque cellule sont données pour une permittivité électrique linéaire propre à la cellule  $\epsilon(i, j, k)$ .

maille est repérée par ses coordonnées  $(i, j, k)$  dans le repère discrétisé dont l'origine est sur un des sommets du parallélépipède délimitant l'espace considéré. Le volume du système étudié étant discrétisé, les matériaux présents le sont aussi et à fortiori il en va de même pour la permittivité électrique linéaire et les différentes composantes des champs électriques et magnétiques représentées sur la figure 4.4. Chacune des six composantes des champs électrique et magnétique est évaluée en un point différent de la maille. Cette disposition des composantes des champs permet de voir directement quelles vont être les différentes contributions pour chacune d'entre elles. Par exemple, la figure 4.4 nous permet de visualiser l'équation (4.66ay) et de dire que la composante  $H_y(\omega_m)$  du champ magnétique dans la cellule  $(i, j, k)$  est fonction de la circulation des composantes  $E_x(\omega_m)$  des mailles  $(i, j, k)$  et  $(i, j, k + 1)$  ainsi que des composantes  $E_z(\omega_m)$  des mailles  $(i, j, k)$  et  $(i + 1, j, k)$ .

L'espace n'est pas le seul à être discrétisé, il en est de même pour le temps (voir figure 4.5). Les différentes

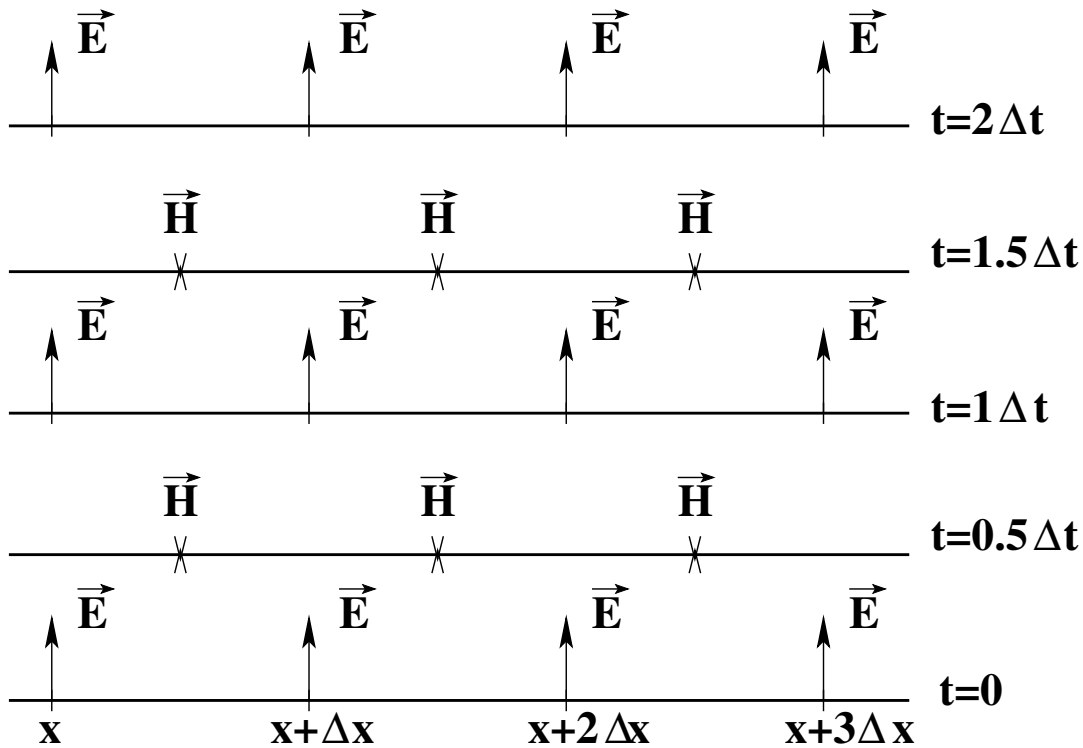


FIG. 4.5: Enchaînement temporel des calculs dans l'algorithme de Yee pour le cas d'une propagation unidimensionnelle suivant  $x$ . Les relations spatiales entre les champs magnétique et électrique se retrouvent sur l'axe horizontal alors que les relations temporelles sont sur un axe vertical.  $\Delta t$  est le pas de discrétisation temporelle. La position des champs est la même quelque soit la fréquence regardée.

composantes évoquées lors de la discrétisation spatiale sont évaluées pour des instants séparés d'une durée  $\Delta t$  qui est le pas de discrétisation de la variation temporelle. Alors que les relations spatiales entre le champ magnétique et le champ électrique se font de manière centrale (une composante de  $\vec{H}$  définie en fonction de quatre de celles du champ  $\vec{E}$ ), les relations temporelles se font à la manière du "saute-mouton". Le champ électrique à l'instant  $n\Delta t$  est non seulement fonction du champ magnétique à l'instant  $(n - \frac{1}{2})\Delta t$  mais aussi du champ électrique à l'instant précédent  $(n - 1)\Delta t$ . De même, le champ magnétique à l'instant  $(n + \frac{1}{2})\Delta t$  est fonction des champs électriques à  $n\Delta t$  et magnétiques à  $(n - \frac{1}{2})\Delta t$ . La deuxième règle relative

à la discrétisation du temps implique que tous les champs sont nuls à l'origine des temps.

Le découpage du temps et de l'espace ne se fait pas au hasard ou au mieux de nos intérêts. En effet, les pas de discrétisation temporelle et spatiale sont contraints par des relations de majoration pour garder une bonne stabilité numérique durant les calculs. Ces relations découlent de l'étude sur la dispersion numérique<sup>[74]</sup> :

$$\begin{cases} \max(\Delta_x, \Delta_y, \Delta_z) \leq \frac{\min(\lambda_m)}{20} & \text{si } \lambda_m \text{ représente les différentes longueurs d'onde} \\ \Delta t = \frac{\min(\Delta_x, \Delta_y, \Delta_z)}{2c} & \text{avec } c \text{ la vitesse de la lumière dans le vide} \end{cases} \quad (4.72)$$

L'algorithme de Yee se résume donc en trois points :

- résolution des deux équations de Maxwell en rotationnel pour les composantes des champs électriques et magnétiques.
- discrétisation de l'espace de telle sorte que les composantes du champ électrique soient reliées aux composantes du champ magnétique par différence centrée. Il faut prendre garde à respecter le critère de discrétisation spatiale.
- le temps est découpé en  $n$  intervalles dont la longueur vérifie l'équation (4.72). La relation temporelle entre les champs se fait à la manière d'un "saute-mouton".

La résolution des équations (4.66bx-4.66az) en suivant la procédure décrite dans l'algorithme de Yee commence par transformer les dérivées en différences finies. Par exemple l'équation (4.66bx) devient :

$$\begin{aligned} H_x(\omega_m) \Big|_{(i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} &= H_y(\omega_m) \Big|_{(i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2})}^{n-\frac{1}{2}} + & (4.66ax') \\ \frac{\Delta t}{\mu_0} \left( \frac{E_y(\omega_m) \Big|_{(i,j+\frac{1}{2},k+1)}^n - E_y(\omega_m) \Big|_{(i,j+\frac{1}{2},k)}^n}{\Delta z} - \frac{E_z(\omega_m) \Big|_{(i,j+1,k+\frac{1}{2})}^n - E_z(\omega_m) \Big|_{(i,j,k+\frac{1}{2})}^n}{\Delta y} \right), & \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} H_y(\omega_m) \Big|_{(i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} &= H_z(\omega_m) \Big|_{(i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2})}^{n-\frac{1}{2}} + & (4.66ay') \\ \frac{\Delta t}{\mu_0} \left( \frac{E_z(\omega_m) \Big|_{(i+1,j,k+\frac{1}{2})}^n - E_z(\omega_m) \Big|_{(i,j,k+\frac{1}{2})}^n}{\Delta x} - \frac{E_x(\omega_m) \Big|_{(i+\frac{1}{2},j+1,k)}^n - E_x(\omega_m) \Big|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^n}{\Delta z} \right), & \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} H_z(\omega_m) \Big|_{(i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k)}^{n+\frac{1}{2}} &= H_x(\omega_m) \Big|_{(i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k)}^{n-\frac{1}{2}} + & (4.66az') \\ \frac{\Delta t}{\mu_0} \left( \frac{E_x(\omega_m) \Big|_{(i+\frac{1}{2},j+1,k)}^n - E_x(\omega_m) \Big|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^n}{\Delta y} - \frac{E_y(\omega_m) \Big|_{(i+1,j+\frac{1}{2},k)}^n - E_y(\omega_m) \Big|_{(i,j+\frac{1}{2},k)}^n}{\Delta x} \right), & \end{aligned}$$

---

[74] K. YEE, "Numerical Solution of Initial Boundary Value Problems involving Maxwell's Equations," IEEE Trans. Antennas and Propagation **14**, 302–7 (1966).

$$E_x(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^{n+1} = E_x(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^n + \frac{\Delta t}{\epsilon_0 \epsilon(i,j,k)} \quad (4.66bx')$$

$$\left( \frac{H_z(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k)}^{n+\frac{1}{2}} - H_z(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j-\frac{1}{2},k)}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta y} - \frac{H_y(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} - H_y(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j,k-\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta z} \right),$$

$$E_y(\omega_m)|_{(i,j+\frac{1}{2},k)}^{n+1} = E_y(\omega_m)|_{(i,j+\frac{1}{2},k)}^n + \frac{\Delta t}{\epsilon_0 \epsilon(i,j,k)} \quad (4.66by')$$

$$\left( \frac{H_x(\omega_m)|_{(i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} - H_x(\omega_m)|_{(i,j+\frac{1}{2},k-\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta z} - \frac{H_z(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k)}^{n+\frac{1}{2}} - H_z(\omega_m)|_{(i-\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k)}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta x} \right),$$

$$E_z(\omega_m)|_{(i,j,k+\frac{1}{2})}^{n+1} = E_z(\omega_m)|_{(i,j,k+\frac{1}{2})}^n + \frac{\Delta t}{\epsilon_0 \epsilon(i,j,k)} \quad (4.66bz')$$

$$\left( \frac{H_y(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} - H_y(\omega_m)|_{(i-\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta x} - \frac{H_x(\omega_m)|_{(i,j+\frac{1}{2},k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} - H_x(\omega_m)|_{(i,j-\frac{1}{2},k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta y} \right),$$

où  $E_z(\omega_m)|_{(i,j,k+\frac{1}{2})}^{n+1}$  est la composante  $z$  du champ  $\vec{E}(\omega_m, t)$  à l'instant  $(n+1)\Delta t$  au point  $(i, j, k + \frac{1}{2})$ . Il en va de même pour les grandeurs similaires.

Ces six équations permettent donc de résoudre les différentes composantes des champs électriques et magnétiques dans tout l'espace de calcul et en tout instant. Seulement, il ne faut pas oublier que l'algorithme de Yee a été développé dans le cas où la dispersion en fréquence de la réponse linéaire et les effets non linéaires du matériau ont été négligés. Il faut donc trouver un moyen d'en tenir compte dans la procédure de résolution.

### 4.3.2 Dispersion linéaire, anisotropie et les effets non linéaires

Dans ce paragraphe, nous traitons de la dispersion en fréquence des phénomènes linéaires aussi bien pour le premier harmonique que pour le second. En fait, nous tenons compte des effets de dispersion uniquement pour les matériaux où ils sont importants, comme dans les métaux. Les non linéarités sont toujours considérées comme négligeables pour le premier harmonique. Nous les introduisons donc uniquement pour le second harmonique.

### Matériaux isotropes

La réponse des matériaux due aux effets magnétiques étant négligeable, la réaction d'un matériau à l'excitation électromagnétique est contenue dans le vecteur déplacement électrique de l'équation (4.67a). Dans cette équation, deux parties se détachent, une linéaire  $\vec{\mathbb{P}}^l$  et l'autre non  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}$ . La transformée de Fourier de cette équation permet d'écrire :

$$\vec{D}(\omega_m) = \varepsilon_0 \varepsilon(\omega_m) \vec{E}(\omega_m) + \vec{\mathbb{P}}^{nl}(\omega_m), \quad (4.73)$$

où  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}(\omega_m)$  est non nul uniquement pour  $\omega_m = 2\omega$  et  $\varepsilon(\omega_m)$  est une fonction de la fréquence qui, dans le cas des métaux, est décrite par le modèle de Drude :

$$\varepsilon(\omega_m) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega_m(\omega_m + i\gamma_c)}. \quad (4.74)$$

Cette fonction introduit la dispersion en fréquence des phénomènes linéaires au travers de la fréquence plasma  $\omega_p$  et à l'inverse du temps de collision  $\gamma_c$ . Ces deux nouvelles grandeurs sont intrinsèques au matériau considéré. Grâce à cette expression, la partie linéaire de la relation (4.73) s'écrit comme un polynôme de puissance de  $\omega_m$ , Ceci nous évite d'avoir à calculer un produit de convolution en faisant la transformée inverse du produit  $\varepsilon(\omega_m) \vec{E}(\omega_m)$ .

Les non linéarités étant instantanées, elles sont calculées à partir de l'équation (4.45) énoncée dans la méthode de Rayleigh perturbative sans faire apparaître de produit de convolution :

$$\vec{\mathbb{P}}_{\vec{n}}^{nl}(2\omega, t) = \chi_{\vec{n}\vec{n}\vec{n}}^s(2\omega : \omega, \omega) \vec{E}_{\vec{n}}(\omega, t) \vec{E}_{\vec{n}}(\omega, t). \quad (4.45')$$

D'après les remarques précédentes, la transformée de Fourier inverse de la relation (4.73) permet de relier le champ électrique au vecteur déplacement électrique et aux sources non linéaires. Cette relation est directement écrite dans le formalisme des différences finies ci-dessous pour la composante  $x$  :

$$\begin{aligned} E_x(\omega_m) \Big|_{(i+\frac{1}{2}, j, k)}^n &= \frac{E_x(\omega_m) \Big|_{(i+\frac{1}{2}, j, k)}^{n-2} (-(\omega_p \Delta t)^2 + \gamma_c \Delta t - 2) + 4 E_x(\omega_m) \Big|_{(i+\frac{1}{2}, j, k)}^{n-1} +}{(\omega_p \Delta t)^2 + \gamma_c \Delta t + 2} + \\ &\frac{(\gamma_c \Delta t + 2) D_x(\omega_m, t) \Big|_{(i+\frac{1}{2}, j, k)}^n - 4 D_x(\omega_m, t) \Big|_{(i+\frac{1}{2}, j, k)}^{n-1} + (-\gamma_c \Delta t + 2) D_x(\omega_m, t) \Big|_{(i+\frac{1}{2}, j, k)}^{n-2}}{\varepsilon_0 ((\omega_p \Delta t)^2 + \gamma_c \Delta t + 2)} + \\ &\frac{(\gamma_c \Delta t + 2) \mathbb{P}_x^{nl}(\omega_m, t) \Big|_{(i+\frac{1}{2}, j, k)}^n - 4 \mathbb{P}_x^{nl}(\omega_m, t) \Big|_{(i+\frac{1}{2}, j, k)}^{n-1} + (-\gamma_c \Delta t + 2) \mathbb{P}_x^{nl}(\omega_m, t) \Big|_{(i+\frac{1}{2}, j, k)}^{n-2}}{\varepsilon_0 ((\omega_p \Delta t)^2 + \gamma_c \Delta t + 2)} \end{aligned} \quad (4.75)$$

Des relations semblables sont trouvées pour les composantes  $y$  et  $z$ . La polarisation non linéaire est non nulle seulement dans le cas  $\omega_m = 2\omega$ . Ce sont ces relations qui remplacent les équations (4.66bx' - 4.66bz') pour calculer les composantes du champ électrique dans la procédure de résolution des équations de Maxwell de l'algorithme de Yee.

### Matériaux anisotropes

Dans les matériaux anisotropes, la relation (4.73) reste inchangée et la méthode pour exprimer le champ électrique en fonction du vecteur déplacement électrique et de la polarisation non linéaire est la même que dans les matériaux isotropes. Les seules différences viennent du fait que nous ne tenons pas compte de la dispersion en fréquence des effets linéaires (la variation de la permittivité électrique n'est pas assez importante) et que la permittivité électrique  $\epsilon(\omega_m)$  est un tenseur de rang deux (voir équation (2.20)). La relation (4.75) devient alors :

$$\begin{aligned} E_x(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^n &= \frac{1}{A(i,j,k)} \left( (\epsilon_{yy}\epsilon_{zz} - \epsilon_{yz}\epsilon_{zy})(D_x(\omega_m,t)|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^n - \mathbb{P}_x^{nl}(\omega_m,t)|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^n) \right. \\ &+ (\epsilon_{xz}\epsilon_{zy} - \epsilon_{xy}\epsilon_{zz})(D_y(\omega_m,t)|_{(i,j+\frac{1}{2},k)}^n - \mathbb{P}_y^{nl}(\omega_m,t)|_{(i,j+\frac{1}{2},k)}^n) \\ &\left. + (\epsilon_{yz}\epsilon_{xy} - \epsilon_{yy}\epsilon_{xz})(D_z(\omega_m,t)|_{(i,j,k+\frac{1}{2})}^n - \mathbb{P}_z^{nl}(\omega_m,t)|_{(i,j,k+\frac{1}{2})}^n) \right) \end{aligned} \quad (4.76)$$

où  $A(i,j,k) = \epsilon_0 \det(\overleftarrow{\epsilon})$  et toutes les composantes de la permittivité sont prises dans la maille  $(i,j,k)$  à la fréquence  $\omega_m$ . La polarisation non linéaire dans ce genre de matériau devient :

$$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega,t) = \chi(2\omega : \omega, \omega) : \vec{E}(\omega,t)\vec{E}(\omega,t). \quad (4.23')$$

Les mêmes relations pour les composantes  $y$  et  $z$  s'écrivent en faisant une rotation des indices des composantes de la permittivité électrique se trouvant au numérateur. Pour ce genre de matériaux, d'autres méthodes sont aussi utilisées<sup>[75]</sup>, mais par soucis d'homogénéité dans les différents programmes de calcul nous préférons utiliser celle développée ci-dessus.

### Retour à l'algorithme

Dans les deux paragraphes précédents, les composantes du champ électrique sont exprimées en fonction de la polarisation non linéaire, mais aussi en fonction du vecteur déplacement électrique qui n'est pas connu. Pour ce faire, les équations (4.66bx'-4.66bz') de l'algorithme de Yee sont remplacées par les équations ci-dessous pour calculer le vecteur déplacement électrique en fonction du champ magnétique :

$$\begin{aligned} D_x(\omega_m,t)|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^{n+1} &= D_x(\omega_m,t)|_{(i+\frac{1}{2},j,k)}^n + \\ \Delta t \left( \frac{H_z(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j+\frac{1}{2},k)}^{n+\frac{1}{2}} - H_z(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j-\frac{1}{2},k)}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta y} - \frac{H_y(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j,k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} - H_y(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2},j,k-\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta z} \right), \end{aligned} \quad (4.66bx'')$$

[75] J. SCHNEIDER & S. HUDSON, "The finite-difference time domain method applied to anisotropic material," IEEE trans. antennas and propagation **41**, 994-9 (1993).

$$D_y(\omega_m, t)|_{(i, j+\frac{1}{2}, k)}^{n+1} = D_x(\omega_m, t)|_{(i, j+\frac{1}{2}, k)}^n + \quad (4.66by'')$$

$$\Delta t \left( \frac{H_x(\omega_m)|_{(i, j+\frac{1}{2}, k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} - H_x(\omega_m)|_{(i, j+\frac{1}{2}, k-\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta z} - \frac{H_z(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2}, j+\frac{1}{2}, k)}^{n+\frac{1}{2}} - H_z(\omega_m)|_{(i-\frac{1}{2}, j+\frac{1}{2}, k)}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta x} \right),$$

$$D_z(\omega_m, t)|_{(i, j, k+\frac{1}{2})}^{n+1} = D_z(\omega_m, t)|_{(i, j, k+\frac{1}{2})}^n + \quad (4.66bz'')$$

$$\Delta t \left( \frac{H_y(\omega_m)|_{(i+\frac{1}{2}, j, k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} - H_y(\omega_m)|_{(i-\frac{1}{2}, j, k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta x} - \frac{H_x(\omega_m)|_{(i, j+\frac{1}{2}, k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}} - H_x(\omega_m)|_{(i, j-\frac{1}{2}, k+\frac{1}{2})}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta y} \right).$$

Alors, grâce aux équations (4.75-4.76), le champ électrique est exprimé en fonction du vecteur déplacement électrique et de la polarisation non linéaire pour ensuite permettre de calculer le champ magnétique suivant grâce aux équations (4.66ax'-4.66az'). Ceci est possible à tous les instants et pour tous les points de l'espace. Il faut toutefois remarquer que pour les points se trouvant à la limite du volume considéré, le calcul des champs n'est plus possible pour toutes les composantes. Cette remarque est équivalente à celle faite en début de section sur les bords de calcul qui se comportent comme des miroirs parfaits. Les ondes venant se réfléchir sur ces surfaces indésirables perturbent l'expérience théorique. Il est impératif de prévoir des conditions de bord capables d'annuler ces ondes réfléchies.

### 4.3.3 Conditions de bords

Les équations définies dans l'algorithme de Yee (4.66ax'-4.66bz') impliquent que les composantes des champs ne peuvent pas être calculées en tous points de l'espace. Si nous prenons un exemple dans l'espace à deux dimensions pour simplifier la discussion, le maillage de la figure 4.4 est représenté sur la figure 4.6 et les extrémités de ce maillage (c.à.d. au bord de l'espace considéré) sont représentées sur la figure 4.7. Alors nous pouvons définir un ensemble de point pour lesquels existent un problème de calcul et définir les composantes qui ne sont pas calculées en ces points.

- \* Si nous prenons le cas  $x = 0$  (soit  $i = 1$ ) et  $z$  quelconque, les composantes suivantes ne peuvent être calculées en ces points :

$$H_y(\omega_m)\left(\frac{3}{2}, k_y + \frac{1}{2}\right), \quad E_x(\omega_m)\left(\frac{3}{2}, k_x\right), \quad E_z(\omega_m)\left(1, k_z + \frac{1}{2}\right)$$

avec  $k_x \in [1, N_x + 1]$  et  $k_y, k_z \in [1, N_z]$

- \* pour  $x = l_x$  soit  $i = N_x$

$$H_y(\omega_m)\left(N_x + \frac{1}{2}, k_y + \frac{1}{2}\right), \quad E_x(\omega_m)\left(N_x + \frac{1}{2}, k_x\right), \quad E_z(\omega_m)\left(N_x + \frac{1}{2}, k_z + \frac{1}{2}\right)$$



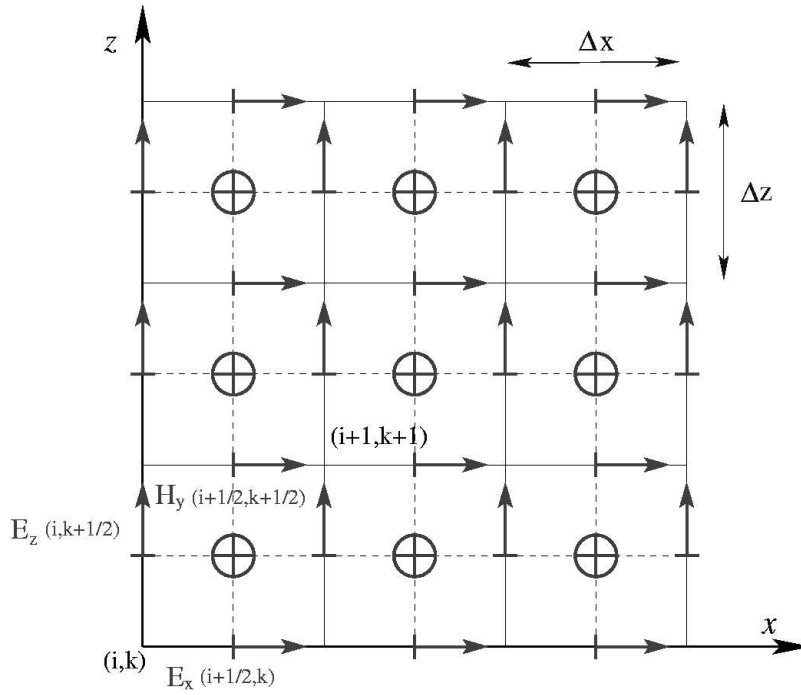


FIG. 4.6: Discrétisation de l'espace pour le cas à deux dimensions de l'algorithme de Yee

\* pour  $z = 0$  soit  $k = 1$

$$H_y(\omega_m)(i_y + \frac{1}{2}, \frac{3}{2}), \quad E_x(\omega_m)(i_x + \frac{1}{2}, 1), \quad E_z(\omega_m)(i_z + \frac{1}{2}, \frac{3}{2})$$

avec  $i_z \in [1, N_x + 1]$  et  $i_y, i_x \in [1, N_x]$

\* pour  $z = l_z$  soit  $k = N_z$

$$H_y(\omega_m)(i_y + \frac{1}{2}, N_z), \quad E_x(\omega_m)(i_x + \frac{1}{2}, N_z + 1), \quad E_z(\omega_m)(i_z, N_z)$$

**Remarque :**  $H_y(\omega_m)$  est représentée par un tableau de taille  $(N_x \times N_z)$ ,  $E_x(\omega_m)$  par un tableau  $(N_x \times (N_z + 1))$  et  $E_z(\omega_m)$  par un tableau  $((N_x + 1) \times N_z)$ .

D'après les équations (4.66ax'-4.66bz'), toutes les composantes de  $H_y(\omega_m)$  sont calculées, mêmes celles pour les limites définies ci-dessus. Par contre, pour  $E_x(\omega_m)$ , l'équation (4.66bx') nous montre que nous ne pouvons pas calculer  $E_x(\omega_m)(i_x + \frac{1}{2}, 1)$  car les  $H_y(\omega_m)(i_x + \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$  n'existent pas. Il en va de même pour  $E_z(\omega_m)$  qui d'après l'équation (4.66bz') a les termes  $E_z(\omega_m)(1, k_z + \frac{1}{2})$  indéfinis car  $H_y(\omega_m)(\frac{1}{2}, k_z + \frac{1}{2})$  n'existent pas. La même remarque peut être faite pour  $E_x(\omega_m)(i_x + \frac{1}{2}, N_z + 1)$  et  $E_z(\omega_m)(N_x + 1, k_z + \frac{1}{2})$ . L'algorithme de Yee préconisant que tous les champs sont nuls à l'instant initial ( $n = 0$ ), il est évident que, quelque soit  $n$ , les différentes composantes aux limites qui viennent d'être évoquées restent nulles. Le champ magnétique calculé grâce à ces lignes s'en trouve aussi perturbé.

Ces limites entraînent une conséquence importante : il y a naissance d'ondes réfléchies sur les bords de la

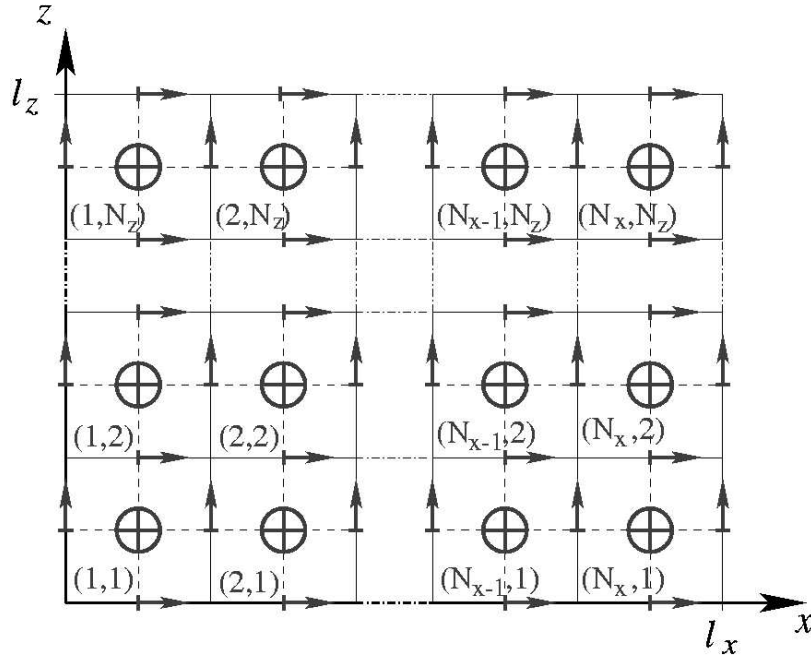


FIG. 4.7: Champs aux limites d'une fenêtre de calcul à deux dimensions

fenêtre de calcul. Ces ondes étant des artefacts de calcul, elles doivent être éliminées.

Dans la suite de ce paragraphe, les matériaux formant les bords de l'espace de calcul sont isotropes linéaires. En effet dans cette thèse, nous avons développé les méthodes de conditions de bords uniquement pour ce type de matériau, même si nous connaissons l'existence de travaux les adaptant pour des matériaux non linéaires ou encore anisotropes<sup>[76,77]</sup>.

### Méthode de Mur à l'ordre deux

La méthode de Mur consiste à remplacer les lignes des tableaux de composantes non calculées par des valeurs qui simulent l'absence de bord. Cette méthode est basée sur l'équation de propagation d'une onde obtenue grâce aux équations (4.66a-4.66b) :

$$\frac{\partial^2 H_y(\omega_m)}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 H_y(\omega_m)}{\partial z^2} - \frac{\epsilon(\omega_m)}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{H}(\omega_m, t)}{\partial t^2} = 0 \quad (4.77)$$

L'équation de propagation peut s'écrire de la sorte car les matériaux formant le bord de l'espace de calcul sont tous linéaires et isotropes et que nous sommes dans le cas à deux dimensions. Nous introduisons l'opérateur  $G$  qui représente les différentes opérations de l'équation précédente :

$$GH_y(\omega_m) = 0 \quad (4.78)$$

[76] J. MA, J. XU & Z. CHEN, "Nonlinear PML for absorption of nonlinear electromagnetic waves," IEEE MTT-S Int. Microwave Symp. **3**, 1381-4 (1997).

[77] G. LAZZI, "Unconditionally stable D-H FDTD formulation with anisotropic PML boundary conditions," IEE Mic. Wir. Comp. Let. **11**, 149-51 (2001).

où  $G$  s'écrit comme la multiplication de deux autres opérateurs  $G_x^+$  et  $G_x^-$

$$\begin{aligned} G_x^+ &= \frac{\partial}{\partial x} + \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega_m)}}{c} \frac{\partial}{\partial t} \sqrt{1 - S_x^2} \\ G_x^- &= \frac{\partial}{\partial x} - \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega_m)}}{c} \frac{\partial}{\partial t} \sqrt{1 - S_x^2} \end{aligned} \quad (4.79)$$

avec

$$S_x = \frac{c}{\sqrt{\varepsilon}} \frac{\partial}{\partial z} \quad (4.80)$$

On démontre alors que pour  $x = 0$  (voir figure 4.7)

$$G_x^- H_y(\omega_m) = 0 \quad (4.81)$$

et pour  $x = l_x$  (voir figure 4.7)

$$G_x^+ H_y(\omega_m) = 0 \quad (4.82)$$

Pour  $z = 0$  et  $z = l_z$ , il faut intervertir les indices  $x$  et  $z$  : on obtient alors des opérateurs  $G_z$  qui déterminent les conditions de bord en  $z$ .

Développons le cas  $x = 0$

En passant au formalisme des différences finies pour les équations (4.81,4.82) et celles similaires pour  $z = 0$  et  $z = l_z$ , nous sommes capables de trouver une valeur pour chaque ligne critique du champ magnétique. Ainsi, la ligne  $(\frac{3}{2}, k)$  du champ magnétique est remplacée par :

$$\begin{aligned} H_y(\omega_m) \Big|_{(\frac{3}{2}, k)}^{n+1} &= -H_y(\omega_m) \Big|_{(\frac{5}{2}, k)}^{n-1} + \frac{c\Delta t - \Delta x \sqrt{\varepsilon(\omega_m)(1, k)}}{c\Delta t + \Delta x \sqrt{\varepsilon(\omega_m)(1, k)}} \left( H_y(\omega_m) \Big|_{(\frac{5}{2}, k)}^{n+1} + H_y(\omega_m) \Big|_{(\frac{3}{2}, k)}^{n-1} \right) + \dots \\ &\dots \frac{2\sqrt{\varepsilon(\omega_m)(1, k)}\Delta x}{c\Delta t + \Delta x \sqrt{\varepsilon(\omega_m)(1, k)}} \left( H_y(\omega_m) \Big|_{(\frac{3}{2}, k)}^n + H_y(\omega_m) \Big|_{(\frac{5}{2}, k)}^n \right) + \dots \\ &\frac{c^2(\Delta t)^2 \Delta x}{2\sqrt{\varepsilon(\omega_m)(1, k)}(\Delta z)^2 (c\Delta t + \Delta x \sqrt{\varepsilon(\omega_m)(1, k)})} \left[ H_y(\omega_m) \Big|_{(\frac{3}{2}, k+1)}^n - 2 H_y(\omega_m) \Big|_{(\frac{3}{2}, k)}^n + \dots \right. \\ &\left. \dots H_y(\omega_m) \Big|_{(\frac{3}{2}, k-1)}^n + H_y(\omega_m) \Big|_{(\frac{5}{2}, k+1)}^n - 2 H_y(\omega_m) \Big|_{(\frac{5}{2}, k)}^n + H_y(\omega_m) \Big|_{(\frac{5}{2}, k-1)}^n \right] \end{aligned} \quad (4.83)$$

On obtient les mêmes relations pour  $x = l_x$  et  $z = 0$ ,  $z = l_z$ . Une fois les lignes critiques du champ magnétique toutes remplacées, nous devons recommencer pour les deux composantes du champ électrique. Cette méthode convient parfaitement aux phénomènes dont on connaît assez bien les directions de propagation. Toutefois, si nous sommes en présence d'un phénomène très diffractant, la méthode de Mur à l'ordre deux n'est pas capable d'empêcher les réflexions de toutes les directions de propagation. Cette limitation pousse nombre de gens à utiliser une méthode plus compliquée à mettre en place mais qui permet une diminution plus importante des artefacts de réflexion et ce pour toutes les directions de propagation.

### Méthode des couches parfaitement adaptées (Perfectly Matched Layer ou PML)

La méthode des couches parfaitement adaptées est introduite dans la FDTD par Berenger<sup>[78,79,80]</sup>. Cette méthode est basée sur l'absorption des ondes incidentes sur les bords en adjoignant à la fenêtre de calcul des milieux conducteurs absorbants, comme le montre la figure 4.8 dans laquelle  $\sigma_x, \sigma_z, \sigma_x^*, \sigma_z^*$  représentent respectivement les conductivités électriques ( $x, z$ ) et les pertes magnétiques ( $x, z$ ). Ces milieux absorbants sont limités à l'extérieur par un miroir parfaitement réfléchissant.

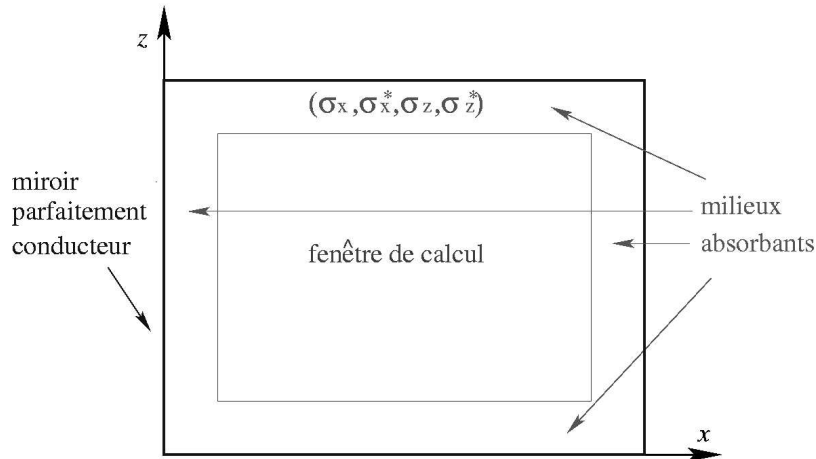


FIG. 4.8: Position des milieux absorbants autour de la fenêtre de calcul dans la méthode des couches parfaitement adaptées

Le but de cette méthode sera d'une part, d'assurer un coefficient de réflexion nul entre les milieux absorbants et la fenêtre de calcul. D'autre part, elle doit atténuer les ondes transmises dans les milieux absorbants suffisamment pour que l'on puisse négliger les réflexions retour sur le miroir parfait dans la fenêtre de calcul.

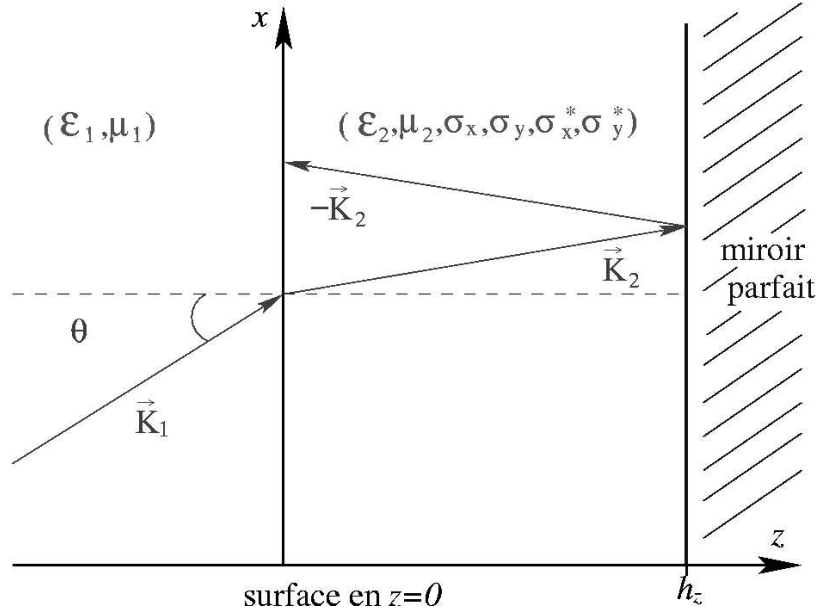
Pour un espace à deux dimensions, il faut dissocier le cas TM du cas TE. Nous ne traitons ici que la polarisation TM dans le cas simple de la figure 4.9

Berenger écrit les équations de Maxwell en dissociant  $H_y$  ainsi :

$$H_y = H_{yx} + H_{yz} \quad (4.84)$$

En tenant compte de la conductivité et des pertes, l'équation (4.66b) se décompose ainsi pour les différentes composantes dans les milieux de la PML :

- 
- [78] J. BERENGER, "A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves," J. Comp. Phys. **114**, 185–200 (1994).
- [79] J. BERENGER, "A perfectly matched layer for free-space simulation in finite-difference computer codes," Ann. Telecomm. **51**, 39–46 (1996).
- [80] J. BERENGER, "Three-dimensional perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves," J. Comp. Phys. **127**, 363–79 (1996).


 FIG. 4.9: Bord de la fenêtre de calcul en  $z = 0$  avec une couche absorbante délimitée par un miroir parfait.

$$i\omega\epsilon_2 \left(1 - \frac{\sigma_z}{i\omega\epsilon_2}\right) E_x = \frac{\partial (H_{yx} + H_{yz})}{\partial z} \quad (4.85)$$

$$i\omega\epsilon_2 \left(1 - \frac{\sigma_x}{i\omega\epsilon_2}\right) E_z = -\frac{\partial (H_{yx} + H_{yz})}{\partial x} \quad (4.85-b)$$

$$i\omega\mu_2 \left(1 - \frac{\sigma_x^*}{i\omega\mu_2}\right) H_{yx} = \frac{\partial E_z}{\partial x} \quad (4.85-c)$$

$$i\omega\mu_2 \left(1 - \frac{\sigma_z^*}{i\omega\mu_2}\right) H_{yz} = -\frac{\partial E_x}{\partial z} \quad (4.85-d)$$

On pose :

$$s_w = \left(1 - \frac{\sigma_w}{i\omega\epsilon_2}\right) \quad s_w^* = \left(1 - \frac{\sigma_w^*}{i\omega\mu_2}\right) \quad \text{avec } w = (x, z) \quad (4.86)$$

Grâce à cette décomposition, il est possible de trouver le coefficient de réflexion sur la surface qui sépare la fenêtre de calcul de la couche absorbante de la PML :

$$\Gamma = \frac{\epsilon_2 w_1 - \epsilon_1 w_2 \sqrt{\frac{s_z^*}{s_z}}}{\epsilon_2 w_1 + \epsilon_1 w_2 \sqrt{\frac{s_z^*}{s_z}}} \quad (4.87)$$

L'association des différents paramètres de  $\Gamma$  qui permet de l'annuler et ainsi d'assurer un calcul sans artefact dû à la présence de bord est énoncé comme suit :  $\boxed{\epsilon_1 = \epsilon_2, \mu_1 = \mu_2}$ ,  $s_z = s_z^*$  soit  $\boxed{\frac{\sigma_z^*}{\mu_1} = \frac{\sigma_z}{\epsilon_1}}$ . En posant  $\eta = \sqrt{\frac{\mu_1}{\epsilon_1}}$ , on écrit les champs dans le milieu de transmission :

$$H_y = H_0 e^{-\sigma_z \eta \cos \theta_z} \quad (4.88)$$

$$E_x = H_0 \eta \cos \theta e^{i(ux+w_2z)} e^{-\sigma_z \eta \cos \theta_z} \quad (4.89)$$

$$E_z = H_0 \eta \sin \theta e^{i(ux+w_2z)} e^{-\sigma_z \eta \cos \theta_z} \quad (4.90)$$

On voit aux formes des champs transmis que ce sont des champs atténués avec l'argument  $\zeta = \sigma_z \eta \cos \theta_z$ .  $\eta$  étant fixé,  $\theta$  aussi, nous pouvons jouer sur  $z$  et  $\sigma_z$  pour que l'onde retour après réflexion sur le miroir parfait (voir figure 4.9) soit négligeable, c'est-à-dire que son module soit au moins  $e^{-10}$  fois moindre que le module de départ.

Donc en  $z = 0$ , le module est de  $H_0$  après l'aller et après le retour le module est de  $H_0 e^{-2\sigma_z \eta \cos \theta_h}$ , donc :

$$\sigma_z \geq \frac{5}{\eta \cos \theta_h} \quad (4.91)$$

Nous avons donc obtenu l'annulation de la réflexion sur la surface  $z = 0$  en ajoutant un bord d'épaisseur  $h$  et de paramètre  $\sigma_x \sigma_x^* \sigma_z \sigma_z^* \epsilon_2 \mu_2$ .

L'onde se propage en vérifiant les équations de Berenger et les différents paramètres doivent vérifier que  $\epsilon_2 = \epsilon_1$ ,  $\mu_2 = \mu_1$ ,  $\sigma_x = \sigma_x^* = 0$ ,  $\frac{\sigma_z}{\mu_1} = \frac{\sigma_z^*}{\epsilon_1}$  et  $\sigma_z \geq \frac{5}{\eta \cos \theta_h}$ .

La même décomposition peut se faire en  $x = 0$  et les conditions pour les équations de Berenger seront :  $\epsilon_1 = \epsilon_2$ ,  $\mu_2 = \mu_1$ ,  $\frac{\sigma_x}{\mu_1} = \frac{\sigma_x^*}{\epsilon_1}$ ,  $\sigma_z = \sigma_z^* = 0$  et  $\sigma_x \geq \frac{5}{\eta \cos \theta_h}$ .

En récapitulant sur un schéma, on obtient la figure 4.10.

remarque : Cette démonstration ne marche que pour une onde polarisée TM ; il faut refaire une démonstration analogue pour TE.

## Discussion

Nous comparons dans le tableau 4.3 les coefficients de réflexion sur les bords de la fenêtre de calcul obtenus grâce aux méthodes de Mur et PML. Cette étude a été effectuée dans un espace contenant un objet non linéaire flottant dans de l'air. L'air est le milieu qui forme les bords de la fenêtre de calcul. Le champ incident est soit une onde plane soit un faisceau gaussien. Dans cette configuration, nous pouvons observer que la PML est une méthode plus efficace que la méthode de Mur quelque soit l'harmonique considéré. Cependant, dans cette thèse, nous utilisons encore la méthode de Mur à l'ordre deux pour éliminer les réflexions parasites pour plusieurs exemples. En effet, nous ne maîtrisons encore pas la méthode PML à

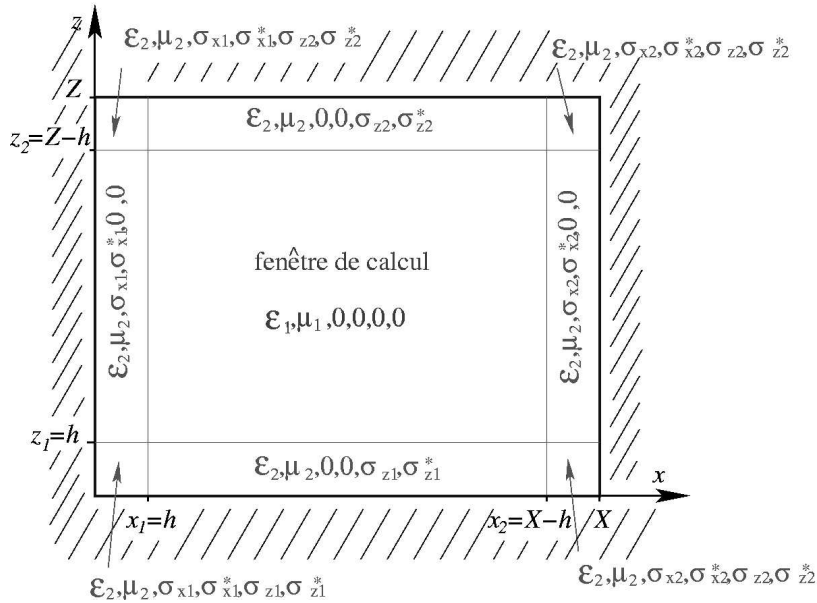


FIG. 4.10: Schéma récapitulatif de la décomposition de l'espace dans la méthode FDTD complétée par les couches absorbantes de la PML

	FF		SH	
	Mur	PML	Mur	PML
Onde Plane	$10^{-4}$	$10^{-7}$	$1.5 \cdot 10^{-4}$	$1.5 \cdot 10^{-7}$
Faisceau Gaussien	$6 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-7}$	$4 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-7}$

TAB. 4.3: Tableau de comparaison entre les méthodes de Mur et PML. Nous comparons les coefficients de réflexion en intensité sur la surface de la fenêtre de calcul aux fréquences du premier et second harmonique dans le cas bidimensionnel. Les ondes incidentes sont des impulsions temporels avec une enveloppe spatiale gaussienne ou de type onde plane

trois dimensions <sup>[80]</sup>. Toutefois, nous savons traiter les problèmes à trois dimensions présentant une double périodicité (e.g. espace périodique suivant  $x$  et  $y$ , mais non périodique suivant  $z$ )

## 4.4 Conclusion.

Dans un premier temps, la méthode de Rayleigh perturbative est développée pour les milieux anisotropes non linéaires en employant une méthode modale. Celle-ci permet de réduire le nombre d'équations nécessaires au calcul des différents modules des champs. Dans le cas d'une géométrie quelconque, le résultat de ce calcul est numérique, mais nous voyons au chapitre 5 que dans certains cas où la géométrie le permet nous pouvons avoir accès aux résultats analytiques des champs. Ensuite, la méthode perturbative est appliquée aux matériaux centrosymétriques non linéaires (considérés comme isotropes). Dans ce cas, la même remarque sur la complexité des solutions peut être faite. Pour ce type de matériaux nous développons la méthode perturbative par rapport aux composantes des champs et non plus en fonction des modes des champs. Cette méthode est plus lourde à mettre en place pour le cas général, mais dans certaines conditions (où par exemple une seule polarisation existe) cette démarche devient beaucoup plus simple que de résoudre le système matriciel de la méthode modale (voir chapitre 5).

Dans un deuxième temps, nous traitons de la méthode FDTD pour des matériaux non linéaires. Tout d'abord, nous exposons ce qu'est l'algorithme de Yee et les équations aux différences finies pour des matériaux considérés comme isotropes linéaires. Ensuite nous introduisons le caractère dispersif de la réponse linéaire du matériau ainsi que les non linéarités, puis nous tenons compte de l'anisotropie des matériaux. La FDTD impliquant une taille finie de la fenêtre de calcul, nous avons présenté deux méthodes qui pallient à ce problème : la méthode de Mur à l'ordre deux et la méthode des couches parfaitement adaptées (PML). Ces deux méthodes sont brièvement comparées pour donner un net avantage à la PML. Toutefois nous sommes encore obligés d'utiliser la méthode de Mur car nous ne maîtrisons pas la PML pour une géométrie purement tridimensionnelle. Une amélioration du maillage de la fenêtre de calcul a été mise en œuvre pour agrandir virtuellement la taille de cette fenêtre. Ceci en donnant des dimensions  $\delta_x$ ,  $\delta_y$ ,  $\delta_z$  variant pour chaque cellule suivant la finesse des détails de la géométrie dans la fenêtre de calcul. Cette méthode est appelée maillage adaptatif. Nous n'en traitons pas dans ce travail, mais elle est développée dans la référence suivante<sup>[81]</sup>. Toutefois, nous l'utilisons afin de prendre en compte un espace de calcul plus grand qui repousse les frontières plus loin et dans lequel les effets de bords sont donc moins importants. Ce qui permet d'améliorer encore les résultats apportés par la PML ou la méthode de Mur. Elle permet aussi dans certain cas de diminuer les temps de calcul qui sont assez important dans la méthode des différence finies.

---

[80] J. BERENGER, "Three-dimensional perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves," *J. Comp. Phy.* **127**, 363–79 (1996).

[81] S. HAITAO, K. KURODA & Y. SUZUKI, "Non-uniform grid finite-difference time-domain method for the simulation of electromagnetic distributions," *IEEE Antennas and Propagation Society International Symposium* **1**, 124–7 (1996).



Ces deux méthodes ne sont pas à mettre en compétition. Les deux sont utiles dans leur domaine. La méthode de Rayleigh est plus appliquée dans la géométrie des réseaux de hauteur très peu importante. Elle est aussi très utile pour une investigation rapide d'un modèle théorique. Quant à la méthode FDTD, elle donne des résultats rigoureux et n'a quasiment pas de limite pour ce qui est de la géométrie des systèmes étudiés.



---

DEUXIÈME PARTIE

---

**Applications à quelques configurations  
expérimentales de l'optique du champ proche**

---



# GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES MATÉRIAUX UNIAXES DIÉLECTRIQUES NON CENTROSYMÉTRIQUES

---

## Sommaire

---

5.1	Introduction . . . . .	92
5.2	Réseaux unidimensionnels . . . . .	92
5.3	Objets tridimensionnels . . . . .	102

---

## 5.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous étudions les effets non linéaires optiques en champ proche (plus particulièrement la génération de second harmonique) pour des matériaux non centrosymétriques.

Dans un premier temps, nous testons et validons les méthodes de simulation (méthode perturbative et FDTD) développées au chapitre précédent. Nous commençons par un cas simple à deux dimensions qui nous permet de comparer les deux méthodes entre elles. Puis, nous prenons des exemples de travaux théoriques déjà publiés pour les confronter à nos résultats. Nous aimerions, dès à présent, évaluer nos résultats en fonction d'études expérimentales, mais les travaux déjà publiés ne sont pas modélisables par nos méthodes, soit parce qu'ils mettent en œuvre des surfaces aléatoires<sup>[82,83]</sup>, soit parce qu'ils sortent de notre champ de validité (non linéarités magnétiques)<sup>[13,15,16]</sup>. Cependant, nous commençons une série de simulations concernant le Niobate de Strontium barium en vue d'une collaboration expérimentale avec le laboratoire d'optique physique de l'École supérieure de physique et de chimie industrielle de Paris.

## 5.2 Réseaux unidimensionnels

### 5.2.1 Configuration expérimentale et simplifications théoriques

Une onde plane de pulsation  $\omega = \frac{2\pi c}{\lambda}$ , avec  $\lambda$  la longueur d'onde, est incidente sous un angle  $\theta_i$  depuis les  $z < 0$  sur une surface séparant l'air (milieu 1,  $z < 0$ ) d'un milieu diélectrique anisotrope ayant des propriétés non-linéaires (milieu 2,  $z > 0$ ) : le dihydrogénate de potassium ( $KH_2PO_4$ ) que l'on note plus couramment KDP. Le plan principal est formé par le vecteur d'onde de l'onde incidente  $\vec{K}_i$  et l'axe des  $z$ . Cette surface contient des rugosités modélisées par une fonction créneau  $z = f(x)$  :

$$f(x) = \begin{cases} h(1-c) & \text{pour } x \in [0, b] \\ -hc & \text{pour } x \in [b, a] \end{cases} \quad (5.1)$$

C'est un réseau unidimensionnel de période  $a$ , de rapport cyclique  $c = \frac{b}{a}$ , placé de telle façon que sa valeur moyenne soit nulle. La hauteur des créneaux est  $h$ . Cette configuration est représentée sur la figure 5.1, où

- 
- [82] S. BOZHEVOLNYI, K. PEDERSEN, T. SKETTRUP, X. ZHANG & M. BELMOTE, "Far- and Near-field second-harmonic imaging of ferroelectric domain walls," *Opt. Com.* **152**, 221–4 (1998).
  - [83] I. SMOLYANINOV, C. LEE & C. DAVIS, "Near field second harmonic imaging of lead zirconate titanate piezoceramic," *App. Phys. Let.* **74**, 1942–4 (1999).
  - [13] I. SMOLYANINOV, A. ZAYATS & C. DAVIS, "Near field second harmonic imaging of ferromagnetic and ferroelectric materials.," *Opt. Let.* **22**, 1592–4 (1997).
  - [15] R. VOLLMER, Q. JIN, H. REGENSBURGER & J. KIRSCHNER, "Second-harmonic generation from magnetic surfaces and thin films," *J. of Magnetism and Magnetic Materials International* **199**, 611–616 (1999).
  - [16] H. SAITO, V. ZAYETS, S. YAMAGATA & K. ANDO, "Magneto-optical studies of ferromagnetism in the II-VI dilutes magnetic semiconductor  $Zn_{1-x}Cr_xTe$ ," *Phys. Rev. B* **66**, 081201/1–4 (2002).

## CHAPITRE 5. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES MATÉRIAUX UNIAXES DIÉLECTRIQUES NON CENTROSYMÉTRIQUES

$\vec{E}_i$  est la polarisation du champ incident,  $\vec{K}_i$  son vecteur d'onde et  $\theta_i$  l'angle d'incidence.

Le KDP étant anisotrope, le cas général donne plusieurs champs transmis et réfléchis pour chaque harmonique temporel. Afin de simplifier les calculs, nous prenons une configuration géométrique qui permet d'avoir un seul champ en transmission et en réflexion aussi bien pour la fréquence fondamentale que pour le second harmonique<sup>[34]</sup>. Elle consiste à prendre l'axe optique du KDP et la polarisation de l'onde incidente dans le plan principal. Afin de simplifier encore les calculs, l'axe optique du cristal est confondu avec l'axe  $z$  de notre repère : l'onde incidente est polarisée transverse magnétique (TM) et le repère naturel du cristal est alors confondu avec le repère de propagation.

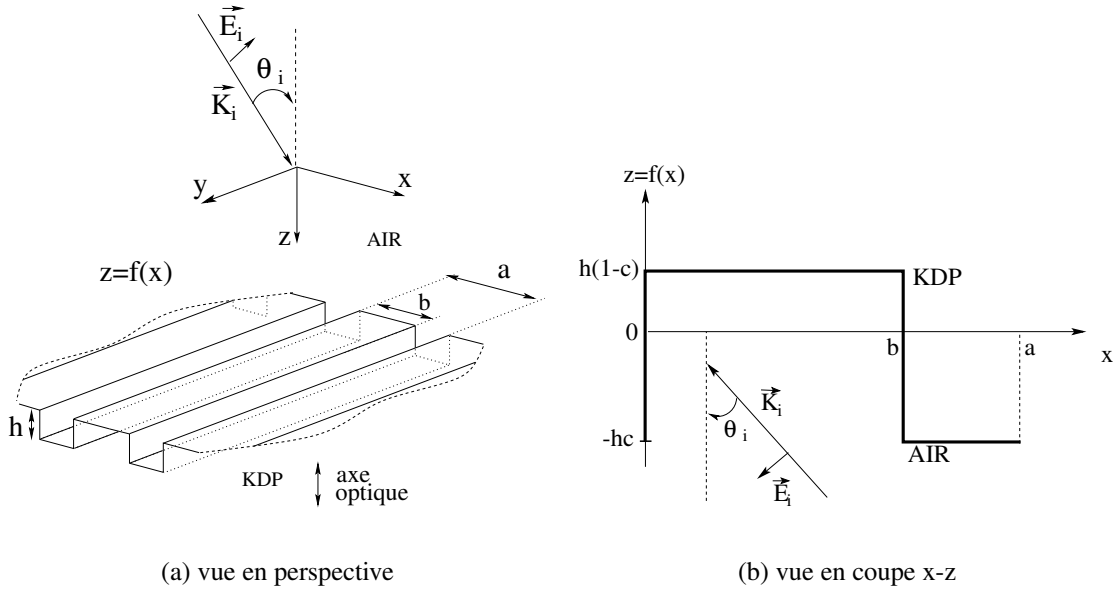


FIG. 5.1: Schéma du réseau considéré vu en perspective (a) et en coupe ( $x$ - $z$ ) (b).  $\vec{E}_i$  est l'onde incidente de pulsation  $\omega$ ,  $\theta_i$  est l'angle d'incidence et  $\vec{K}_i$  le vecteur d'onde incident. La surface  $z=f(x)$  sépare l'air ( $z<0$ ) du KDP ( $z>0$ ).  $a$  est la période du réseau et  $b$  la largeur du créneau et  $c = \frac{b}{a}$ .

Pour l'air considéré comme linéaire isotrope, la résolution de cette équation se fait d'une manière classique que nous développerons plus loin avec  $\epsilon_1(\omega_m) = 1$ .

Par contre dans le KDP un matériau anisotrope non-linéaire, la résolution de cette équation est assez compliquée de par son caractère tensoriel (voir chapitre 2). En effet,  $\epsilon_2(\omega_m)$  est le tenseur d'ordre deux :

$$\epsilon_2(\omega_m) = \begin{pmatrix} \epsilon_{(2)o}(\omega_m) & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{(2)o}(\omega_m) & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{(2)e}(\omega_m) \end{pmatrix}, \quad (5.2)$$

où  $\epsilon_{(2)e}(\omega_m)$  est la permittivité extraordinaire et  $\epsilon_{(2)o}(\omega_m)$  l'ordinaire.

Mais grâce à la configuration choisie, nous retrouvons un problème classique semblable au cas des milieux

[34] N. BLOEMBERGEN & P. PERSHAN, "Light waves at boundary of non-linear media," Phys. Rev. **128**, 606–22 (1962).

isotropes<sup>[34]</sup>.

En effet, dans notre configuration, la polarisation du champ incident étant perpendiculaire aux traits du réseau, il n'y a pas de dépolarisation après l'interface à la fréquence fondamentale : les champs à cette fréquence sont donc tous polarisés TM. Ainsi le champ transmis à la fréquence fondamentale  $\vec{E}(\omega, t)$  est le champ extraordinaire dans le KDP et la permittivité relative  $\epsilon_{(2)}(\omega)$  devient alors le scalaire donné par l'angle de transmission  $\theta_{(2)}(\omega)$ .

$$\epsilon_{(2)}(\omega) = \frac{\epsilon_{(2)e}(\omega)\epsilon_{(2)o}(\omega)}{\epsilon_{(2)e}(\omega)\cos^2(\theta_{(2)}(\omega)) + \epsilon_{(2)o}(\omega)\sin^2(\theta_{(2)}(\omega))} \quad (5.3)$$

Les angles de transmission sont calculés plus tard en fonction de l'angle d'incidence.

Pour le second harmonique, il n'y a pas de sources extérieures. La seule source est le terme non-linéaire  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega)$  que nous déduisons des champs fondamentaux grâce à

$$\mathbb{P}_k^{nl}(2\omega) = \chi_{kll'}^{(2)}(2\omega : \omega, \omega)E_l(\omega, t)E_{l'}(\omega, t) \quad (5.4)$$

où les trois indices  $k, l$  et  $l'$  indiquent une des trois composantes des champs considérés. La relation précédente est donnée avec la convention d'Einstein pour la sommation sur les indices répétés. Le tenseur  $\chi^{(2)}$ , pour des raisons de symétrie du KDP<sup>[41,84]</sup>, peut se réduire en un tenseur d'ordre 2 noté  $d^{(2)}$  :

$$d^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{36} \end{pmatrix} \quad (5.5)$$

Alors, l'équation (5.4) se réécrit ainsi :

$$\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega) = 2d^{(2)} \begin{pmatrix} (E_x(\omega, t))^2 \\ (E_y(\omega, t))^2 \\ (E_z(\omega, t))^2 \\ 2E_y(\omega, t)E_z(\omega, t) \\ 2E_x(\omega, t)E_z(\omega, t) \\ 2E_x(\omega, t)E_y(\omega, t) \end{pmatrix} \quad (5.6)$$

Dans cette étude, nous négligeons tous les termes non-linéaires d'ordre supérieur comme les effets dipolaires magnétiques et quadripolaires électriques<sup>[40]</sup>.

Nous déduisons de la relation (5.6) que le champ  $\vec{E}(2\omega, t)$  est polarisé transverse électrique (TE). Le

- 
- [34] N. BLOEMBERGEN & P. PERSHAN, "Light waves at boundary of non-linear media," Phys. Rev. **128**, 606–22 (1962).  
 [41] R. WEAST, *Handbook of lasers* (Chemical Rubber Co., 1971).  
 [84] V. DMITRIEV, G. GURZADYAN & D. NIKOGOSYAN, *Handbook of nonlinear optical crystals* (Springer, 1999), Vol. 64.  
 [40] Y. SHEN, *The principles of nonlinear optics* (A Wiley-interscience Publication, New York, 1984).



## CHAPITRE 5. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES MATÉRIAUX UNIAXES DIÉLECTRIQUES NON CENTROSYMÉTRIQUES

champ à la fréquence du second harmonique dans le KDP est aussi appelé champ ordinaire et la permittivité électrique à cette fréquence est donnée par :  $\epsilon_{(2)}(2\omega) = \epsilon_{(2)ot}(2\omega)$ .

Nous venons de démontrer que même dans le KDP, nous pouvons traiter la résolution des équations de Maxwell en considérant que tous les matériaux sont isotropes. Tous ceci est récapitulé dans la figure 5.2 (la séparation en pointillés sur cette figure ne représente pas un décalage spatial physique, cette séparation est présente uniquement pour aérer le schéma).

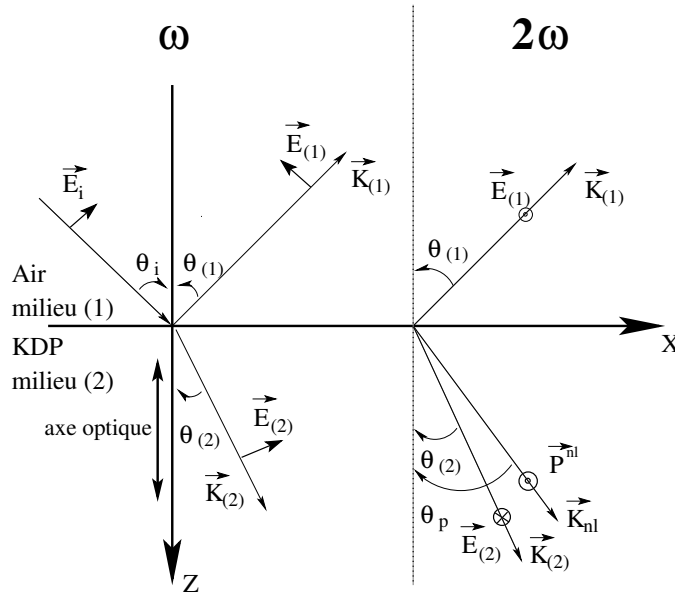


FIG. 5.2: Schéma montrant les angles et polarisations des différents harmoniques temporels dans l'air et le KDP, deux milieux séparés par une interface plane (à gauche des pointillés le premier harmonique, à droite le second).  $\vec{E}_i$  est l'onde incidente, les différents  $\vec{E}(\omega_m, t)$ ,  $\theta_i(\omega_m)$  et  $\vec{K}_i(\omega_m)$  sont respectivement les champs, les angles de propagation par rapport à l'axe  $z$  et les vecteurs d'ondes dans les milieux  $i$  pour les harmoniques temporels  $m$ .  $\vec{P}^{nl}(2\omega)$  est la polarisation non-linéaire,  $\theta_{nl}$  l'angle de propagation de  $\vec{P}^{nl}$  par rapport à l'axe  $z$  et  $\vec{K}_{nl}$  le vecteur d'onde de la polarisation non-linéaire.

Avant de donner les résultats analytiques simplifiés pour chaque harmonique, nous discutons rapidement de la nouvelle solution particulière (présentée dans l'équation (2.19)) de l'équation de propagation pour la fréquence du second harmonique :

$$\vec{E}_p(2\omega) = \frac{\vec{P}_0^{nl}}{\epsilon_{(2)}(\omega) - \epsilon_{(2)}(2\omega)} e^{i(\vec{K}_{nl} \cdot \vec{R} - 2\omega t)}. \quad (5.7)$$

Cette équation met en évidence la possibilité d'une exaltation de la solution particulière lorsque le dénominateur s'annule ( $\epsilon_{(2)}(\omega) = \epsilon_{(2)}(2\omega)$ ). Cet accord de phase est tributaire de plusieurs conditions discutées en annexe B. Dans notre cas, ces conditions ne sont pas remplies. Il n'y a pas d'accord de phase possible et ainsi, pas de cas particulier où les sources non linéaires sont exaltées.

En considérant la géométrie de l'expérience énoncée, la méthode de Rayleigh perturbative donne des solutions simplifiées. Seuls les résultats du second harmonique sont énoncés ici.

Dans l'air, l'ordre zéro de perturbation s'écrit

$$E_{(1)y0}^{(0)}(2\omega) = \frac{(\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) - \gamma_{nl}^{(0)}(2\omega))E_{py0}^{(0)}(2\omega)}{\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) + \gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega)} \quad (5.8)$$

et l'ordre un de perturbation est donné par

$$E_{(1)y0}^{(1)}(p_x, 2\omega) = \frac{(\gamma_{(2)}^{(1)}(2\omega) - \gamma_{nl}^{(1)}(2\omega))E_{py0}^{(1)}(p_x, 2\omega) + i\tilde{f}(p_x)(\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) - \gamma_{nl}^{(0)}(2\omega))(\gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega) - \gamma_{nl}^{(0)}(2\omega))E_{py0}^{(0)}(2\omega)}{\gamma_{(2)}^{(1)}(2\omega) + \gamma_{(1)}^{(1)}(2\omega)}. \quad (5.9)$$

Dans le KDP, les résultats de l'ordre zéro de perturbation s'expriment de façon semblable à ceux obtenus dans l'air,

$$E_{(2)y0}^{(0)}(2\omega) = \frac{(\gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega) - \gamma_{nl}^{(0)}(2\omega))E_{py0}^{(0)}(2\omega)}{\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) + \gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega)} \quad (5.10)$$

et la même remarque est appliquée à l'ordre un de perturbation,

$$E_{(2)y0}^{(1)}(p_x, 2\omega) = \frac{(\gamma_{(1)}^{(1)}(2\omega) - \gamma_{nl}^{(1)}(2\omega))E_{py0}^{(1)}(p_x, 2\omega) + i\tilde{f}(p_x)(\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) - \gamma_{nl}^{(0)}(2\omega))(\gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega) - \gamma_{nl}^{(0)}(2\omega))E_{py0}^{(0)}(2\omega)}{\gamma_{(2)}^{(1)}(2\omega) + \gamma_{(1)}^{(1)}(2\omega)}. \quad (5.11)$$

Les notations dans les équations ci-dessus sont les mêmes que dans le chapitre 4, à savoir : le chiffre en indice entre parenthèse représente le milieu considéré, le chiffre en exposant dénote l'ordre de perturbation, et l'indice  $p$  est donné à la solution particulière de l'équation de propagation aux termes non linéaires évoquée dans le chapitre 4. Ainsi,  $\gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega)$  est la composante suivant l'axe  $z$  du vecteur d'onde à la fréquence  $2\omega$  pour l'ordre zéro de perturbation dans le premier milieu.

Le champ électrique total est exprimé en fonction des solutions ci-dessus en tenant compte des équations (4.6, 2.19). Toutes les autres composantes du champ électrique à la fréquence du second harmonique sont nulles.

## 5.2.2 Résultats analytiques et numériques

La détection de l'intensité du champ électromagnétique dans cette expérience se fait grâce à un microscope champ proche dans une configuration du type SNOM en mode collection<sup>[1]</sup>. Le microscope balaye à hauteur constante la surface considérée dans les figures 4.1 pour détecter le champ diffracté à la fréquence du premier harmonique mais aussi à celle du second. La séparation des deux fréquences s'effectue à l'aide de filtre. La sonde du microscope SNOM est une pointe diélectrique considérée comme ponctuelle. Ceci nous permet de prendre comme grandeur détectée le module carré du champ électrique dans le milieu considéré<sup>[85]</sup>. La théorie nous permet de déterminer les champs dans les deux milieux bien que dans la

[1] D. COURJON & C. BAINIER, in *Le champ proche optique Théorie et applications*, springer, ed., (2001).

[85] D. V. LABEKE & D. BARCHIESI, "Probes for scanning tunneling optical microscopy : a theoretical comparison," *J. Opt. Soc. Am. A* **10**, 2193–201 (1993).

## CHAPITRE 5. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES MATÉRIAUX UNIAXES DIÉLECTRIQUES NON CENTROSYMÉTRIQUES

réalité nous ne puissions balayer la surface dans le KDP. Sur la figure 5.3, nous représentons cette sonde qui se trouve dans l'air. Cette configuration nous permet de mettre en évidence le module carré du champ réfléchi à fréquence  $2\omega$  que nous noterons  $I_{(1)}(2\omega)$ . D'une façon analogue, nous obtenons le module carré du champ transmis,  $I_{(2)}(2\omega)$ . Il est très intéressant d'étudier les intensités à la fréquence  $2\omega$  en fonction

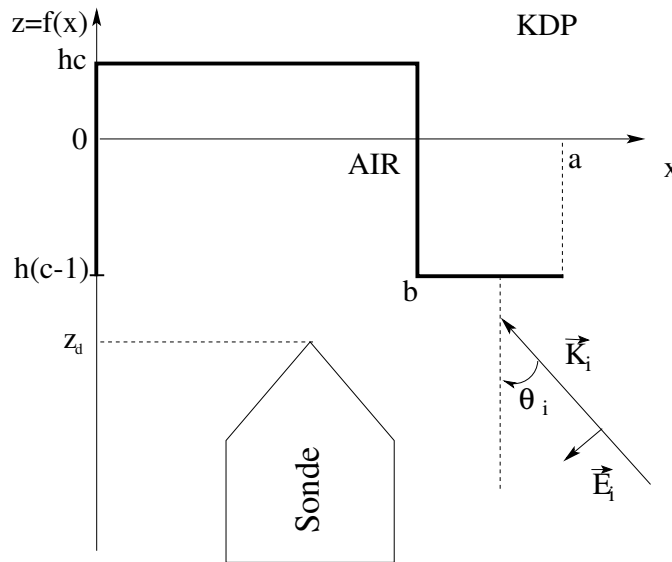


FIG. 5.3: Une sonde de microscope SNOM balaye suivant l'axe des  $x$  à hauteur constante  $z_d$  une surface éclairée par un champ à la fréquence  $\omega$ .

des divers paramètres évoqués dans l'annexe B, à savoir  $\theta_i$  et  $z_d$ . Les paramètres de la surface introduits dans le paragraphe 5.2.1 avec la figure 5.1 sont définis ici pour la suite. La période  $a$  du réseau est 100 nm, la hauteur  $h$  est de 10 nm et le rapport cyclique  $c$  est égale à  $\frac{1}{5}$ .

Cette expérience a déjà fait l'objet d'une étude lors de mon stage de D.E.A.. Ici, seules les variations en fonction de l'angle d'incidence et de la distance d'observation sont étudiées.

### Influence de l'angle d'incidence, $\theta_i$

L'influence de l'angle d'incidence  $\theta_i$  sur les intensités des champs de second harmonique dans les différents milieux est obtenue en représentant ces dernières en fonction de  $x$  pour une période de la surface et pour plusieurs angles d'incidence. Pour les paramètres de surface déterminés plus avant et pour une hauteur de détection dans le KDP valant  $z_d = 10$  nm et dans l'air  $z_d = -10$  nm, les résultats sont représentés sur les figures 5.4. À l'incidence normale, les intensités réfléchies et transmises obtenues par calcul grâce à la méthode de Rayleigh présentent une figure de diffraction symétrique par rapport au centre de la période de la surface ( $x = 50$  nm). Dès que l'angle d'incidence est non nul, la symétrie de la figure de diffraction est brisée. L'intensité, quelque soit le milieu considéré, est plus importante sur le bord du profil opposé à l'incidence à la fréquence fondamentale (dans notre cas  $\alpha_i \geq 0$ , alors l'onde incidente vient de la gauche). Pour des angles symétriques par rapport à l'incidence normale, les figures de diffraction obtenues sont les symétriques de celles des figures 5.4. L'intensité sur le bord opposé à l'éclairage augmente en même temps

que l'angle d'incidence jusqu'à  $\theta_i = 40$  Deg dans l'air et  $\theta_i = 15$  Deg dans le KDP. Cet angle d'incidence dépassé, le pic d'intensité sur ce bord commence à diminuer.

Tandis que l'intensité sur le bord opposé à l'éclairage varie de la façon décrite, celle sur le bord d'attaque de l'éclairage ne cesse de diminuer lorsque l'angle d'incidence augmente. Le meilleur contraste pour définir l'objet considéré est obtenu pour l'incidence normale quelque soit le milieu d'observation, les maxima d'intensité se trouvent quasiment sur les deux arêtes du profil ( $x = 40$  nm et  $x = 60$  nm) et sont identiques. Même si les maxima ne changent pas de position en fonction de l'angle d'incidence, leur différence augmente jusqu'à ce que le plus faible des deux disparaisse. C'est le cas dans l'air pour  $\theta_i = 80$  Deg. Dès lors, l'information sur le profil n'existe plus, seule celle sur la période du réseau est accessible. Cet effet est plus flagrant dans l'air que dans le KDP pour lequel il existe encore de l'information sur le profil de la surface pour l'angle critique  $\theta_i = 80$  Deg trouvé dans l'air.

Nous constatons aussi que l'intensité transmise moyenne est toujours supérieure à l'intensité réfléchie moyenne. Ceci semble logique puisque les sources non linéaires sont uniquement situées dans le KDP.

Dans la suite, nous prenons comme angle d'incidence l'angle correspondant au maximum de visibilité,  $\theta_i = 0$  Deg.

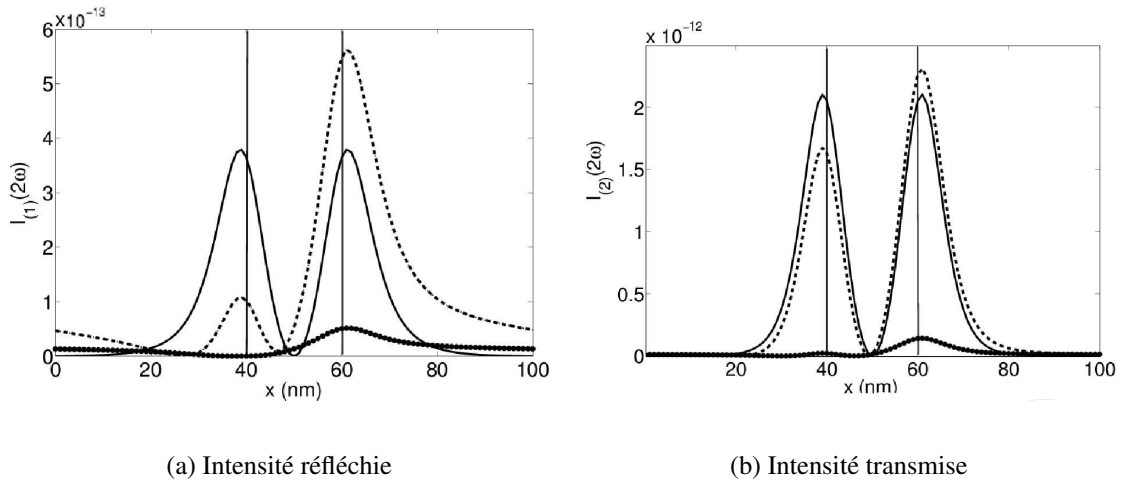


FIG. 5.4: (a) Différentes allures dépendant de  $\theta_i$  de l'intensité réfléchie à la fréquence du second harmonique  $I_{(1)}(2\omega)$  normalisée par rapport à l'intensité incidente. Les intensités ont été tracées avec des lignes continues pour  $\theta_i = 0$  Deg, des lignes discontinues pour  $\theta_i = 40$  Deg et des lignes pointillées pour  $\theta_i = 80$  Deg. (b) Différentes allures dépendant de  $\theta_i$  de l'intensité transmise à la fréquence du second harmonique  $I_{(2)}(2\omega)$  normalisée par rapport à l'intensité incidente. Les intensités ont été tracées avec des lignes continues pour  $\theta_i = 0$  Deg, des lignes discontinues pour  $\theta_i = 15$  Deg et des lignes pointillées pour  $\theta_i = 20$  Deg. Pour les deux figures, les paramètres de la surface sont  $a = 100$  nm,  $h = 10$  nm et  $c = \frac{1}{5}$ . La longueur d'onde et les hauteurs de détection dans l'air et le KDP sont respectivement  $\lambda = 1064$  nm,  $z_{d(air)} = -10$  nm et  $z_{d(KDP)} = 10$  nm. Les traits verticaux sur chaque figure représentent la position du profil de la surface.

### Influence de la distance d'observation $z_d$

L'étude de l'influence de la hauteur de détection sur les intensités réfléchies et transmises se fait de la même façon que pour l'influence de l'angle d'incidence grâce à la méthode de Rayleigh perturbative.

## CHAPITRE 5. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES MATÉRIAUX UNIAXES DIÉLECTRIQUES NON CENTROSYMÉTRIQUES

Les résultats, obtenus pour les mêmes paramètres de surface et pour l'angle d'incidence  $\theta_i = 0$  Deg, sont représentés sur les figures 5.5. Sur l'allure générale des courbes, nous pouvons faire les mêmes remarques que dans le cas précédent. Il est toutefois à noter que la dynamique des résultats obtenus décroît lorsque la distance de détection augmente.

C'est un phénomène couramment rencontré en microscopie optique en champ proche qui reflète la diminution du poids des ordres évanescents de diffraction avec l'augmentation de la distance à la surface. Dans notre cas, le fait que la longueur d'onde soit supérieure à la période du profil de la surface implique qu'il n'y ait qu'un seul ordre homogène diffracté pour le second harmonique, l'ordre zéro de diffraction. Ainsi, lorsque la sonde s'éloigne de la surface, tous les autres ordres voient leur contribution diminuer jusqu'à devenir négligeable devant l'ordre zéro de diffraction. Autrement dit, si  $z_d$  devient très grande, la dynamique du système tend à s'annuler et l'intensité observée devient celle de l'ordre zéro de diffraction seul. Les résultats des figures 5.5(a) et 5.5(b) vérifient bien le raisonnement précédent. Dans le cas de la transmission, lorsque  $z_d$  devient très grand, la valeur limite de l'intensité ne tend pas vers une limite basse, mais elle oscille. En effet, le champ transmis est formé de deux parties dont les vecteurs d'ondes sont différents de part leurs normes et leurs directions. Cette différence est une fonction de  $z_d$ . C'est pourquoi  $I_{(2)}(2\omega)$  oscille lorsque  $z_d$  est très grand. Cette remarque est développée dans l'annexe B et n'est pas visible sur les figures de diffraction dans le domaine du champ proche (quelques nanomètres). En effet, la figure B.3 montre que pour de faibles valeurs de  $z$  l'intensité à la fréquence du second harmonique dans le milieu non linéaire reste à peu près constante.

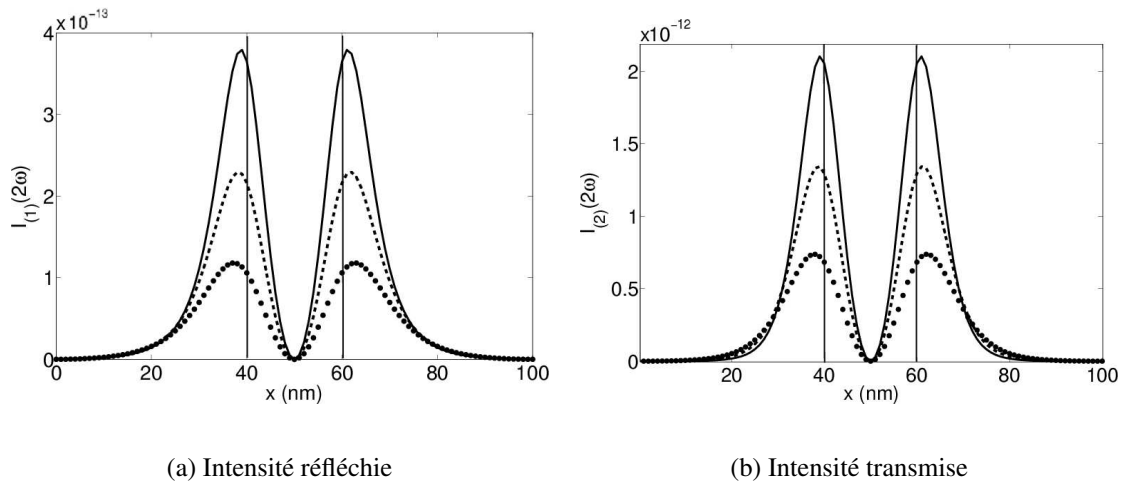


FIG. 5.5: (a) Différentes allures dépendant de  $z_{d(air)}$  de l'intensité réfléchie à la fréquence du second harmonique  $I_{(1)}(2\omega)$  normalisée par rapport à l'intensité incidente. Les intensités ont été tracées avec des lignes continues pour  $z_d = -10$  nm, des lignes discontinues pour  $z_d = -12$  nm et des lignes pointillées pour  $z_d = -15$  nm. (b) Différentes allures dépendant de  $z_{d(KDP)}$  de l'intensité transmise à la fréquence du second harmonique  $I_{(2)}(2\omega)$  normalisée par rapport à l'intensité incidente. Les intensités ont été tracées avec des lignes continues pour  $z_d = 10$  nm, des lignes discontinues pour  $z_d = 12$  nm et des lignes pointillées pour  $z_d = 15$  nm. Pour les deux figures, les paramètres de la surface sont  $a = 100$  nm,  $h = 10$  nm et  $c = \frac{1}{5}$ . La longueur d'onde et l'angle d'incidence sont respectivement  $\lambda = 1064$  nm,  $\theta_i = 0$  Deg. Les traits verticaux sur chaque figure représentent la position du profil de la surface.

Pour conclure ce paragraphe, nous donnons les paramètres de calcul qui ont été employés pour obtenir

les résultats précédents. Le nombre d'ordre de diffraction pris en compte est  $n_{px} = 101$ , autrement dit, cinquante ordres positifs, cinquante ordres négatifs et l'ordre zéro.

Le temps de calcul est tellement petit que le calcul peut être considéré comme instantané, ceci malgré le fait que le programme utilisé soit resté codé sous "Octave" (équivalent à Matlab© sous licence libre). Toutefois, pour des configurations plus complexes, il faut très rapidement penser à programmer les calculs dans un langage beaucoup moins exigeant en temps de calcul tel que le langage "Fortran" (version 77,90 ou 95).

### **calcul numérique grâce à une méthode exacte : la FDTD**

Les résultats précédents sont obtenus très rapidement grâce à la méthode de Rayleigh perturbative. Toutefois, cette méthode est, comme son nom l'indique, une méthode approchée nécessitant certaines hypothèses évoquées au chapitre 4. Si cette méthode a été testée pour les effets linéaires en champ proche [1], peu de vérifications ont été effectuées sur les phénomènes non linéaires et en particulier la génération de second harmonique. N'ayant pas trouvé de littérature se rapportant à l'expérience d'un réseau à une dimension (périodique dans une seule direction) gravé dans un matériau non linéaire uniaxe (expérience présentée ci-dessus), nous confrontons les deux méthodes développées pour ce sujet (Méthode perturbative et FDTD).

L'expérience modélisée est donc la même que précédemment. Nous prenons le cas suivant :  $\theta_i = 0$  Deg et  $zd = 10$  nm. Les paramètres de calcul pour la FDTD sont les suivants : le nombre de mailles pour les axes  $x$  et  $z$  est  $N_x = N_z = 400$ , les largeurs de mailles  $\Delta_x = \Delta_z = 0,25$  nm. Les bords de calcul pour  $x = 0$  et pour  $x = N_x \Delta_x$  sont périodisés tandis que pour  $z = 0$  et pour  $z = N_z \Delta_z$ , nous utilisons la méthode de Mur à l'ordre deux pour éviter les réflexions parasites. Le nombre de pas de calcul est  $n_t = 30000$ . Les résultats obtenus avec ces paramètres sont comparés avec ceux de la méthode perturbative utilisant les paramètres de calcul du paragraphe précédent sur la figure 5.6. Les résultats des deux méthodes sont très similaires. Ils ont la même dynamique et le même profil d'intensité (nous rappelons ici que l'intensité décrite est le module carré du champ électrique car nous considérons toujours notre détecteur comme diélectrique et ponctuel<sup>[85]</sup>). Nous remarquons toutefois une différence sur les ailes du profil d'intensité, aussi bien sur la figure 5.6(a) pour l'intensité réfléchie que sur la figure 5.6(b) pour celle transmise. Cette différence vient de l'objet modélisé qui est un peu différent à cause de la description en FDTD. Cette différence reste cependant minime. Nous pouvons conclure que dans le cas présent avec un éclairage à incidence normale les deux méthodes sont validées.

Nous choisissons le cas de l'incidence normale. Bien que ce cas ne permette pas de tester en profondeur les deux programmes, il nous indique dans une première approximation la validité des deux méthodes

---

[1] D. COURJON & C. BAINIER, in *Le champ proche optique Théorie et applications*, Springer, ed., (2001).

[85] D. V. LABEKE & D. BARCHIESI, "Probes for scanning tunneling optical microscopy : a theoretical comparison," *J. Opt. Soc. Am. A* **10**, 2193–201 (1993).

## CHAPITRE 5. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES MATÉRIAUX UNIAXES DIÉLECTRIQUES NON CENTROSYMÉTRIQUES

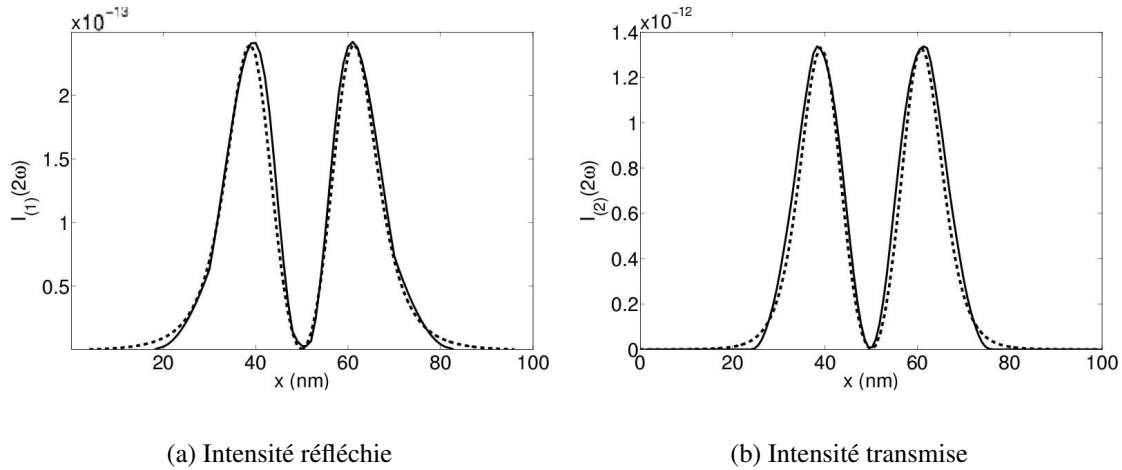


FIG. 5.6: Comparisons des résultats des méthodes FDTD (lignes continues) et perturbative (lignes discontinues) pour un réseau unidimensionnel de paramètres  $h = 20$  nm,  $a = 100$  nm,  $c = \frac{1}{5}$  éclairé par une onde incidente de longueur d'onde fondamentale  $\lambda = 1064$  nm. (a) Intensité réfléchie dans le milieu d'incidence détectée pour  $z_d = 12$  nm dans l'air. (b) Intensité transmise dans le milieu d'incidence détectée pour  $z_d = 12$  nm dans le KDP.

dans ce cas précis. D'autres vérifications sont faites dans ce chapitre et le suivant pour des cas plus généraux. Les programmes FDTD élaborés au laboratoire nécessitent dans ce cas une durée de calcul de quatre heures lorsqu'ils sont codés dans le système "octave". Après la traduction de ces codes dans le langage de programmation "Fortran90", le temps de calcul est ramené à vingt minutes. Ceci montre l'importance du choix du langage de programmation lors de la simulation d'expérience plus complexe que celle présentée ici. Une remarque générale sur le domaine d'application des méthodes de simulation peut déjà être soulignée. Nous voyons ici que la méthode FDTD est limitée sur les angles d'incidence lorsque la fenêtre de calcul est périodisée. De plus, son temps de calcul comparé à celui de la méthode perturbative est *infiniment* plus long. Ces deux méthodes donnant les mêmes résultats, nous pouvons donc les valider toutes les deux dans ce cas précis.

### 5.2.3 Discussion

Nous venons de voir que pour le cas très spécifique que nous appelons configuration de Bloembergen dans les matériaux anisotropes uniaxes diélectriques, nous obtenons les mêmes résultats en employant indifféremment la méthode perturbative ou la FDTD. Avant d'aller plus loin, ceci nous permet de valider les deux méthodes et nos codes de calcul pour ce cas spécifique. Ces résultats permettent d'affirmer que l'hypothèse sur l'échange d'énergie entre le premier et le second harmonique est respectée. En effet, tous les résultats donnés plus avant montrent l'intensité à la fréquence du second harmonique normalisées par celle à la fréquence fondamentale. Ainsi nous pouvons nous rendre compte que la première reste très faible devant la seconde et par conséquent l'influence de la génération de second harmonique sur le champ incident est négligeable. Ceci montre que nos résultats sont dans le champ de validité défini par l'hypothèse ci-dessus énoncée au chapitre 2. Dans un cadre plus général, les résultats obtenus ci-dessus montrent une

dépendance pour la génération de second harmonique à l'angle d'incidence (une étude similaire a été faite pour des cas de réflexion totale<sup>[86]</sup>) ainsi qu'à la distance de détection. La comparaison de ces dépendances avec celles obtenues pour la fréquence fondamentale est effectuée dans la section suivante. Ce qui précède a pour but de donner les premiers éléments de validation de nos méthodes.

## 5.3 Objets tridimensionnels

Dans cette section, nous validons nos deux méthodes non seulement en les comparant entre elles, mais aussi en comparant leurs résultats à ceux obtenus dans d'autres travaux pour une configuration nécessitant une modélisation de l'expérience dans un espace à trois dimensions<sup>[87]</sup>. Ceci permet, dans un premier temps, de vérifier que les deux méthodes fonctionnent pour un cas quelconque et de comparer, dans un deuxième temps, les résultats obtenus pour le premier et le second harmonique.

### 5.3.1 Configuration expérimentale

Nous prenons la configuration de la référence<sup>[87]</sup> décrite dans la figure 5.7. C'est-à-dire, un pavé de KDP taillé pour que son axe optique soit confondu avec l'axe des  $z$  est posé dans l'air sur un substrat de permittivité relative  $\epsilon_s = 2,25$ . Ce système est éclairé depuis le substrat par une onde plane de pulsation  $\omega$  avec un angle d'incidence surcritique se propageant dans le plan  $(x, z)$  (ce plan représente le plan principal). Ainsi, le champ transmis dans l'air est dû à la diffraction d'une onde évanescente sur le bloc de KDP. Cette configuration est celle utilisée pour la détection de type STOM en optique du champ proche. La sonde en mode collection est, là encore, diélectrique et quasi ponctuelle ce qui nous permet de considérer l'intensité détectée comme le module carré du champ électrique. Le tenseur des susceptibilités non linéaires est donné par l'équation (5.5).

Dans la suite de ce paragraphe, nous ne faisons varier que la polarisation de l'onde incidente. Une fois de plus, nous comparons les résultats de nos deux méthodes afin de les valider dans cette nouvelle configuration. Les différences entre le premier et le second harmonique sont aussi discutées.

### 5.3.2 Résultats numériques

La plupart des résultats de ce paragraphe sont obtenus grâce à la méthode de Rayleigh perturbative. L'objet considéré n'étant pas périodique, il faut employer un artifice permettant de ne pas tenir compte de la périodisation artificielle de l'objet. L'objet ayant une dimension latérale de  $b_x = b_y = 200$  nm, nous

---

[86] V. BHANTHUMNAVIN & C. LEE, "Optical second harmonic generation at total reflection in a potassium dihydrogen phosphate crystal," *Phys. Rev. A* **50**, 2579–86 (1994).

[87] Z. LI, B. GU & G. YANG, "Strong localization of near field second harmonic generation for non linear mesoscopic surface structures.," *Phys. Rev. B* **59**, 12622–6 (1999).



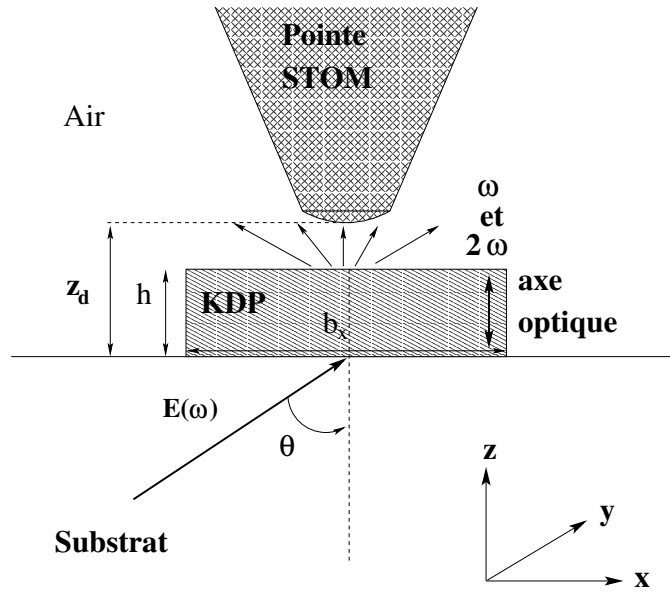


FIG. 5.7: Une sonde de microscope STOM balaye dans le plan l'axe  $(x, y)$  à une hauteur constante  $z_d$  au dessus d'une surface séparant un substrat de permittivité relative  $\epsilon_s = 2,25$  sur laquelle repose un pavé de KDP taillé de tel façon que son axe optique soit confondu avec l'axe des  $z$ . Ce pavé est de dimension  $b_x \times b_y \times h$  nm ( $b_x = b_y = 200$  nm et  $h = 50$  nm). L'éclairage se fait depuis le substrat grâce à une onde plane de pulsation  $\omega$  ( $\lambda = 1064$  nm) dont l'angle d'incidence est surcritique ( $\theta = 60$  Deg).

choisissons une période relativement grande devant elle  $a_x = a_y = 3 \mu\text{m}$ . Ainsi, nous pensons pouvoir négliger l'interaction entre les différents motifs virtuels induits par la méthode perturbative. Comme dans la section précédente, nous considérons  $n_{p_x} = 101$  ordres de diffraction.

Le premier résultat est obtenu pour une polarisation incidente (TM). Nous présentons les résultats sur la figure 5.8. L'intensité fondamentale sur la figure 5.8(a) et celle du second harmonique sur la figure 5.8(b). Dans un premier temps, ces résultats sont comparés avec ceux obtenus dans la référence<sup>[87]</sup> représentés sur la figure 5.9. Cette comparaison permet de valider la méthode perturbative dans un cas plus général que celui traité dans la section précédente.

Le résultat de la figure 5.8 permet aussi de discuter sur les différences entre la fréquence fondamentale et le second harmonique. La première remarque concerne la différence d'intensité moyenne et le respect de l'hypothèse d'échange d'énergie entre les deux fréquences. En effet, nos résultats se trouvent une fois de plus dans le champ de validité de cette hypothèse car l'intensité du second harmonique est largement inférieure à celle de la fréquence fondamentale. La deuxième remarque se situe au niveau de la dynamique du signal obtenu pour les deux fréquences. Si nous regardons la figure 5.8(a), la figure de diffraction obtenue est noyée dans un système de franges d'interférences dues à la combinaison de l'onde évanescente incidente et de celle réfléchi sur le pavé. Ce phénomène n'est pas présent pour le second harmonique. Ceci permet d'obtenir une meilleure dynamique de détection à  $2\omega$  que pour la fréquence fondamentale. La troisième remarque découle de la deuxième puisqu'il s'agit du confinement latéral autour de l'objet obtenu pour le second harmonique. Le pavé de KDP centré en  $x = y = 0$  nm ayant pour dimensions latérales  $b_x = b_y = 200$  nm, nous constatons sur la figure 5.8(b) que l'intensité au second harmonique est

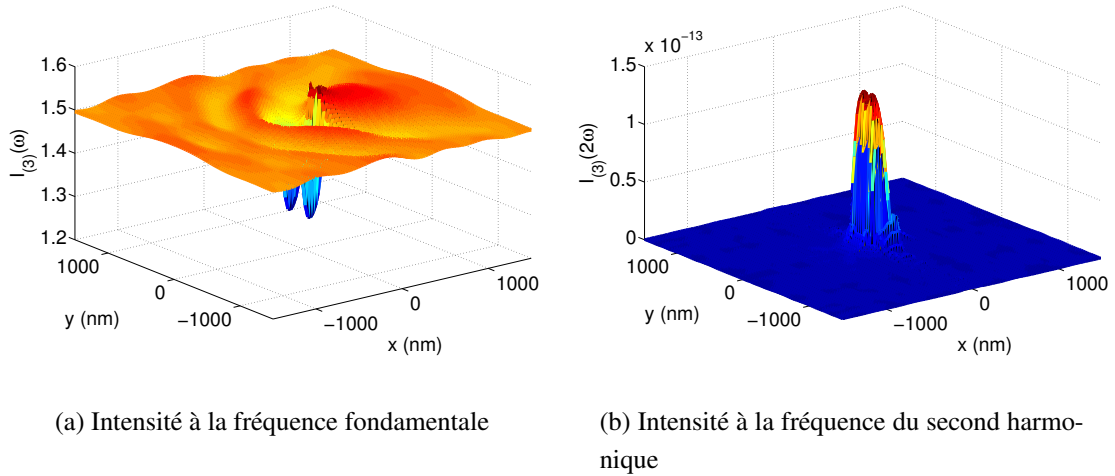


FIG. 5.8: Intensité détectée par une pointe diélectrique quasi ponctuelle balayant la surface à une hauteur  $z_d = h + 20$  nm du plan de référence. L'objet est centré en  $x = y = 0$  nm. L'angle d'incidence est  $60^\circ$  et la pulsation fondamentale est  $\omega = 1064$  nm. (a) Intensité dans l'air à la fréquence fondamentale normalisée par rapport à l'intensité incidente. (b) Intensité dans l'air pour le second harmonique normalisée par rapport à l'intensité incidente.

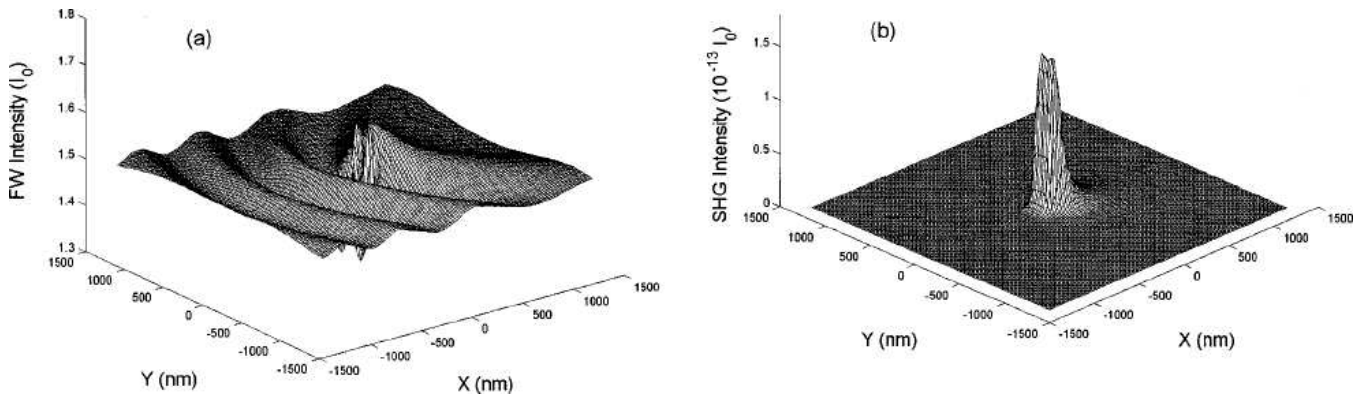


FIG. 5.9: Résultats obtenus dans l'article[87]. (a) intensité à la fréquence fondamentale normalisée par rapport à l'intensité incidente. (b) intensité à la fréquence du second harmonique normalisée par rapport à l'intensité incidente.

nulle partout sauf à l'emplacement du pavé, ce qui n'est pas le cas pour la fréquence fondamentale. Cette remarque est plus flagrante sur la figure 5.10 où l'intensité fondamentale, sur la figure 5.10(a) montre des oscillations qui ne permettent pas de définir facilement la largeur de l'objet. L'intensité du second harmonique (figure 5.10(b)) est, quant à elle, très confinée. D'ailleurs, la largeur à mi hauteur de son pic centré en  $x = y = 0$  nm est 200 nm, ce qui correspond aux dimensions de l'objet.

La méthode FDTD a aussi été testée sur cette "expérience théorique". Les paramètres de calcul sont les suivants :

- $N_x = N_y = 200, N_z = 150$ ,
- maillage adaptatif centré sur l'objet. En d'autres termes, la discrétisation de l'espace est beaucoup plus fine autour de l'objet que dans le reste de la fenêtre de calcul. Nous faisons donc appel à

## CHAPITRE 5. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES MATÉRIAUX UNIAxes DIÉLECTRIQUES NON CENTROSymÉTRIQUES

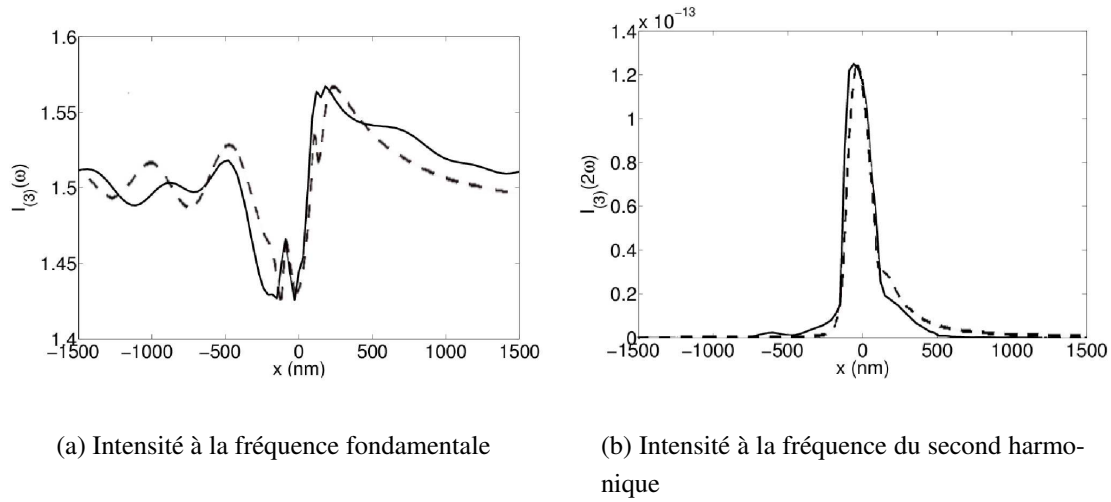


FIG. 5.10: Coupe des intensités de la figure 5.8 dans la direction de l'axe  $x$  pour  $y = 0$  nm. Les lignes continues représentent les résultats obtenus grâce à la méthode perturbative et celles discontinues grâce à la FDTD. (a) Coupe de l'intensité dans l'air à la fréquence fondamentale normalisée par rapport à l'intensité incidente. (b) Coupe de l'intensité dans l'air pour le second harmonique normalisée par rapport à l'intensité incidente.

différents pas de maille :  $\Delta_{xmin} = \delta_{ymin} = 10$  nm et  $\Delta_{zmin} = 5$  nm autour de l'objet,  $\Delta_{xmax} = \delta_{ymax} = \Delta_{zmax} = 30$  nm pour le reste. La fenêtre de calcul a une dimension égale à  $8 \times 8 \times 6 \mu\text{m}^3$ .

- nombre d'itérations  $nt = 30000$  (temps de calcul  $\sim$  quinze heures),
- absorption au bord de la fenêtre de calcul par la méthode de Mur à l'ordre 2.

Cette fois, l'avantage est du côté de la FDTD puisque, contrairement à la méthode perturbative, elle modélise naturellement les effets d'un objet non périodique. Ces résultats sont inscrits en traits discontinus sur la figure 5.10(a) pour la fréquence fondamentale et sur la figure 5.10(b) pour le second harmonique. Les profils d'intensité obtenus grâce aux différentes méthodes sont presque les mêmes pour les deux fréquences. Le cas de la fréquence fondamentale présente les différences les plus notables. En effet, la FDTD présente des franges d'interférence du côté de l'onde incidente ( $x < 0$ ), mais ces franges n'existent pas du côté opposé contrairement à la méthode perturbative. Ceci vient du fait que, dans la méthode perturbative, l'objet est périodisé artificiellement. En fait, nous démontrons ici que cette période, n'est pas encore assez grande pour simuler les effets d'un objet non périodique (ici, nous ne faisons pas d'étude suivant ce paramètre, nous soulevons juste un problème auquel il faut prêter attention). La remarque peut être faite pour le second harmonique, mais la différence entre les deux méthodes est moins flagrante. Seule une ondulation due à la périodicité est visible sur la courbe de la méthode perturbative. Celui-ci se trouve à l'avant du pic d'intensité dans la figure 5.10(b).

Toutefois, les résultats sont relativement proches si nous faisons abstraction de l'erreur due à la période choisie dans la méthode perturbative. Si proche qu'il est encore préférable d'utiliser la méthode perturbative plutôt que la FDTD car le temps de calcul de la FDTD est d'une quinzaine d'heures alors que celui de la méthode perturbative est d'une dizaine de minutes.

Il est cependant à noter que pour améliorer la précision de la méthode perturbative, il faut augmenter la

période ainsi que le nombre d'ordres de diffraction considérés. Ceci alourdit très rapidement le calcul perturbatif, mais le temps de calcul n'égalé jamais celui de la FDTD.

**Exemples supplémentaires :** Nous continuons nos comparaisons avec les résultats de la référence<sup>[87]</sup> en donnant l'intensité du second harmonique générée par un onde incidente polarisée (TE) (figure 5.11). Ce résultat calculé grâce à la méthode perturbative (figure 5.11-a) est encore une fois très similaire au résultat de la publication (figure 5.11-b). La comparaison avec d'autres travaux théoriques<sup>[88,89]</sup>, nous

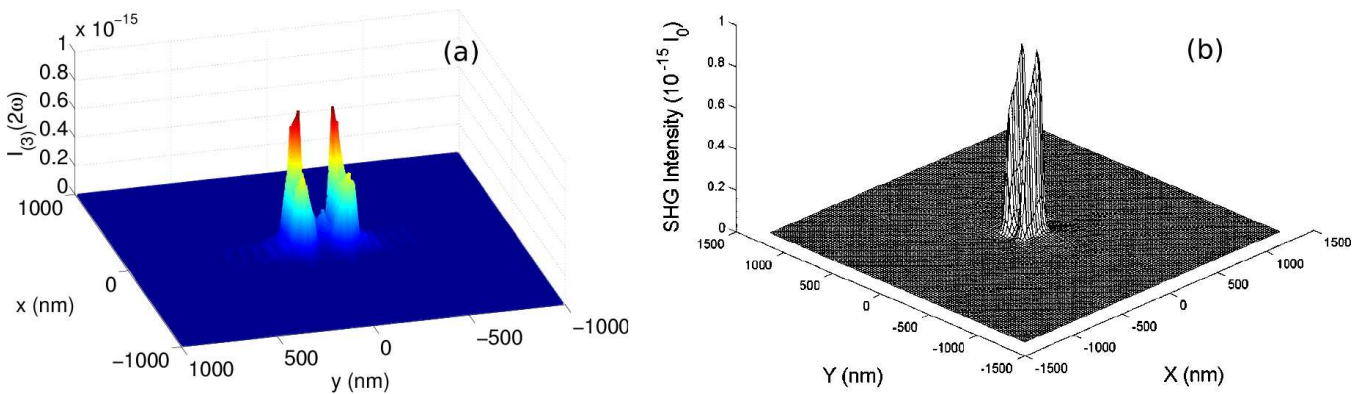


FIG. 5.11: Intensité détectée par une pointe diélectrique quasi ponctuelle balayant la surface à un hauteur  $z_d = h + 20$  nm du plan de référence. Polarisation incidente (TE). L'objet est centré en  $x = y = 0$  nm. (a) résultat de la méthode perturbative. (b) Résultat de l'article [87].

permet d'élargir notre champ de validité pour les deux méthodes de calcul développées durant cette thèse. Nous ne donnons pas ces résultats dans ce document, mais ceux-ci impliquent que les résultats, quelque soit la méthode utilisée, sont fiables pour une polarisation quelconque et pour n'importe quelle symétrie de matériau.

### 5.3.3 Discussion des résultats et des méthodes de détection

Ce chapitre permet de tester et de valider nos méthodes de simulation de génération de second harmonique pour les matériaux non centrosymétriques. Ceci est effectué grâce à la corrélation entre les résultats des deux méthodes mais aussi grâce à la comparaison entre nos résultats numériques et différents résultats de travaux théoriques publiés<sup>[87,88,89]</sup>.

Nous montrons aussi que l'utilisation du second harmonique permet d'améliorer le confinement latéral

- 
- [87] Z. LI, B. GU & G. YANG, "Strong localization of near field second harmonic generation for non linear mesoscopic surface structures.," *Phys. Rev. B* **59**, 12622–6 (1999).
  - [88] A. XIE, B. GU, G. YANG & Z. ZHANG, "Image of near-field second-harmonic generation for inversely poled mesoscopic  $LiNbO_3$ ," *Phys. Rev. B* **63**, 054104/1–6 (2001).
  - [89] S. BOZHEVOLNYI & V. LOZOVSKI, "Second-harmonic scanning optical microscopy of individual nanostructures," *Phys. Rev. B* **65**, 235420/1–10 (2002).

## CHAPITRE 5. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES MATÉRIAUX UNIAXES DIÉLECTRIQUES NON CENTROSYMÉTRIQUES

dans le domaine de la microscopie optique en champ proche. De plus, il n'existe pas de figure d'interférence pour le second harmonique contrairement à la fréquence fondamentale. Ainsi, la dynamique du système de diffraction est nettement meilleure pour le second harmonique. Alors, malgré la faiblesse de son intensité par rapport à celle du fondamentale, la détection du second harmonique permettrait d'augmenter la résolution des systèmes de la microscopie optique en champ proche.

Cependant, nous n'avons pas pu confronter les résultats de ce chapitre à des études expérimentales. En effet, il est à noter que, à notre connaissance, il n'existe pour l'instant aucun travaux expérimentaux publiés sur la génération de second harmonique sans effets magnétiques pour les matériaux non centrosymétriques dans le domaine de l'optique en champ proche susceptible d'être modélisés immédiatement. Cela demanderait une autre thèse sur les effets non linéaires dans les milieux magnétiques et pour des structure aléatoires. Toutefois, nous espérons collaborer très prochainement avec le laboratoire d'optique physique de l'école supérieure de physique et de chimie industrielle de Paris pour modéliser un de leurs travaux sur la génération de second harmonique à la surface d'un cristal de Niobate de Strontium Barium (SBN).

Nos travaux de modélisation ont déjà commencé en se basant sur l'expérience proposée à la section 5.2 en remplaçant le KDP par du SBN. Cette fois au lieu de prendre un réseau de traits nous prenons un seul trait représenté sur la figure 5.12. La largeur de ce trait est  $b = 200$  nm, la hauteur  $h = 50$  nm. L'éclairage se fait

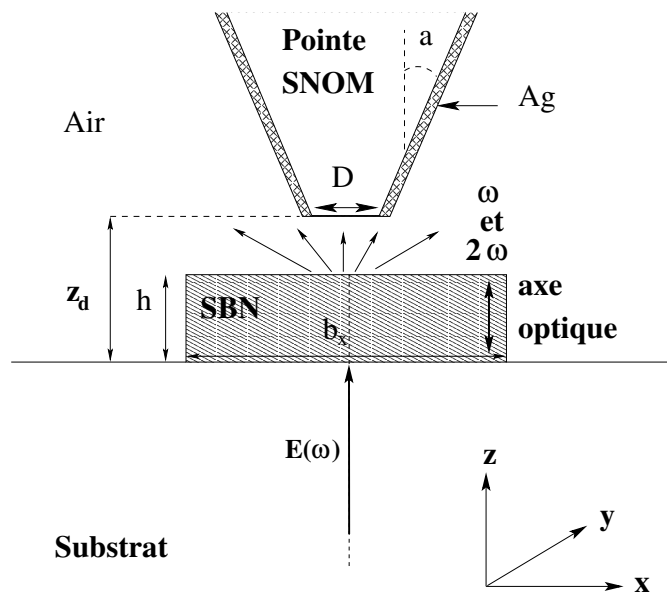


FIG. 5.12: Schéma de l'expérience simulée, un trait de SBN infini suivant  $y$  éclairé par une onde fondamentale de longueur d'onde  $\lambda = 1064$  nm. L'éclairage se fait depuis le substrat grâce à une onde plane dont l'angle d'incidence est surcritique ( $\theta = 60$  Deg). Une sonde diélectrique de microscope SNOM recouverte d'argent balaye sur l'axe  $x$  à une hauteur constante  $z_d = h + 20$  nm au dessus d'une surface séparant un substrat de permittivité relative  $\epsilon_s = 2,25$  sur laquelle repose un pavé de SBN taillé de tel façon que son axe optique est confondu avec l'axe des  $z$ . ( $b = 200$  nm et  $h = 50$  nm). Le diamètre d'ouverture de la pointe est  $D = 20$  nm et son demi angle d'ouverture au sommet est  $a = 16^\circ$ .

toujours par l'air, mais avec une incidence normale à la même longueur d'onde  $\lambda = 1064$  nm. La détection se fait par l'intermédiaire d'une pointe diélectrique quasi ponctuelle dans l'air (le milieu de réflexion). Nous calculons le module carré du champ électrique comme depuis le début de ce chapitre à l'aide de la méthode perturbative. L'axe optique du cristal étant confondu avec l'axe des  $z$ , les tenseurs de constantes

diélectriques  $\epsilon_2(\omega_m)$  et de susceptibilités non linéaires  $d^{(2)}$  du SBN sont donnés respectivement par les relations (5.12) et (5.13) :

$$\epsilon_2(\omega_m) = \begin{pmatrix} \epsilon_{(2)ot}(\omega_m) & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{(2)ot}(\omega_m) & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{(2)et}(\omega_m) \end{pmatrix}, \quad (5.12)$$

$$d^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (5.13)$$

Toutes les valeurs des différents tenseurs sont disponibles dans le même ouvrage<sup>[30]</sup>. Les résultats de cette simulation sont présentés sur la figure 5.13. Ils sont obtenus grâce à la méthode perturbative en prenant comme paramètres de calcul une dimension de la fenêtre de  $a = 10 \mu\text{m}$  (pour s'affranchir au mieux de la périodisation intrinsèque à la méthode perturbative), et un nombre d'ordres de diffraction  $n_{px} = 1001$ . Le temps de calcul reste très bref malgré le nombre d'ordres de diffraction puisque nous sommes dans un cas à deux dimensions. Ce résultat, ou d'autres issues de la simulation d'expériences plus appropriées, pourront probablement être comparés prochainement avec des résultats expérimentaux. Nous simulons, grâce à la méthode FDTD, la même expérience et ainsi nous validons les résultats de la figure 5.13 obtenus grâce à la méthode perturbative. Les paramètres de calcul dans la simulation FDTD de cette expérience sont les suivants :  $N_x = N_z = 1000$ , maillage adaptatif centré sur le trait,  $\Delta_{xmin} = \Delta_{zmin} = 4 \text{ nm}$ ,  $\Delta_{xmax} = \Delta_{zmax} = 20 \text{ nm}$ , nombre d'itérations  $nt = 100000$ , absorption au bord de la fenêtre de calcul par la méthode PML.

La validité du modèle de pointe diélectrique quasi ponctuelle a été discutée très tôt après les débuts de la microscopie optique en champ proche<sup>[85,67]</sup>. Il faut cependant rester très prudent avec ce modèle de pointe. En effet, l'étude de différents types de pointes montrent qu'elles ne détectent pas toutes la même grandeur<sup>[90,91,92]</sup> (certaines filtrent les composantes normales à leur axe et d'autres les composantes longitudinales du champ électrique). C'est pourquoi, dans un deuxième temps, nous reprenons la même simulation avec la FDTD, mais en introduisant dans la fenêtre de calcul une pointe diélectrique non ponctuelle et recouverte d'une épaisseur  $ep = 100 \text{ nm}$  d'argent laissant une ouverture en bout de pointe de

[30] A. YARIV & P. YEH, *Optical waves in crystals* (John Wiley & Sons, New York, 1984).

[85] D. V. LABEKE & D. BARCHIESI, "Probes for scanning tunneling optical microscopy : a theoretical comparison," *J. Opt. Soc. Am. A* **10**, 2193–201 (1993).

[67] D. BARCHIESI & D. V. LABEKE, "A perturbative diffraction theory of a multilayer system : applications to near-field optical microscopy SNOM and STOM," *Ultramicroscopy* **57**, 196–203 (1995).

[90] T. GROSJEAN & D. COURJON, "Polarization filtering induced by imaging systems : effect on image structure," *Phys. Rev. E* **67**, 46611/1–6 (2003).

[91] J. GREFFET & R. CARMINATI, "Image formation in near-field optics," *Progress-in-Surface-Science* **56**, 133–237 (1997).

[92] J. PORTO, R. CARMINATI & J. GREFFET, "Theory of electromagnetic field imaging and spectroscopy in scanning near-field optical microscopy," *J. App. Phys.* **88**, 4845–4850 (2000).

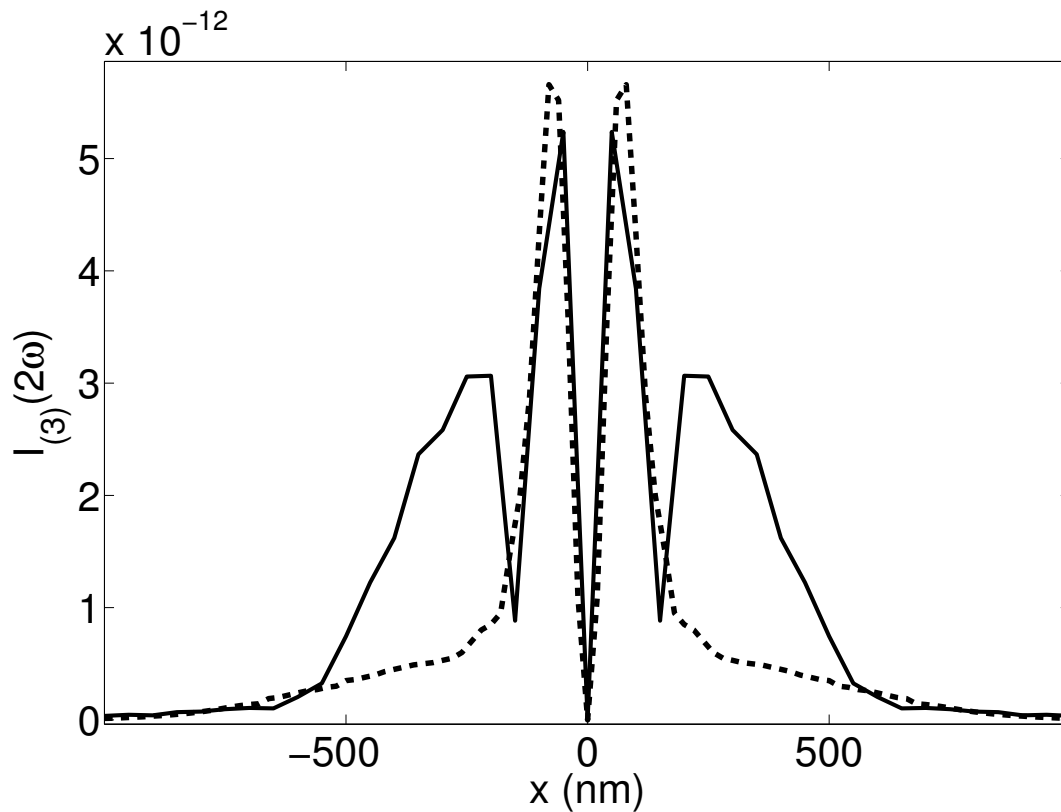


FIG. 5.13: Intensité détecté par une pointe diélectrique, quasi ponctuelle, balayant la surface à un hauteur  $zd = h + 20$  nm du plan de référence. Cette intensité est normalisée par rapport à l'intensité incidente à la fréquence fondamentale. L'objet est un pavé de SBN centré en  $x = 0$  nm. Le trait discontinu représente le résultat en considérant une pointe quasi ponctuelle (c.à.d, le module carré du champ électrique). Le trait continu représente la simulation de la même expérience mais avec une détection grâce une pointe diélectrique recouverte d'une épaisseur d'argent de  $ep = 100$  nm avec une ouverture à son extrémité de diamètre  $D = 20$  nm.

diamètre  $D = 20$  nm. La base de détection de la pointe se trouve dans le plan de détection précédent (c.à.d que la distance pointe surface est  $zd = h + 20$  nm comme le montre la figure 5.12). Les propriétés optiques de l'argent recouvrant la pointe diélectrique sont décrites par le modèle de Drude ajusté par rapport aux valeurs expérimentales des constantes diélectriques. Dans cette simulation la détection se fait en calculant le flux du vecteur de Poynting à l'intérieur de la pointe. Les résultats de cette seconde simulation est en trait plein sur la figure 5.13. Chaque point de la courbe est obtenu par un calcul différent. Autrement dit, le point correspondant à  $x = 0$  est obtenu en faisant le calcul avec l'axe de la pointe en  $x = 0$ . Pour un point quelconque ( $x = x_n$ ), l'axe de la pointe est en  $x_n$ . Nous avons calculé un nombre restreint de points car le temps de calcul pour un point est très long (1jour). Ceci explique l'aspect en "escalier" de la courbe et le manque de précision obtenue.

Toutefois, il est évident que les deux résultats (trait continu = module carré du champ électrique sans la pointe, trait discontinu = vecteur de Poynting avec la pointe figure 5.13) montrent de grandes similarités, mais présentes des différences remarquables. En effet, l'introduction d'une pointe fait apparaître deux lobes latéraux. Ceci a pour effet d'étaler l'image champ proche qui ne correspond plus du tout au profil initial.

Même si cette simulation est effectuée en deux dimensions, elle reflète bien la nécessité, déjà largement remarquée, de ne pas négliger l'action de la sonde dans les phénomènes d'optique en champ proche et ce, même pour les effets non linéaires. D'ailleurs, ces sondes peuvent être constituées d'éléments contenant des sources non linéaires qui peuvent venir perturber le signal émis par l'objet étudié. Dans notre cas, nous ne considérons pas les non linéarités dues à la pointe. Cependant, l'argent qui recouvre le diélectrique de la pointe est capable de générer (en tant que matériau centrosymétrique) le second harmonique. Ce nouvel effet est l'une des préoccupations du chapitre suivant en étudiant le rayonnement de second harmonique émis par une pointe métallique.



# GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES MATÉRIAUX CENTROSYMÉTRIQUES

---

## Sommaire

---

<b>6.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>112</b>
<b>6.2</b>	<b>Génération de second harmonique pour des pointes métalliques</b>	<b>113</b>
<b>6.3</b>	<b>Génération de second harmonique pour une surface séparant des milieux centrosymétriques non linéaires</b>	<b>129</b>
<b>6.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>137</b>

---

## 6.1 Introduction

Ce chapitre a pour but de déterminer numériquement les champs à la fréquence du second harmonique pour des systèmes incluant des matériaux centrosymétriques. Dans le chapitre précédent, nous voyons l'influence de la sonde qui détecte le champ proche de l'objet. C'est pourquoi, dans un premier temps notre intérêt se porte sur les sondes utilisées en microscopie en champ proche et surtout sur le second harmonique qu'elles génèrent. Une pointe métallique éclairée par un champ de polarisation correcte (une composante doit être parallèle à l'axe de la pointe) rayonne un champ à son extrémité fortement exalté et très localisé. Cet effet de pointe a été surtout étudié en optique linéaire<sup>[93,94,85,95,96,97,55]</sup>. Pour le second harmonique, cette étude débute et peu de travaux théoriques et expérimentaux ont déjà été publiés<sup>[20,98,99,19,100]</sup>. Dans notre étude nous étudions le confinement du second harmonique à l'extrémité de pointes métalliques ainsi que l'exaltation de champ du premier et du second harmonique. Une étude de la dépendance de la génération de second harmonique à la polarisation du champ incident est effectuée pour des polarisations rectilignes et radiales.

Les objets étudiés ou excités par ces pointes sont eux aussi à l'origine de phénomènes non linéaires. Nous quantifions ces effets par rapport aux résultats trouvés pour les pointes.

La première configuration envisagée est la surface plane qui est à l'origine de la découverte de la géné-

- 
- [93] L. NOVOTNY, E. SÁNCHEZ & X. XIE, "Near-field optical imaging using metal tips illuminated by higher-order Hermite-Gaussian beams," *Ultramicroscopy* **71**, 21–9 (1998).
  - [94] V. KONOPSKY, "Operation of scanning plasmon near field microscope with gold and silver tips in tapping mode : demonstration of sub-tio resolution.," *Opt. Com.* **185**, 83–93 (2000).
  - [85] D. V. LABEKE & D. BARCHIESI, "Probes for scanning tunneling optical microscopy : a theoretical comparison," *J. Opt. Soc. Am. A* **10**, 2193–201 (1993).
  - [95] H. CORY, A. BOCCARA, J. RIVOAL & A. LAHRECH, "Electric field intensity variation in the vicinity of a perfectly conducting conical probe : application to near-field microscopy," *Mic. Opt. tech. let.* **18**, 120–4 (1998).
  - [96] L. NOVOTNY, M. BEVERLUIS, K. YOUNGWORTH & T. BROWN, "Longitudinal field modes probed by single molecules," *Phys. Rev. Let.* **86**, 5251–4 (2001).
  - [97] L. NOVOTNY, R. BIAN & X. XIE, "Theory of nanometric optical tweezers," *Phys. Rev. Let.* **79**, 645–8 (1997).
  - [55] R. FIKRI, D. BARCHIESI, F. H'DHILI, R. BACHELOT, A. VIAL & P. ROYER, "Modeling recent experiments of apertureless near-field optical microscopy using 2D finite element method," *Opt. Com.* **221**, 13–22 (2003).
  - [20] A. BOUHELIER, M. BEVERLUIS, A. HARTSCHUH & L. NOVOTNY, "Near-field second-harmonic generation induced by local field enhancement," *Phys. Rev. Let.* **90**, 013903/1–4 (2003).
  - [98] E. SÁNCHEZ, L. NOVOTNY & X. XIE, "Near-field fluorescence microscopy based on two-photon excitation with metal tips," *Phys. Rev. Let.* **82**, 14014–7 (1999).
  - [99] Y. KAWATA, C. XU & W. DENK, "Feasibility of molecular-resolution fluorescence near-field microscopy using multiphoton absorption and field enhancement near a sharp tip," *J. App. Phys.* **85**, 1294–301 (1999).
  - [19] S. TAKAHASHI & A. ZAYATS, "Near-field second-harmonic generation at a metal tip apex," *App. Phys. Let.* **80**, 3479–81 (2002).
  - [100] A. ZAYATS & V. SANDOGHDAR, "Apertureless near-field optical microscopy via local second-harmonic generation," *Journal of Microscopy* **202**, 94–9 (2001).

ration de second harmonique dans les matériaux centrosymétriques<sup>[37]</sup>. Ensuite, nous proposons l'étude de défauts de surface qui sont à l'origine d'exaltation localisée de champ<sup>[101,102]</sup>. Enfin, nous concluons sur l'influence du modèle utilisé dans la génération de second harmonique. Autrement dit, l'influence des différentes composantes du champ électrique fondamental dans les relations du tableau 3.2

## 6.2 Génération de second harmonique pour des pointes métalliques

À la fin du chapitre 5, l'effet des pointes sur le signal collecté a été souligné. Nous avons aussi évoqué le fait que la sonde peut être une source non linéaire. Dans ce cas, le signal observé n'est pas celui émis par l'échantillon étudié, mais l'interaction de ce dernier avec celui émis par la pointe. Il est donc important de caractériser la génération de second harmonique due aux sondes. Ici, seul le second harmonique généré par des pointes métalliques est étudié et nous négligeons l'apport des matériaux centrosymétriques diélectriques à la génération de second harmonique. En toute rigueur, cette dernière approche n'est pas valable car il n'y a aucune raison pour que les ordres de grandeur soit différents dans les métaux et les diélectriques centrosymétrique si on considère le même mécanisme de génération de second harmonique dans les métaux et les diélectriques centrosymétriques. Cependant, nous discutons de ce point en fin de section.

### 6.2.1 Description du modèle

La pointe étudiée est une pointe métallique (le métal considéré est l'or) du même type que celles utilisées en microscopie optique en champ proche à balayage de type ASNO (pointe métallique sans ouverture). Le modèle géométrique choisi pour cette pointe est un cône plein terminé par un sommet hémisphérique de rayon  $r$ . Le demi angle d'ouverture du cône est noté  $a$ . L'axe de symétrie de la pointe est selon la direction  $z$ . Ce modèle est représenté sur la figure 6.1. Le schéma expérimental modélisé consiste à illuminer une pointe en or (décrite ci-dessus) par un faisceau gaussien. Cette pointe est placée dans l'air à une distance  $d$  au-dessus d'un substrat de permittivité  $\epsilon_s$ . Pour commencer, nous considérons que le faisceau est incident depuis le substrat et se propage suivant l'axe  $z$ . Il est polarisé transversalement à l'axe de la pointe selon la direction  $x$ . Il s'agit d'un mode  $HG_{00}$  et très fortement focalisé au niveau de l'interface séparant l'air et le substrat. Son beam waist est noté  $w_0 = 415$  nm. La fréquence fondamentale (incidente) est notée  $\omega$  et par conséquent la fréquence du second harmonique est notée  $2\omega$ . Le schéma de l'expérience modélisée dans ce chapitre est représenté sur la figure 6.2. L'expérience consiste à balayer

- 
- [37] F. BROWN, R.E.PARKS & A. SLEEPER, "Nonlinear optical reflection from a metallic boundary," Phys. Rev. Let. **14**, 1029–31 (1965).
- [101] I. SMOLYANINOV, A. ZAYATS & C. DAVIS, "Near field second harmonic generation from a rough metal surface," Phys. Rev. B **56**, 9290–3 (1997).
- [102] V. SHALAEV & A. SARYCHEV, "Non-linear optics of random metal-dielectric film," Phys. Rev. B **57**, 13265–88 (1998).

## 6.2. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES POINTES MÉTALLIQUES

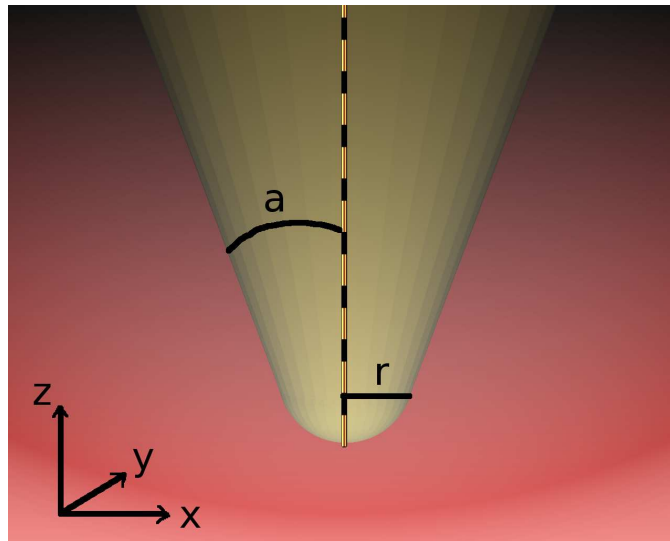


FIG. 6.1: Modèle de pointe métallique. La pointe est formée d'un cône plein de demi angle d'ouverture  $a$ . Ce cône est terminé en son sommet par un hémisphère plein de rayon  $r$ . L'axe de symétrie de la pointe est confondu avec l'axe des  $z$ .

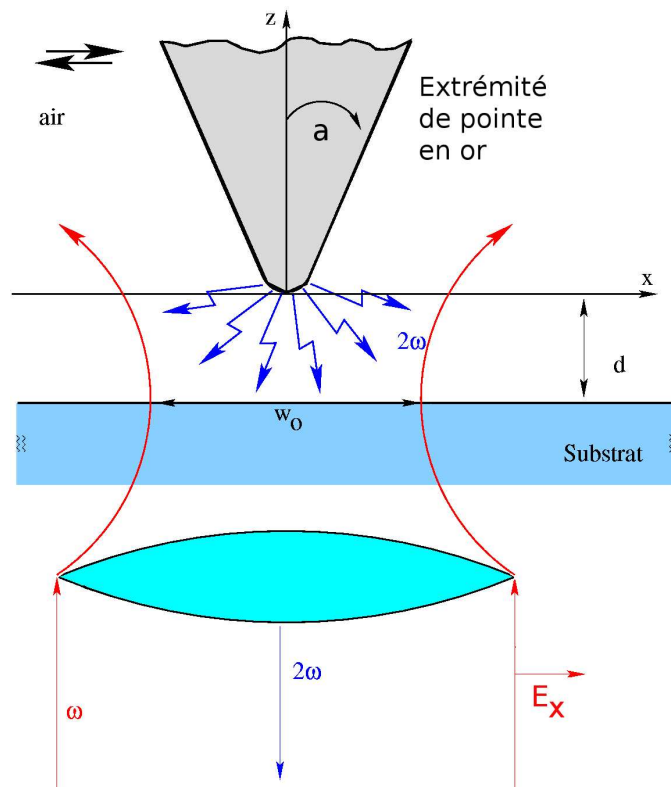


FIG. 6.2: Schéma de l'expérience modélisée. La pointe en or de demi angle d'ouverture  $a$  est placée à une distance  $d$  d'une surface séparant l'air et un substrat de permittivité  $\epsilon_s$ . Cette pointe est illuminée depuis le substrat par un faisceau gaussien dans le mode  $HG_{00}$ . Initialement, ce faisceau se propage suivant l'axe  $x$  avec une polarisation perpendiculaire à l'axe de la pointe (axe  $x$ ). Il est ensuite focalisé très fortement au niveau de la surface avec un beam waist  $w_0 = 415$  nm.

la surface, éclairée par le faisceau, à une hauteur constante  $d$ . Les grandeurs observées sont les modules carrés des champs en bout de pointe, ceci pour le premier et le second harmonique.

Il est bien connu que ce genre de faisceau très fortement focalisé ne peut rester avec une polarisation uniquement transverse à son axe de propagation<sup>[103,104,105,106,107]</sup>. En effet, l'équation de Maxwell (2.1-d) implique l'apparition d'autres polarisations et en particulier la polarisation longitudinale. Dans notre cas, cette polarisation est la composante  $E_z(\omega_m)$  du champ électrique parallèle à l'axe de la pointe. Grâce à la méthode FDTD, les composantes du champ électrique du premier harmonique sont calculées dans un système sans la pointe. Le substrat pris en compte a une permittivité  $\epsilon_s = 2,33$  et la longueur d'onde fondamentale est donnée par  $\lambda = 830$  nm. Les paramètres de calcul sont les suivants :

- $N_x = N_y = 111$  et  $N_z = 101$ .
- Nous tenons compte de la future introduction de la pointe dans le calcul en faisant un maillage adaptatif de la fenêtre de calcul.  $\Delta_{minx} = \Delta_{miny} = \Delta_{minz} = 0,5$  nm.  $\Delta_{maxx} = \Delta_{maxy} = \Delta_{maxz} = 25$  nm.
- nombre d'itérations temporelles  $nt = 40000$ .

Il est intéressant d'observer les différentes composantes du champ électrique à la fréquence fondamentale dans le futur plan de balayage de la pointe. Nous prenons ce plan éloigné d'une distance  $d = 10$  nm de la surface. Les résultats sont donnés par la figure 6.3 sous la forme de la puissance quatrième des modules des composantes transverses et longitudinales du champ électrique au premier harmonique. Le choix de la puissance quatrième des modules est motivé par la prochaine comparaison de ces résultats avec ceux obtenus au second harmonique quand la pointe est présente. L'unité affichée pour la composante  $E_x(\omega, t)$  est normalisée par rapport à son maximum. Cette composante garde une distribution gaussienne dans le plan d'observation (figure 6.3-a). Par contre, la distribution d'intensité pour la composante  $E_z(\omega, t)$  est très différente. Elle comporte deux lobes symétriques par rapport à l'axe  $x = 0$ . Cette distribution correspond exactement à l'expression analytique obtenue par une description issue de la décomposition en ondes

---

[103] J. GREFFET & C. BAYLARD, "Nonspecular astigmatic reflection of a 3D gaussian beam on an interface," Opt. Com. **93**, 271–6 (1992).

[104] W. NASALSKI, "Longitudinal and transverse effects of nonspecular reflection," J. Opt. Soc. Am. A **13**, 172–81 (1996).

[105] F. BAIDA, D. V. LABEKE & J. VIGOUREUX, "Theoretical study of near-field surface plasmon excitation, propagation and diffraction," Opt. Com. **171**, 317–31 (1999).

[106] F. BAIDA, D. BARCHIESI & D. VANLABEKE, "Near-field effects of focused illumination on periodic structures in scanning tunneling optical microscopy," Opt. Let. **24**, 1587–9 (1999).

[107] F. BAIDA, D. V. LABEKE & J.-M. VIGOUREUX, "Numerical study of the displacement of a three-dimensional Gaussian beam transmitted at total internal reflection. Near-field applications," J. Opt. Soc. Am. A **17**, 858–66 (2000).

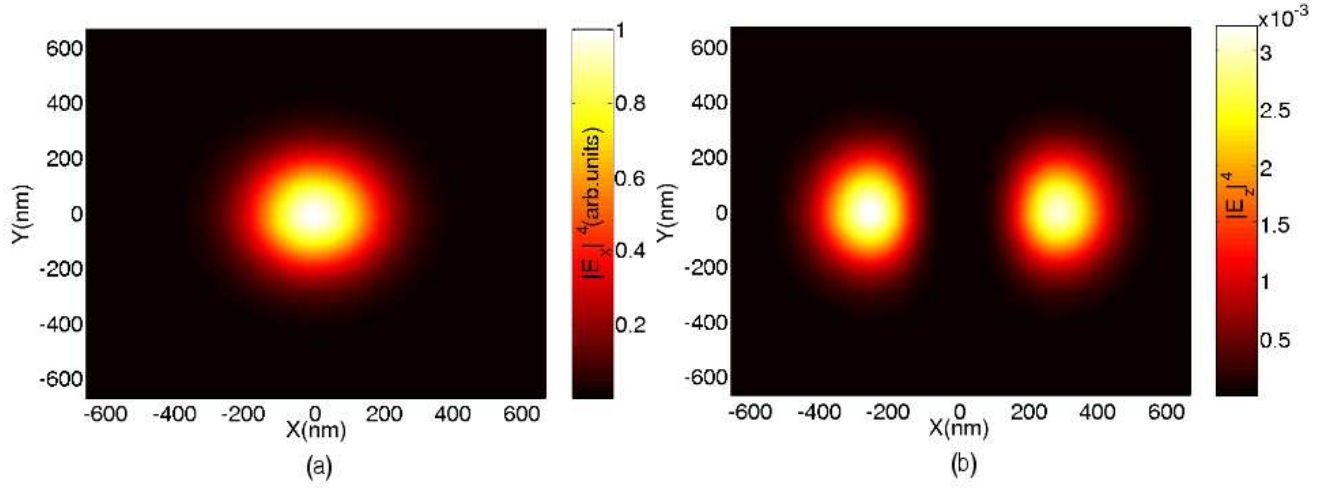


FIG. 6.3: Carte de la puissance quatrième du module des composantes transverse et longitudinales du champ électrique transmis dans l'air. Les résultats sont donnés dans un plan perpendiculaire à l'axe  $z$  éloigné d'une distance  $d = 10$  nm de la surface dans l'air. (a) Puissance quatrième du module de la composante  $x$  du champ électrique pour le premier harmonique  $E_x(\omega, t)$ . Les unités sont normalisées par rapport au maximum de la fonction. (b) Puissance quatrième du module de la composante  $z$  du champ électrique pour le premier harmonique  $E_z(\omega, t)$ . Les unités correspondent à une normalisation par rapport au maximum de la puissance quatrième de la composante  $x$ .

planes du champ<sup>[105,106,107]</sup>. Les unités, pour cette composante, sont données en fonction du maximum obtenu pour le résultat de la composante  $E_x(\omega, t)$ . À ce niveau, il est important de remarquer la différence d'intensité entre les deux composantes. Même dans notre cas où le faisceau est très fortement focalisé, la contribution de la composante  $E_z(\omega, t)$  est beaucoup plus faible que la composante  $E_x(\omega, t)$ .

## 6.2.2 Résultats numériques

Nous venons de déterminer la distribution des composantes du champ électrique pour le premier harmonique dans le plan de balayage de la pointe sans que cette dernière soit présente. Maintenant, nous introduisons la pointe pour que son extrémité soit à une distance  $d = 10$  nm de la surface dans l'air (figure 6.2). Cette pointe a pour demi angle  $a = 14^\circ$  et pour rayon de courbure  $r = 5$  nm. La présence de la pointe métallique implique celle de sources non linéaires définies pour les matériaux centrosymétriques dans la section 3.4. Ces sources non linéaires sont définies analytiquement par la relation (4.45) page 64 réécrite ci-dessous :

$$\vec{\mathbb{P}}_{\vec{n}}^{nl}(2\omega) = \chi_{\vec{n}\vec{n}\vec{n}}^s(2\omega : \omega, \omega) \vec{E}_{\vec{n}}(\omega) \vec{E}_{\vec{n}}(\omega), \quad (4.45)$$

- [105] F. BAIDA, D. V. LABEKE & J. VIGOUREUX, "Theoretical study of near-field surface plasmon excitation, propagation and diffraction," *Opt. Com.* **171**, 317–31 (1999).
- [106] F. BAIDA, D. BARCHIESI & D. VANLABEKE, "Near-field effects of focused illumination on periodic structures in scanning tunneling optical microscopy," *Opt. Lett.* **24**, 1587–9 (1999).
- [107] F. BAIDA, D. V. LABEKE & J.-M. VIGOUREUX, "Numerical study of the displacement of a three-dimensional Gaussian beam transmitted at total internal reflection. Near-field applications," *J. Opt. Soc. Am. A* **17**, 858–66 (2000).

**Remarque :** Le tenseur  $\chi^s(2\omega : \omega, \omega)$  dépend très largement de l'arrangement cristallin des couches atomiques concernées par la brisure d'inversion de symétrie. Alors, si la surface de l'objet est accidentée, il faut, en toute rigueur, tenir compte des variations de l'élément de tenseur  $\chi_{\bar{n}\bar{m}\bar{m}}^s(2\omega : \omega, \omega)$  en fonction de celles de la symétrie de la surface. Toutefois, nous considérons que cet élément de tenseur est constant sur la surface de la sonde. Une valeur de cet élément est déterminée expérimentalement par Bouhelier et al<sup>[20]</sup>. Nous prenons la valeur trouvée dans cette article comme référence :  $\chi_{\bar{n}\bar{m}\bar{m}}^s(2\omega : \omega, \omega) = 10^{-31} \text{ mV}^{-1}$ .

Les termes de polarisation non linéaire sont définis uniquement par les composantes normales à la surface de la pointe du champ électrique à la fréquence fondamentale. Ce terme de polarisation non linéaire est dû à la brisure de symétrie provoquée par la surface de la pointe. Il est donc non nul uniquement à proximité de cette dernière dans le métal jusqu'à une profondeur de quelques nanomètres. Pour être plus précis, cette épaisseur représente quelques couches atomiques, elle ne doit pas excéder un ou deux nanomètres. Dans notre cas, cette épaisseur a été fixée à deux nanomètres ( $ep = 2 \text{ nm}$ ).

La composante  $E_z(\omega, t)$  du champ électrique à la fréquence fondamentale calculée précédemment sans la pointe est donc parallèle à l'axe de la pointe une fois celle-ci introduite dans l'expérience. Ceci provoque une exaltation du champ à la fréquence fondamentale dans un espace très confiné autour de l'extrémité de la pointe. Ce champ génère à son tour un champ à la fréquence du second harmonique.

Pour mettre en évidence l'exaltation du champ fondamental en bout de pointe, nous plaçons la pointe sur la position du maximum de la composante  $E_z(\omega, t)$  observé sur la figure 6.3-b (c.à.d,  $x = 300 \text{ nm}$  et  $y = 0$ )<sup>1</sup> avec pour distance pointe-surface  $d = 10 \text{ nm}$ . Grâce au calcul FDTD avec les mêmes paramètres que pour les figures 6.3, nous obtenons les champs à  $\omega$  en tous points de l'espace pour cette position de la pointe. Nous représentons sur la figure 6.4, la carte du module carré du champ électrique fondamental, dans le

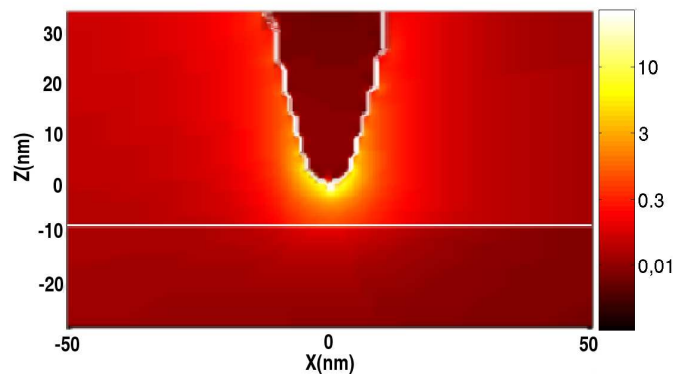


FIG. 6.4: Carte du module carré du champ électrique fondamental dans le plan  $(x-z)$  pour  $y = 0$ . La pointe se situe à la position du maximum de la composante  $E_z(\omega, t)$ . Un changement de variable est opéré pour mettre l'origine au sommet de la pointe. Les unités sont normalisées par rapport au maximum du module carré du champ électrique fondamental sans la pointe.

<sup>1</sup>En se plaçant au maximum de la composante  $E_z(\omega, t)$ , nous devons être au maximum d'exaltation du champ électrique à la fréquence fondamentale en bout de pointe. Ceci est vérifié par la suite.

[20] A. BOUHELIER, M. BEVERLUIS, A. HARTSCHUH & L. NOVOTNY, "Near-field second-harmonic generation induced by local field enhancement," Phys. Rev. Let. **90**, 013903/1-4 (2003).

## 6.2. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES POINTES MÉTALLIQUES

---

plan  $(x - z)$  pour  $y = 0$ . Cette représentation s'accompagne d'un changement de variable de façon à ce que le sommet de la pointe soit à l'origine du repère (c.à.d,  $x$  passe de  $x = 300$  nm à  $x = 0$ ). Ce module carré est normalisé par rapport au maximum de celui du champ électrique fondamental sans la pointe. Autrement dit, la figure 6.4 représente la carte du facteur d'exaltation à la fréquence fondamentale dû à la présence de la pointe en or. Le facteur d'exaltation moyen est de l'ordre de 10, autrement dit, le champ à la fréquence fondamentale en bout de pointe est dix fois plus intense que le maximum du champ sans la pointe.

Le champ à la fréquence fondamentale génère le second harmonique. Dans cet effet, le fait que le champ électrique fondamental soit exalté au niveau de la surface du sommet de la pointe est renforcé par les propriétés non linéaires de surface du métal. Ainsi, la génération de second harmonique est un phénomène localisé en bout de pointe comme le montre la figure 6.5. Les valeurs du module carré du champ élec-

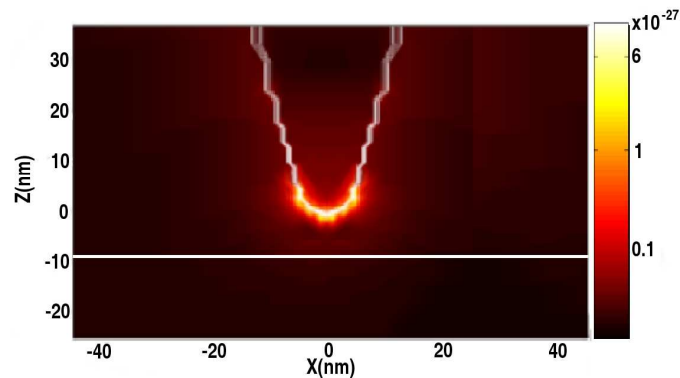


FIG. 6.5: Carte du module carré du champ électrique à la fréquence du second harmonique dans le plan  $(x - z)$  pour  $y = 0$ . La pointe se situe à la même position que pour la fréquence fondamentale. Le même changement de variable est opéré. Les unités sont normalisées par rapport au maximum du module carré du champ électrique fondamental sans la pointe.

trique pour la génération de second harmonique sont remarquables dans le sens où elles sont très faibles. Elles sont largement plus petites que celles trouvées dans les matériaux non centrosymétriques. Il est donc évident que la question posée dans le chapitre II, à propos de la perturbation provoquée par l'émission de second harmonique au niveau de la pointe sur la détection à la même fréquence, n'a plus lieu d'être. En effet, la génération de second harmonique dans les milieux non centrosymétriques est tellement plus importante que celle générée en bout de pointe que l'on peut négliger cette dernière lors d'expériences mettant en jeu des matériaux non centrosymétriques. Toutefois, la génération de second harmonique en bout de pointe métallique n'est plus négligeable lors d'études de phénomènes non linéaires dans des matériaux centrosymétriques (par exemple, surface métallique<sup>[21]</sup>, surface de silicium<sup>[108]</sup>). Ces études impliquent une caractérisation de l'émission de second harmonique par la pointe.

Jusqu'à maintenant, la pointe est restée au maximum de la composante  $E_z(\omega, t)$  de la figure 6.3 car nous

---

[21] S. BOZHEVILNYI & K. PEDERSEN, "Second Harmonic generation due to surface plasmon localization," *Surface Science* pp. 384–7 (1997).

[108] T. DRISCOLL & D. GUIDOTTI, "Symmetry analysis of second-harmonic generation in silicon," *Phys. Rev. B* **28**, 1171–3 (1983).



pensons que la génération de second harmonique est fortement dépendante de cette composante du champ électrique fondamental. Autrement dit, nous pensons que la génération de second harmonique en bout de pointe dépend de l'exaltation du champ électrique fondamental. Pour valider cette hypothèse, nous faisons balayer la surface par la pointe à distance constante  $d = 10$  nm suivant l'axe  $y = 0$  et nous étudions le module carré du champ électrique au second harmonique en bout de pointe. Le balayage se fait par une succession de points. Chaque point est déterminé par un calcul grâce à la méthode FDTD avec les paramètres déjà utilisés. Ces calculs étant relativement longs (une journée), nous avons choisis quelques points représentatifs. Ces points sont représentés sur la figure 6.6 (dénotés par les étoiles) et sont comparés à la

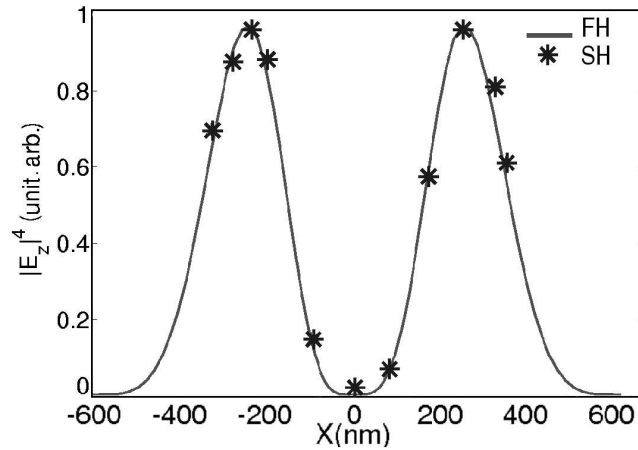


FIG. 6.6: Comparaison entre la puissance quatrième du module de la composante longitudinale du champ électrique fondamental (trait plein) et le module carré du champ électrique au second harmonique en bout de pointe sur l'axe  $y = 0$  à une hauteur constante de la surface  $d = 10$  nm (étoiles). Les étoiles issues du calcul FDTD pour le champ électrique au second harmonique représentent différentes positions de la pointe durant le balayage de la surface (SH : second Harmonic). La ligne continue est la puissance quatrième du module de la composante longitudinale du champ électrique fondamental (FH : First Harmonic). Les unités pour chaque grandeur sont normalisées par rapport à leur maximum respectif.

puissance quatrième de la composante  $E_z(\omega, t)$  (dénotée par la ligne continue). Les unités pour chaque grandeur ( $|E_z(\omega, t)|^4$  et  $|\vec{E}(2\omega, t)|^2$ ) sont normalisées par rapport à leur maximum respectif. L'origine des  $x$  est de nouveau le même que celui des figures 6.3. Cette comparaison montre que l'intensité en bout de pointe du champ à la fréquence du second harmonique est proportionnelle à la puissance quatrième du module de la composante  $E_z(\omega, t)$ . Ainsi, nous pouvons dire que pour les positions où l'exaltation fondamentale en bout de sonde est importante, il en est de même pour le second harmonique. Ce point a été démontré expérimentalement par Bouhelier et al<sup>[20]</sup>.

Cette corrélation entre les résultats expérimentaux et notre méthode numérique vérifie la validité du modèle de génération de second harmonique dans notre cas. Cependant, il faut garder à l'esprit que pour d'autres configurations géométriques, la composante  $\chi_{\bar{n}\bar{m}\bar{l}}^s(2\omega : \omega, \omega)$  du tenseur de susceptibilité non linéaire de surface n'est pas forcément la seule non nulle. Ainsi, il est probable de rencontrer des cas où les composantes tangentielles du champ électrique fondamental jouent un rôle important.

[20] A. BOUHELIER, M. BEVERLUIS, A. HARTSCHUH & L. NOVOTNY, "Near-field second-harmonic generation induced by local field enhancement," Phys. Rev. Let. **90**, 013903/1–4 (2003).

## 6.2. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES POINTES MÉTALLIQUES

---

Depuis les premiers résultats numériques de cette section, nous parlons de confinement de champ en bout de pointe. C'est un facteur essentiel pour la microscopie optique en champ proche. En effet, l'exaltation obtenue pour le premier et le second harmonique peut être considérée comme une source secondaire très localisée. Cette source secondaire peut, alors être utilisée pour éclairer localement les échantillons observés. Dans ce cas, plus la source est confinée, plus les chances augmentent d'avoir une résolution optique élevée. C'est pourquoi, nous voulons comparer le confinement des champs au premier et au second harmonique en bout de pointe.

Pour ce faire, nous plaçons la pointe sur la position du maximum de la composante  $E_z(\omega, t)$  et à une hauteur  $d = 10$  nm de la surface comme pour les résultats des figures 6.4 et 6.5. Afin d'étudier les confinements latéraux, nous représentons la carte dans le plan  $(x - y)$  des modules carrés des champs électriques pour chaque harmonique et ce à une distance de la pointe  $e = 5$  nm (c.à.d, à mi chemin de la pointe et de la surface). La figure 6.7-a montre le confinement de l'intensité du champ à la fréquence fondamentale dans

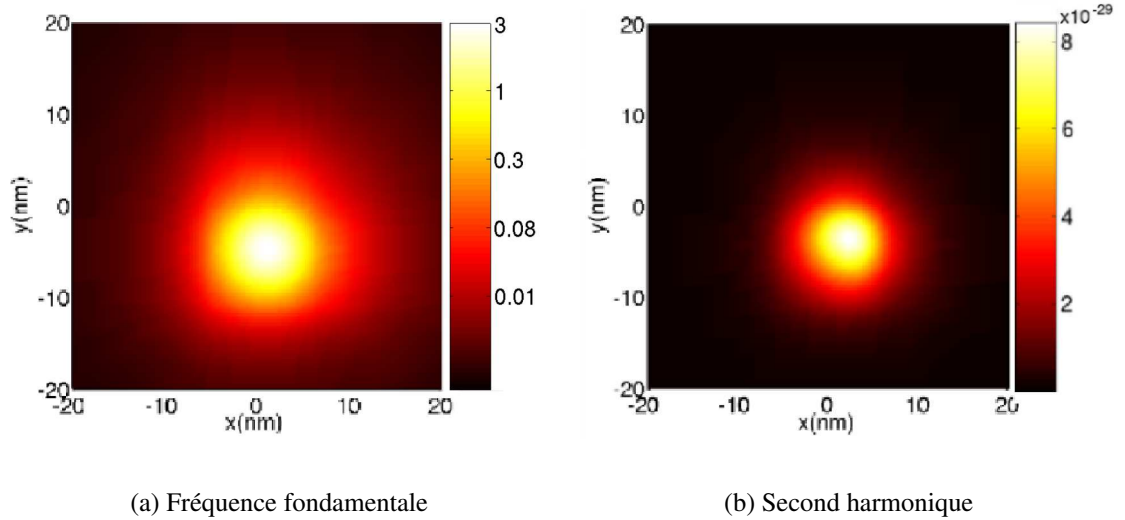


FIG. 6.7: Carte des modules carrés des champs dans le plan  $(x - y)$  à une distance  $e = 5$  nm sous la pointe. La pointe est placée au maximum de la composante  $E_z(\omega, t)$  à une hauteur  $d = 10$  nm de la surface. Un changement de variable est opéré pour que l'origine du repère soit au bout de la pointe. Les unités sont normalisées de la même façon que pour les figures 6.4 et 6.5.

le plan  $(x - y)$  à une distance  $e$  de la pointe. Sur la figure 6.7-b, c'est le confinement du second harmonique dans le plan  $(x - y)$  qui est représenté. Nous pouvons déterminer qualitativement, grâce à ce résultat, que le confinement du second harmonique dans le plan  $(x - y)$  est plus important que celui à la fréquence fondamentale. Afin d'être plus précis et de donner une différence quantitative entre les deux confinements, nous réalisons les coupes suivant l'axe  $y = 0$  nm des résultats précédents. Ces coupes sont comparées dans la figure 6.8. Grâce à ce résultat, nous quantifions le confinement de chaque harmonique dans le plan  $(x - y)$  à l'aide de la largeur à mi hauteur des pics de la figure 6.8. Ainsi, le confinement du champ à la fréquence fondamentale est équivalent  $LMH(\omega) \sim 13$  nm tandis que celui du second harmonique  $LMH(2\omega) \sim 7$  nm. Le champ à la fréquence du second harmonique est donc quasiment deux fois plus confiné latéralement

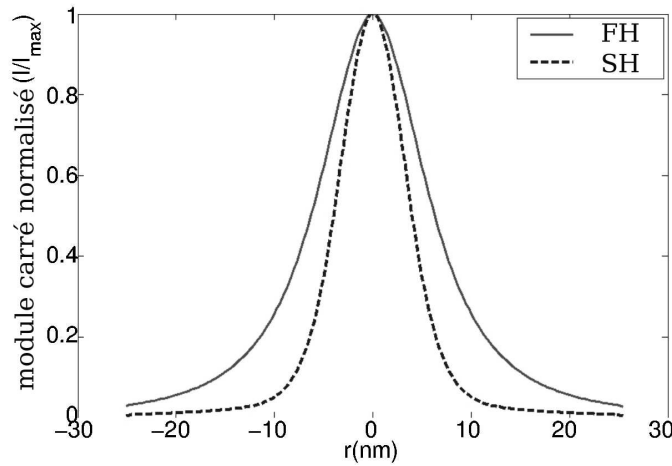


FIG. 6.8: Comparaison entre les confinements des modules carrés du champ électrique fondamental et du champ électrique au second harmonique dans le plan  $(x - y)$  suivant l'axe  $y = 0$  à une distance de la pointe  $e = 5$  nm. Les unités des différentes grandeurs sont normalisées par rapport aux maxima respectifs des résultats des figures 6.7. La ligne continue dénote la décroissance du module carré à la fréquence fondamentale. La ligne discontinue représente celui du second harmonique.

que celui à la fréquence fondamentale.

Pour finir de caractériser le confinement au niveau de la pointe pour les différents harmoniques, nous étudions la décroissance du module carré des champs sous la pointe dans la direction de l'axe des  $z$ . Ce que nous observons sur la figure 6.9 est la coupe suivant l'axe  $x = 0$  des figures 6.4 et 6.5. Si nous définissons

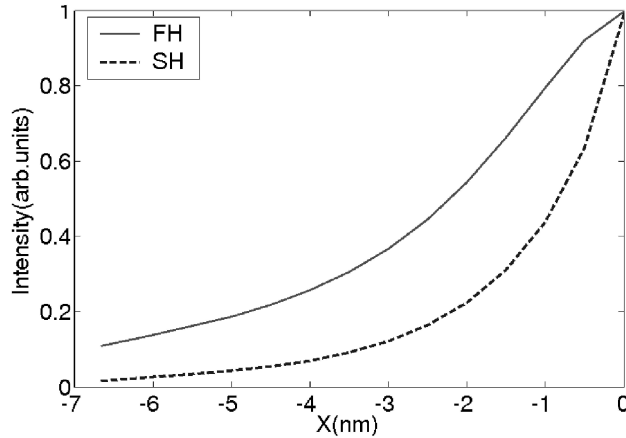


FIG. 6.9: Comparaison entre les confinements des modules carrés du champ électrique fondamental et du champ électrique au second harmonique dans la direction  $z$  pour  $x = 0$ . Les unités des différentes grandeurs sont normalisées par rapport aux maxima respectifs des résultats des figures 6.4 et 6.5. La ligne continue dénote la décroissance du module carré à la fréquence fondamentale. La ligne discontinue représente celui du second harmonique.

l'éloignement de la pointe suffisant pour que la valeur du module carré chute de moitié comme étant la longueur de décroissance, celle à la fréquence fondamentale vaut  $Ld(\omega) \sim 2,5$  nm tandis que celle du second harmonique est donnée par  $Ld(\omega) \sim 1$  nm. Une fois de plus, la conclusion est que le second harmonique est plus confiné longitudinalement que le fondamental.

En résumé, quelque soit la direction concernée, le champ à la fréquence du second harmonique est plus confiné en bout de pointe que le champ à la fréquence fondamentale. La source de second harmonique

ainsi générée est une source très confinée qui devient une sonde utilisable en microscopie optique en champ proche<sup>[100]</sup>. Ce type de sonde est aussi très sensible à la polarisation. Alors, de part ses deux caractéristiques (confinement et dépendance à la polarisation), l'utilisation combinée d'une pointe métallique sans ouverture et de la génération de second harmonique permet d'obtenir un outil très sensible aux effets de surface.

### 6.2.3 Amélioration du rendement pour la génération de second harmonique

Dans le paragraphe précédent, nous avons utilisé la FDTD pour modéliser l'exaltation des champs du premier et du second harmonique en bout de pointe et retrouver les résultats expérimentaux. Cette exaltation est due à la présence d'une composante du champ incident longitudinale à l'axe de la pointe. Cependant, cette composante, dans le cas précédent est mille fois plus faible que la composante transverse. C'est pour cela que le facteur d'exaltation en bout de pointe à la fréquence fondamentale n'excède pas dix fois le maximum du champ incident sans la pointe. De plus, la carte du module de la composante  $E_z(\omega, t)$  (figure 6.3-b) présente des lobes d'intensité dans lesquels l'exaltation est maximum. Expérimentalement, il faut donc se déplacer sur un de ces lobes pour avoir une exaltation en bout de pointe et ainsi générer un maximum de second harmonique car si nous plaçons la pointe au centre du faisceau nous ne générons quasiment aucun second harmonique (figure 6.6). Ceci est difficile expérimentalement.

Nous proposons, ici, une alternative permettant non seulement d'augmenter le facteur d'exaltation pour les deux harmoniques, mais aussi d'obtenir une carte du module de la composante  $E_z(\omega, t)$  sans la pointe avec un maximum centré au milieu du faisceau incident. Cette alternative consiste à modifier le faisceau incident pour qu'il soit polarisé radialement. En d'autres termes, la polarisation du faisceau doit avoir une symétrie cylindrique avec comme axe de révolution l'axe des  $z$  (qui est aussi l'axe de la pointe). Cette polarisation représentée sur la figure 6.10 est assez complexe à obtenir expérimentalement. Une étude faite au laboratoire montre comment obtenir cette polarisation grâce à une fibre optique multimode<sup>[109]</sup>. Cette fibre est clivée de telle façon qu'elle joue le rôle de filtre de polarisation et permet d'obtenir suivant le réglage le mode désiré du faisceau gaussien.

Ici, nous gardons l'expérience du paragraphe 6.2.1 en choisissant donc le faisceau gaussien polarisé radialement. La pointe est toujours en or et balaye la même surface diélectrique à une hauteur constante  $d$ . Le faisceau choisi est encore gaussien à la même longueur d'onde et de beam waist  $w_0 = 5 \mu\text{m}$ , mais, cette fois-ci, polarisé radialement avec un angle de convergence de  $b = 45^\circ$ . Ce faisceau est focalisé de telle sorte qu'il converge sous la pointe au niveau de la surface. L'angle étant supérieur à l'angle de réflexion totale entre le substrat et l'air, l'onde transmise est évanescence. Le schéma de la nouvelle expérience est

---

[100] A. ZAYATS & V. SANDOGHDAR, "Apertureless near-field optical microscopy via local second-harmonic generation," *Journal of Microscopy* **202**, 94–9 (2001).

[109] T. GROSJEAN, D. COURJON & M. SPAJER, "An all-fiber device for generating radially and other polarized light beams," *Opt. Com.* **203**, 1–5 (2002).

représenté sur la figure 6.10.

Pour faire le calcul FDTD de cette expérience qui a une symétrie cylindrique, nous avons choisi de mo-

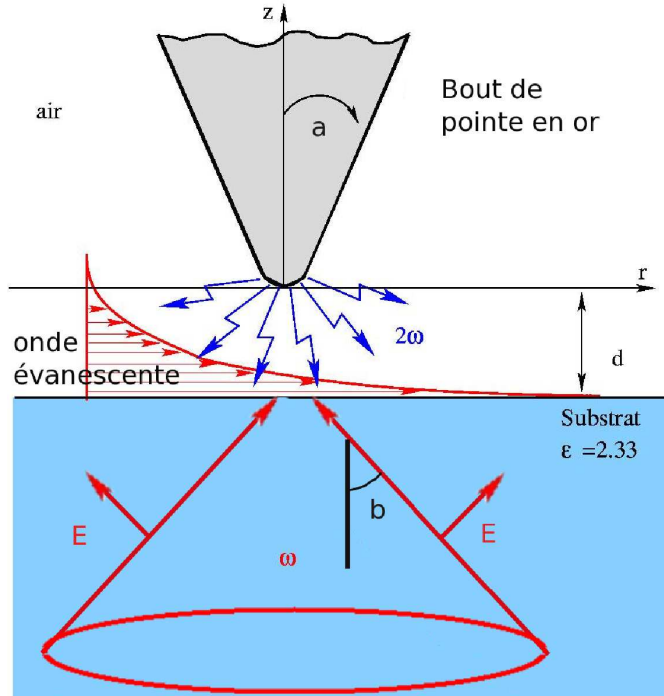


FIG. 6.10: Schéma de l'expérience modélisée. La pointe en or de demi angle d'ouverture  $a$  est placée à une distance  $d$  d'une surface séparant l'air et un substrat de permittivité  $\epsilon_s$ . Cette pointe est illuminée depuis le substrat par un faisceau gaussien polarisé radialement  $E_r$  et d'angle de convergence  $b = 45^\circ$  et de longueur d'onde  $\lambda = 830$  nm. Ce faisceau converge au niveau de la surface sous la pointe avec un beam waist  $w_0 = 5$   $\mu\text{m}$ . L'onde transmise est évanescente.

difier notre programme pour l'adapter aux coordonnées cylindriques  $(r, \theta, z)$ . Ce changement permet de se ramener à un problème à deux dimensions  $(r, z)$  et ainsi de gagner en place mémoire et en rapidité de calcul. Les paramètres de calcul sont les suivants :

- Maillage adaptatif centré sur la pointe,  $\Delta_{minr} = \Delta_{minz} = 0,25$  nm,  $\Delta_{maxr} = \Delta_{maxz} = 25$  nm.
- Taille de la fenêtre,  $N_r = 1000$ ,  $N_z = 2000$ .

Dans un premier temps, nous regardons le résultat de la propagation du faisceau incident sans la pointe, afin de caractériser la composante longitudinale (axe  $z$ ) qui est à l'origine de l'exaltation du champ en bout de pointe lorsque elle est introduite dans l'expérience. Nous définissons les propriétés du champ incident dans le plan de balayage de la pointe lorsqu'elle est présente (c.à.d., le plan  $z = d$ ). Nous représentons nos résultats dans le plan  $(x - y)$  pour  $z = d = 10$  nm sur la figure 6.11. Nous donnons la puissance quatrième des modules pour les composantes transverses et longitudinales car nous savons que la génération de second harmonique lui est directement proportionnelle. Ces figures montrent deux choses importantes. La première est la différence d'intensité entre les deux composantes. Contrairement au cas de la polarisation rectiligne du paragraphe 6.2.1, la polarisation longitudinale est supérieure à cinq cents fois celle transverse. Ainsi, son poids dans l'intensité totale du champ fondamental est prédominant sur celui de la polarisation transverse et le facteur d'exaltation doit s'en trouver augmenté considérablement. La deuxième remarque

## 6.2. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR DES POINTES MÉTALLIQUES

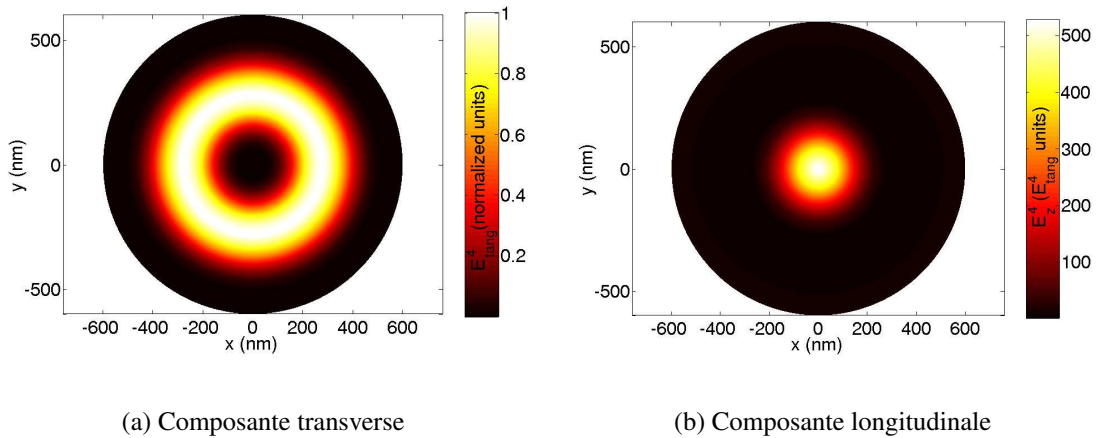


FIG. 6.11: Carte de la puissance quatrième du module des composantes transverses et longitudinales du champ électrique transmis dans l'air sous la forme d'une onde évanescente. Les résultats sont donnés dans un plan perpendiculaire à l'axe  $z$  éloigné d'une distance  $d = 10$  nm de la surface dans l'air. (a) Puissance quatrième du module de la composante  $r$  du champ électrique pour le premier harmonique  $E_r(\omega, t)$  normalisée par rapport à son maximum dans le plan considéré. (b) Puissance quatrième du module de la composante  $z$  du champ électrique pour le premier harmonique  $E_z(\omega, t)$  normalisé par rapport au maximum de la composante transverse dans le plan considéré.

réside dans la distribution d'intensité de la puissance quatrième du module de la composante longitudinale (figure 6.11-b). En effet, contrairement au cas de la polarisation rectiligne, cette carte est isotrope et centrée au milieu du faisceau. Ainsi, en plaçant la pointe à peu près en cet endroit, nous avons une exaltation du champ à l'extrémité de la sonde sans craindre un zéro du facteur d'exaltation.

En introduisant la pointe au milieu du faisceau ( $r = 0$ ) à une hauteur  $d = 10$  nm de la surface, le calcul FDTD correspondant doit montrer un facteur d'exaltation pour le champ électrique fondamental supérieur à celui obtenu avec la polarisation rectiligne. Ce résultat est donné dans la figure 6.12. Le facteur d'exaltation du champ fondamental dû au champ incident polarisé radialement est à peu près égal à 2000, ce qui est largement supérieur au résultat obtenu avec la polarisation rectiligne. Normalement, l'augmentation du facteur d'exaltation à la fréquence fondamentale implique que la génération de second harmonique doit s'accroître aussi. C'est exactement le résultat représenté sur la figure 6.13 obtenu par le même calcul FDTD que le résultat à la fréquence fondamentale. Les résultats montrent une augmentation d'un facteur  $10^4$  entre le résultat pour le champ en bout de pointe au second harmonique obtenu pour la polarisation radiale et celui obtenu pour la polarisation rectiligne aux sections 6.2.1 et 6.2.2.

Le but recherché est pleinement atteint. En effet, la dernière configuration avec le faisceau gaussien polarisé radialement permet non seulement d'augmenter le facteur d'exaltation du champ fondamental et le champ au second harmonique en bout de pointe, mais aussi d'éviter la présence de minimum d'intensité en bout de pointe pour les deux harmoniques en plein centre du faisceau incident.

De plus, les propriétés du confinement de champ en bout de pointe restent les mêmes que pour le paragraphe précédent. C'est-à-dire, le champ en bout de pointe est plus confiné pour le second harmonique que pour le premier harmonique.

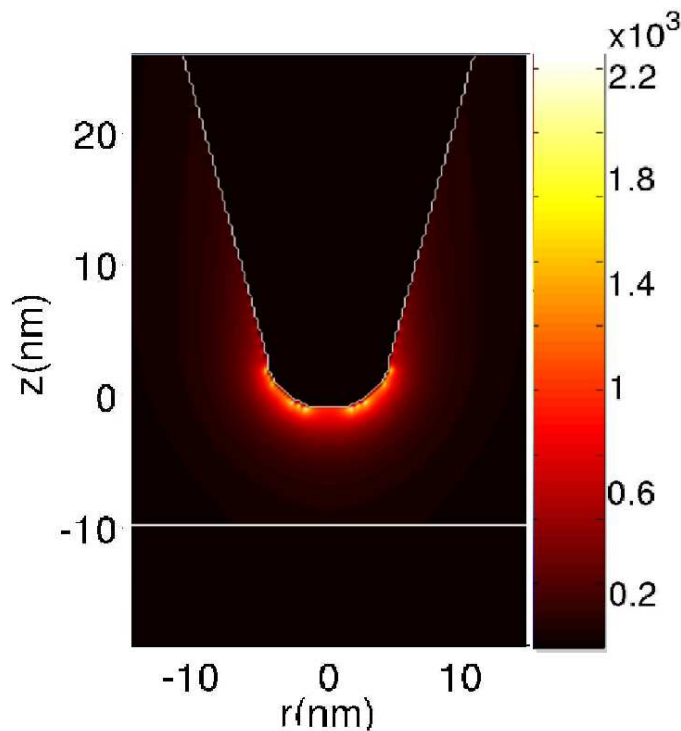


FIG. 6.12: Carte du module carré du champ électrique fondamental dans le plan  $(r-z)$ . La pointe se situe en  $r = 0$  et à  $d = 10$  nm de la surface. Les unités sont normalisées par rapport au maximum du module carré du champ électrique fondamental sans la pointe à la longueur d'onde  $\lambda = 830$  nm.

### 6.2.4 Discussion

Le modèle présenté ici permet de reproduire le phénomène d'exaltation de champ en bout de pointe métallique et de donner les cartes de champ de second harmonique. Cette étude permet de tester notre modèle de sources non linéaires ainsi que notre programme de calcul en vérifiant que l'intensité au second harmonique est directement proportionnelle à la puissance quatrième de la composante  $E_z(\omega, t)$ . Ce résultat est obtenu expérimentalement dans une étude antérieure<sup>[20]</sup>. Nous avons aussi montré que le confinement du champ en bout de pointe est plus important pour le second harmonique que pour la fréquence fondamentale. Ceci implique que si la source secondaire engendrée par ce confinement à la fréquence du second harmonique est employée en microscopie optique en champ proche, la résolution des détails observés devrait s'en trouver augmentée. Toutefois, il ne faut pas négliger le fait que les intensités mises en jeu pour le second harmonique sont très faibles comparées aux intensités à la fréquence fondamentale. Les méthodes de détection expérimentale doivent être très sensibles au comptage de photons<sup>[101]</sup>, mais, dans les cas où le signal de second harmonique observé est largement au-dessus des intensités de bruits intrinsèques aux appareils de mesure, la dynamique du résultat obtenu est meilleure que pour la fréquence

[20] A. BOUHELIER, M. BEVERLUIS, A. HARTSCHUH & L. NOVOTNY, "Near-field second-harmonic generation induced by local field enhancement," *Phys. Rev. Let.* **90**, 013903/1–4 (2003).

[101] I. SMOLYANINOV, A. ZAYATS & C. DAVIS, "Near field second harmonic generation from a rough metal surface," *Phys. Rev. B* **56**, 9290–3 (1997).

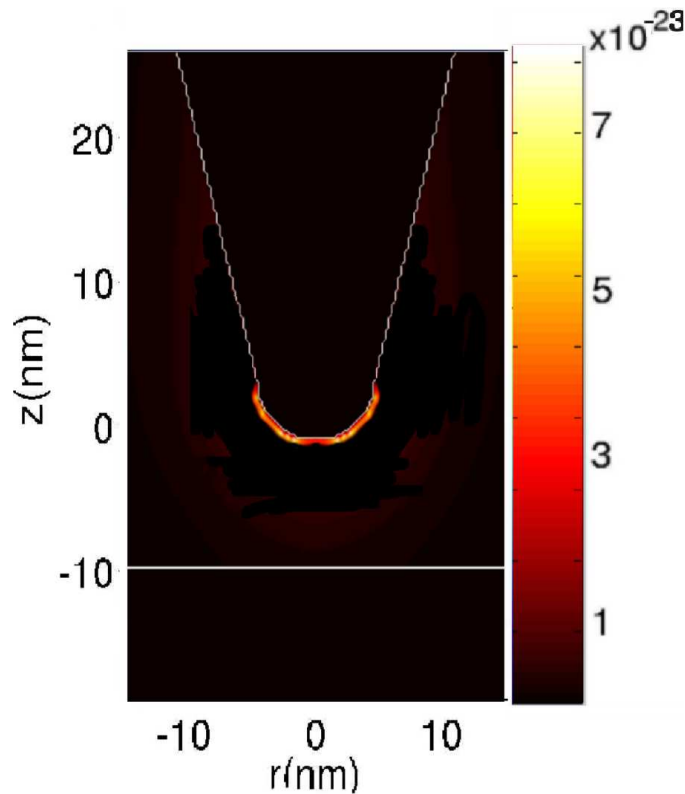


FIG. 6.13: Carte du module carré du champ électrique pour le second harmonique dans le plan  $(r-z)$ . La pointe se situe en  $r=0$  et à  $d=10$  nm de la surface. Les unités sont normalisées par rapport au maximum du module carré du champ électrique fondamental sans la pointe à la longueur d'onde  $\lambda=830$  nm.

fondamentale puisque nous n'avons pas de fond continu et d'interférence dus à l'onde incidente (voir chapitre 5).

Nous avons mis en évidence que la polarisation du faisceau incident joue un grand rôle dans la génération de second harmonique en bout de pointe. En effet, le rapport du module carré du champ en bout de pointe pour le second harmonique sur l'intensité incidente est multiplié par 100 entre le cas de la polarisation rectiligne et celui de la polarisation radiale. Dans ce genre d'expérience, il est donc évident que la difficulté initiale est de trouver le bon faisceau ayant une composante longitudinale assez importante et homogène pour obtenir un bon rendement d'exaltation du champ fondamental et de génération de second harmonique.

Un facteur important, dont nous n'avons pas parlé jusque là, est la longueur d'onde. En effet, un des facteurs liés à l'apparition d'une exaltation du champ en bout de pointe est l'effet de pointe. En d'autres termes, plus la pointe est pointue à longueur d'onde constante, plus l'exaltation devient grande. Si la longueur d'onde augmente, le facteur d'exaltation augmente. Nous avons fait une rapide étude pour le champ fondamental de la variation du facteur d'exaltation en bout de pointe pour quelques longueurs d'onde fondamentales pour un rayon d'extrémité de pointe donné,  $r=5$  nm. Les variations du facteur d'exaltation sont données dans le tableau 6.1. Les différentes permittivités de l'or sont déduites du modèle de



Drude ajusté grâce aux valeurs expérimentales<sup>[110]</sup>. Nous ne pouvons pas déduire de ces résultats une lois

$\lambda$ (nm)	526 nm	632 nm	830 nm	1064 nm
Facteur d'exaltation	1,2	1,6	2	2,5

TAB. 6.1: Variations du facteur d'exaltation du champ électrique fondamental en bout de pointe métallique en fonction de la longueur d'onde incidente.

générale, mais les variations semblent vérifier que l'exaltation du champ en bout de pointe augmente en fonction de la longueur d'onde incidente. Cette augmentation n'est pas très prononcée comparée aux variations obtenues grâce aux effets de la polarisation du champ incident. Nous ne poussons pas notre intérêt aux résultats du second harmonique, car, dans notre cas où les effets non linéaires sont non dispersifs, leurs valeurs augmentent avec le facteur d'exaltation à la fréquence fondamentale. Dans un cas plus général où les effets non linéaires seraient avec dispersion, nous ne pouvons pas comparer les résultats des différentes longueurs d'onde car nous n'avons pas de valeurs expérimentales pour des longueurs d'onde fondamentales autres que  $\lambda = 830$  nm.

Un autre facteur important dans la génération d'une exaltation de champ en bout de pointe est le choix du matériau de la sonde. Depuis le début de ce chapitre, nous avons négligé les effets non linéaires des matériaux centrosymétriques diélectriques. Si ce type de matériaux correspond à une susceptibilité non linéaire qui est de l'ordre de grandeur de celle du métal étudié ci-dessus, la différence entre les deux résultats est déterminée par le facteur d'exaltation en bout de pointe. Nous reprenons la simulation consistant à éclairer une pointe avec les mêmes dimensions que précédemment par le même faisceau gaussien polarisé radialement. Pour ce calcul, la pointe est en silicium. Le résultat est reporté sur la figure 6.14 pour la fréquence fondamentale. La carte d'intensité montre bien une exaltation et un confinement du champ électrique fondamental au bout d'une pointe diélectrique, mais ce confinement est moins important que pour les pointes métalliques. Le résultat le plus remarquable de ce calcul est la valeur du facteur d'exaltation. En effet, ce facteur est à peu près 500 fois plus faible que celui de la même pointe faite en or. Ce résultat implique deux choses. La première : l'aspect géométrique n'est pas le seul à jouer un rôle dans l'exaltation de champ en bout de pointe, le choix du matériau formant la pointe est très important. En l'occurrence, le fait que la pointe soit en métal favorise l'exaltation du champ en bout de pointe. La deuxième chose : la génération de second harmonique en bout de pointe diélectrique centrosymétrique est moins efficace que dans le cas d'une pointe métallique. Ceci est vrai si on considère les susceptibilités non linéaires du même ordre de grandeur dans le métal et le diélectrique et que les mécanismes des sources non linéaires sont les mêmes. Pour conclure, nous rappelons que, dans le cas où l'échantillon observé est non linéaire et non centrosymétrique, l'étude de ce chapitre n'est pas nécessaire car les non linéarités dans ce genre de matériaux sont largement supérieures à celles dans les matériaux centrosymétriques. Maintenant, si les matériaux étudiés sont non linéaires et centrosymétriques, l'effet de la sonde peut ne plus être négligeable. Dans la suite de ce chapitre, nous donnons les résultats pour des surfaces séparant l'air d'un matériau centrosymétrique non linéaire. Ainsi, nous pouvons quantifier l'influence de la pointe sur l'échantillon.

---

[110] E. PALIK, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic Press, 1997).

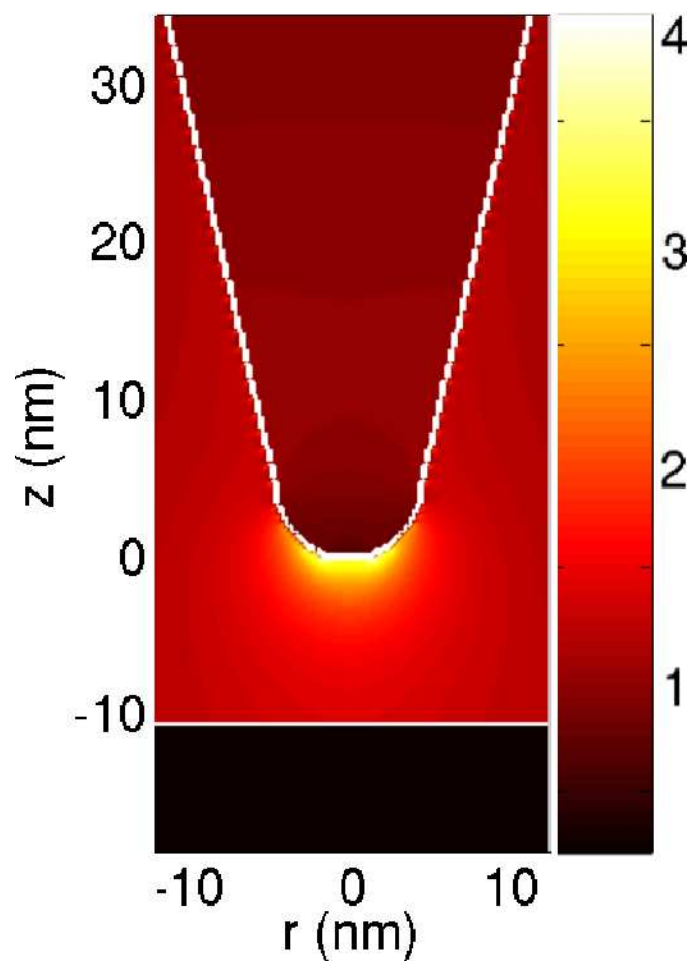


FIG. 6.14: Carte du module carré du champ électrique fondamental dans le plan  $(r-z)$ . La pointe en verre se situe en  $r=0$  et à  $d=10$  nm de la surface. Les unités sont normalisées par rapport au maximum du module carré du champ électrique fondamental sans la pointe à la longueur d'onde  $\lambda=830$  nm.

## 6.3 Génération de second harmonique pour une surface séparant des milieux centrosymétriques non linéaires

Dans la section précédente, nous voyons les effets d'une pointe sur la génération de second harmonique et ce, que la pointe soit en métal ou non. Les intensités au second harmonique obtenues sont très faibles devant celles générées dans les matériaux non centrosymétriques qui sont à leur tour très inférieures aux intensités à la fréquence fondamentale. Pourtant, les intensités en bout de pointe sont exaltées par l'effet de singularité. Alors, on peut se demander ce qu'il en est pour des géométries ne contenant pas de tels effets. Les surfaces planes sont les meilleures représentantes de ce type de géométrie et aussi les plus simples à modéliser. Dans un premier temps, nous modélisons donc la génération de second harmonique sur une surface séparant un milieu non linéaire centrosymétrique et l'air. Ces résultats servent de comparaison à ceux trouvés pour une pointe. Dans un deuxième temps, nous regardons brièvement les surfaces rugueuses. Les rugosités sont alors considérées comme des défauts de surface générant des singularités et elles provoquent des exaltations des champs au premier et au second harmonique.

Dans les deux cas, nous observons l'influence des composantes tangentielles à la surface du champ fondamental sur la génération de second harmonique.

### 6.3.1 Description du modèle surface plane

Nous étudions le cas des surfaces dans une géométrie bidimensionnelle. Une couche mince (d'épaisseur  $e$  et de largeur  $l$ ) d'un matériau centrosymétrique de permittivité  $\epsilon_c$  est déposée sur un diélectrique de permittivité  $\epsilon_d$ . Cette couche est éclairée depuis le diélectrique par un faisceau gaussien  $E_i$  polarisé (TM) de longueur d'onde  $\lambda$  sous un angle d'incidence  $\theta$ . Les termes de polarisation non linéaire générant le second harmonique sont, en première approximation, donnés par l'équation (4.45). Autrement dit, nous ne tenons pas compte de l'influence de la composante tangentielle à la surface du champ fondamental dans la génération de second harmonique. Cette approximation a jusque là donné des résultats théoriques cohérents avec les résultats expérimentaux.

Cependant, le tenseur non linéaire dipolaire de surface  $\chi^s$  est de rang trois. Alors, des composantes, autres que  $\chi_{zzz}^s$  (utilisées dans l'équation (4.45)), peuvent être non nulles. Ceci implique l'existence de composantes tangentielles à la surface pour la polarisation non linéaire  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega)$  [111,112,113]. Ce phénomène dépend bien sûr du matériau, mais également de la face cristalline envisagée pour un matériau monocristallin. Il suffirait donc de connaître le tenseur  $\chi^s$  pour étudier l'influence des différentes composantes de

---

[111] T. HEINZ, M. LOY & W. THOMPSON, "Study of Si(111) surfaces by optical second-harmonic generation : reconstruction and surface Phase Transformation," Phys. Rev. Lett. **54**, 63–6 (1985).

[112] Y. AN & S. CUNDIFF, "Bulk and Surface Contributions to Resonant Second-Harmonic Generation from Si(001) surfaces," Appl. Phys. Lett. **81**, 5174 (2002).

[113] Y. Q. AN, thesis, Faculty of the Graduate School of the University of Colorado, 2003.

### 6.3. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR UNE SURFACE SÉPARANT DES MILIEUX CENTROSYMÉTRIQUES NON LINÉAIRES

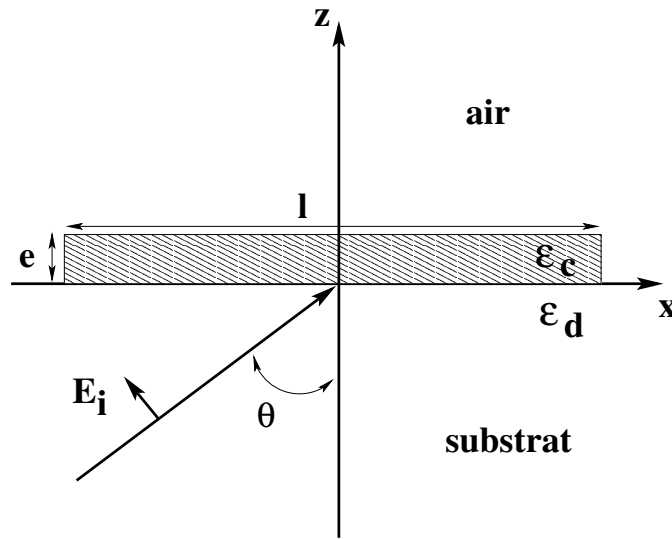


FIG. 6.15: schéma représentant l'expérience de génération de second harmonique sur surface plane. L'onde incidente  $E_i$  est un faisceau gaussien polarisé (TM) de longueur d'onde  $\lambda$ . Cette onde se propage depuis un diélectrique de permittivité  $\epsilon_d$  sur une couche mince de matériau centrosymétrique de permittivité  $\epsilon_c$ . Cette couche est d'épaisseur  $e$  et de largeur  $l$ .

la polarisation non linéaire et ainsi déterminer le champ de validité de l'approximation des composantes normales utilisée jusque là. Cependant, les valeurs numériques des composantes de ce tenseur sont souvent inconnues. De plus, en champ proche, les matériaux sont rarement monocristallins. À ce jour, il est donc quasiment impossible d'étudier, dans un cas général, ces effets de polarisation non linéaire d'ordre deux en champ proche. Nous avons cependant fait l'étude des différences entre les sources non linéaires dans l'approximation des composantes normales (seule  $\chi_{zzz}^s$  est non nulle) et dans le cas plus général où d'autres composantes de  $\chi^s$  sont non nulles.

Pour tenir compte des autres composantes du tenseur  $\chi^s$ , nous introduisons la symétrie "cristalline" de la surface, en supposant que nous avons un monocristal. Cette symétrie dépend de la façon dont le matériau est taillé. Une fois cette symétrie déterminée, le tenseur de susceptibilité non linéaire  $\chi^s$  est donné par les tables en fonction des classes de symétrie<sup>[84]</sup>. Les valeurs numériques des coefficients du tenseur n'étant pas connues, nous prenons la même pour chacun d'entre eux (dans un soucis de comparaison avec l'effet de pointe, tous les coefficients sont égaux à celui du paragraphe précédent :  $\chi_{zzz}^s = 10^{-31} mV^{-1}$ ). L'erreur de cette approximation se trouve essentiellement dans une mauvaise description de la polarisation du champ au second harmonique.

Pour résumer, nous étudions dans un premier temps les phénomènes non linéaires d'ordre deux dans l'approximation où seule  $\chi_{zzz}^s$  est non nulle et dans un deuxième temps, nous comparons ces résultats à ceux obtenus en tenant compte des autres composantes du tenseur  $\chi^s$ .

[84] V. DMITRIEV, G. GURZADYAN & D. NIKOGOSYAN, *Handbook of nonlinear optical crystals* (Springer, 1999), Vol. 64.

### 6.3.2 Résultats numériques

Dans un premier temps, nous modélisons l'expérience avec un angle d'incidence nul. La longueur d'onde fondamentale est  $\lambda = 830$  nm et le beam waist est de  $3 \mu\text{m}$ . La couche est en or, son épaisseur est  $e = 60$  nm et sa largeur  $l = 20 \mu\text{m}$ . Le faisceau éclaire la surface en son milieu. Les permittivités sont  $\epsilon_d = 2,33$  et  $\epsilon_c = -29,33 + 2,04i$  pour la fréquence fondamentale. Pour ce qui est du second harmonique, la permittivité de la couche métallique est  $\epsilon_c(2\omega) = -1,15 + 6,39i$ . Le calcul est effectué grâce à la méthode FDTD avec les paramètres suivants :

- le maillage est adaptatif pour l'axe des  $z$  centré au niveau de la couche d'or,  $\Delta_{maxz} = \Delta_{minz} = 20$  nm,  $\Delta_{minz} = 4$  nm.
- la taille de la fenêtre est la même en  $x$  et  $z$ ,  $N_x = N_z = 1000$ .
- le nombre d'itérations temporelles,  $n_t = 100000$ .

Le résultat, dans l'approximation de l'équation (4.45) pour les termes non linéaires, donne un second harmonique nul. C'est logique puisque la composante normale du champ électrique est nulle.

Nous faisons le même calcul en prenant en compte la composante tangentielle. La symétrie choisie arbitrairement pour la surface est la classe  $C_{3v}$  dont le tenseur de susceptibilité non linéaire est donné par l'équation (6.1) dans sa forme réduite.

$$d_s^{(2)} = \begin{pmatrix} d_{11} & -d_{11} & 0 & 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & 0 & -d_{11} \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (6.1)$$

Ainsi, la polarisation du second harmonique se décompose sur les axes  $x$  et  $z$ . La non linéarité induite par la surface du diélectrique <sup>[112]</sup> n'est pas prise en compte alors qu'elle existe et qu'elle est du même ordre de grandeur que celle du métal. Nous donnons le champ électrique fondamental sur la figure 6.16-a et le champ électrique au second harmonique sur la figure 6.16-b. La distribution d'intensité relevée pour la fréquence fondamentale montre le faisceau incident et le faisceau réfléchi interférer dans le substrat, alors que pour le second harmonique, il n'y a pas d'interférence puisqu'un seul faisceau existe dans chaque milieu. Ces faisceaux sont issus de la surface et se propagent en descendant dans le substrat et en montant dans l'air.

La remarque la plus importante de ce résultat est la valeur prise par le module du champ au second harmonique. Comparée aux résultats obtenus en bout de pointe métallique, cette valeur est très faible, voire même négligeable. Dans cette configuration, nous pouvons dire que le second harmonique issu d'une surface métallique plane ne perturbe pas celui émit par la pointe métallique décrite ci-dessus.

---

[112] Y. AN & S. CUNDIFF, "Bulk and Surface Contributions to Resonant Second-Harmonic Generation from Si(001) surfaces," Appl. Phys. Lett. **81**, 5174 (2002).

### 6.3. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR UNE SURFACE SÉPARANT DES MILIEUX CENTROSYMÉTRIQUES NON LINÉAIRES

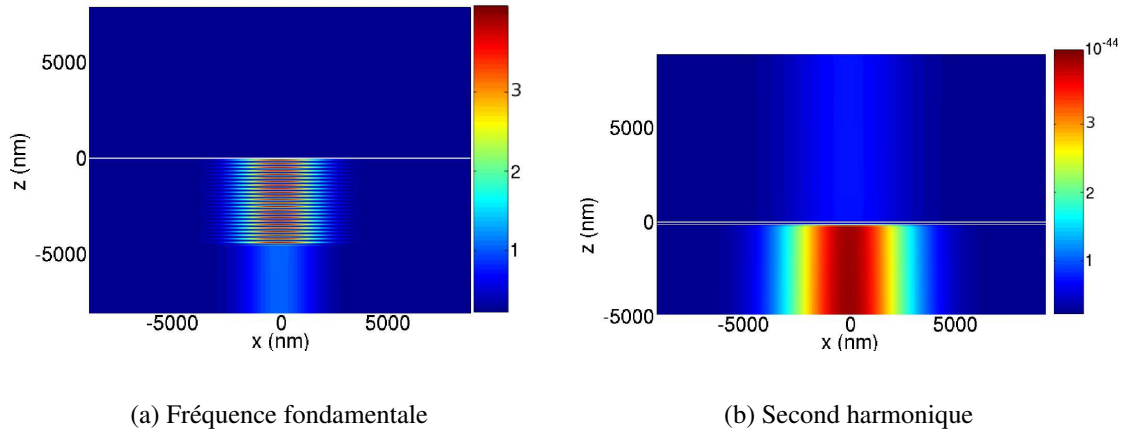


FIG. 6.16: Module carré du champ électrique résultant de la réflexion d'un faisceau gaussien, de longueur d'onde  $\lambda = 830$  nm et de beam waist  $w_0 = 3$   $\mu\text{m}$ , sur une couche d'or d'épaisseur  $e = 60$  nm et de permittivité  $\epsilon_c(\omega) = -29,33 + 2,04i$  et  $\epsilon_c(2\omega) = -1,15 + 6,39i$ . (a) Résultat à la fréquence fondamentale. Les unités sont normalisées par rapport au module carré du champ incident. (b) Résultat au second harmonique. Les unités sont normalisées par rapport au maximum de l'intensité fondamentale obtenue avec une couche de métal.

#### 6.3.3 Génération de second harmonique par un plasmon de surface.

Toutefois, il existe des cas où le champ fondamental est exalté sur une surface plane métallique. C'est le cas pour les configurations où l'on obtient un plasmon de surface qui peuvent à leur tour exalter le second harmonique<sup>[21,22]</sup>. Nous réitérons donc l'expérience précédente afin d'observer le second harmonique généré par un plasmon de surface à la fréquence fondamentale. Pour ce faire, on se place dans la configuration de Kretschmann. En d'autres mots, c'est la configuration proposée ci-dessus pour l'angle d'incidence correspondant au plasmon de surface métal-air. Pour cette expérience, nous changeons de métal en prenant l'argent. Le tenseur non linéaire nous étant inconnu pour ce métal, nous prenons l'ordre de grandeur de celui de l'or. Toutes les données précédentes restent inchangées sauf la permittivité de la couche qui devient  $\epsilon_c(\omega) = -17,6 + 0,67i$  pour la fréquence fondamentale et  $\epsilon_c(2\omega) = -1,13 + 0,45i$ , l'angle d'incidence  $\theta = 42,8^\circ$  et la longueur d'onde  $\lambda = 632,8$  nm. Cette configuration correspond à une expérience réalisée par Seidel et al<sup>[114]</sup> qui a été modélisée au laboratoire pour le plasmon à  $\omega$ .

Nous représentons les résultats sur la figure 6.17 pour la fréquence fondamentale et sur la figure 6.18 pour le second harmonique. Les résultats à la fréquence fondamentale présentent bien un plasmon de surface sur l'interface argent-air qui se propage vers la droite de la figure 6.17-(a). La source de ce plasmon est décalée vers la droite de la figure par rapport à la tache d'incidence se situant dans le substrat ( $z < 0$ ).

- 
- [21] S. BOZHEVILNYI & K. PEDERSEN, "Second Harmonic generation due to surface plasmon localization," *Surface Science* pp. 384–7 (1997).
- [22] A. ZAYATS, I. SMOLYANINOV & C. DAVIS, "Observation of localized plasmonic excitations in thin metal films with near-field secon-harmonic microscopy," *Opt. Com.* **169**, 93–96 (1999).
- [114] J. SEIDEL, S. GRAFSTRM, L. ENG, & L. BISCHOFF, "Surface Plasmon Transmission Across Narrow Grooves in Thin Silver Films," *Appl. Phys. Lett.* **82**, 1368 (2003).

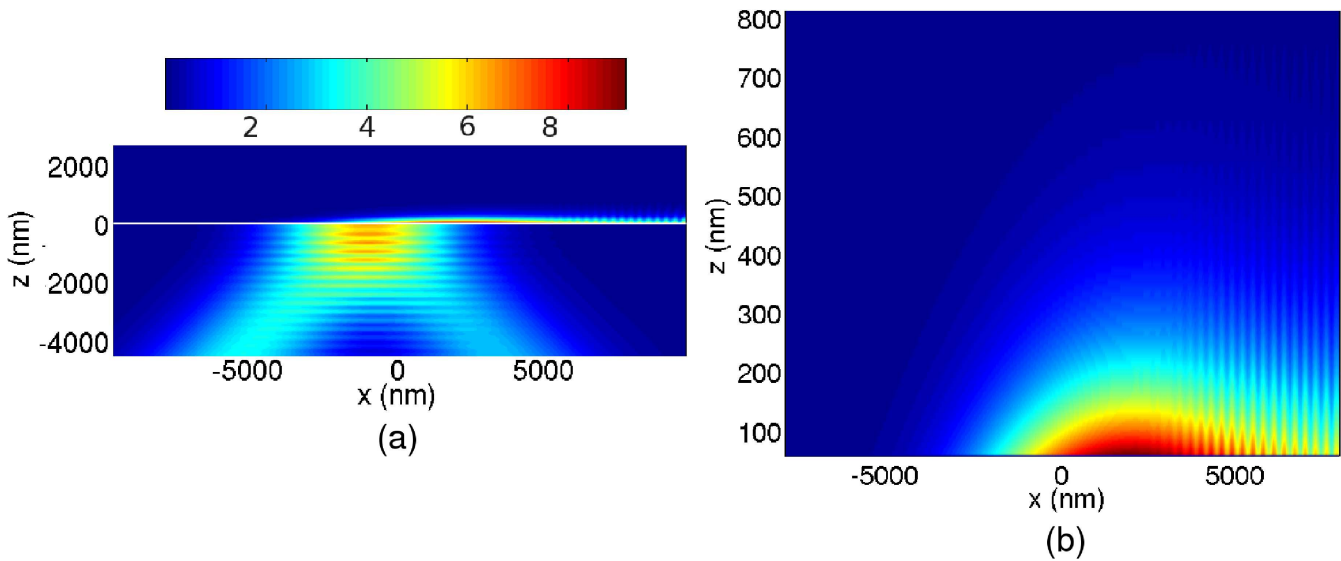


FIG. 6.17: Module carré du champ à la fréquence fondamentale ( $\lambda = 632,8$ ) dans la configuration de Kretschmann. La couche métallique est en argent ( $\epsilon_c(\omega) = -17,6 + 0,67i$ ). Elle se situe en  $z = 0$ . L'angle d'incidence est  $\theta = 42,81^\circ$ . L'épaisseur de la couche est  $e = 60$  nm et sa largeur  $l = 20$   $\mu\text{m}$ . Les unités sont normalisées par rapport à l'intensité du faisceau incident. (a) Vue d'ensemble permettant d'apprécier les faisceaux incident et réfléchi dans le substrat ( $z < 0$ ) ainsi que le plasmon de surface dans l'air ( $z > 0$ ). (b) Zoom de la figure (a) sur le plasmon de surface.

Cette tache présente les interférences entre le faisceau incident et le faisceau réfléchi. Nous pouvons aussi remarquer les interférences sur la ligne de propagation du plasmon sur la figure 6.17-(b). Ces interférences sont dues à la réflexion du plasmon sur le bord de la couche métallique.

Cependant, l'intérêt principal de ce résultat se situe dans le confinement du champ à la fréquence fondamentale près de la surface métal-air, ainsi que l'exaltation d'un facteur 10 du module carré du champ dans cette région.

Sur la figure 6.18-(a), un faisceau propagatif à la fréquence du second harmonique est généré dans le milieu d'incidence, alors que c'est un champ évanescent qui est généré dans le milieu de transmission (figure 6.18-(b)) comme à la fréquence fondamentale. Dans le substrat, le faisceau est issu de la zone d'incidence du faisceau fondamental et il a une enveloppe gaussienne similaire à celle du faisceau incident. Son angle de propagation par rapport à la normale de la surface est le même que pour l'onde fondamentale. Le champ dans l'air (figure 6.18-(b)) est d'avantage confiné au niveau de la surface que le plasmon de la figure 6.17-(b). Son enveloppe est très similaire à celle du champ fondamental. Pour vérifier que le champ au SH à l'interface métal air est aussi un plasmon de surface, nous avons tout d'abord calculé la distance d'atténuation théorique d'un plasmon de surface au SH à l'interface métal air<sup>[2]</sup>. Nous trouvons la distance de d'atténuation suivante pour le plasmon de surface correspondant,  $L_a = 3.23$   $\mu\text{m}$ . Ensuite, nous avons mesuré la distance d'atténuation  $L_n$  grâce au résultat numérique de la figure 6.18 et nous trouvons  $L_n = 3.16$   $\mu\text{m}$ . En comparant les deux résultats, nous pouvons dire que le champ à l'interface métal air de la figure 6.18-(b) est bien un plasmon de surface au SH.

[2] D. COURJON, *Near-Field Microscopy and Near-Field Optics* (World Scientific Pub Co Inc, 2003).

### 6.3. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR UNE SURFACE SÉPARANT DES MILIEUX CENTROSYMÉTRIQUES NON LINÉAIRES

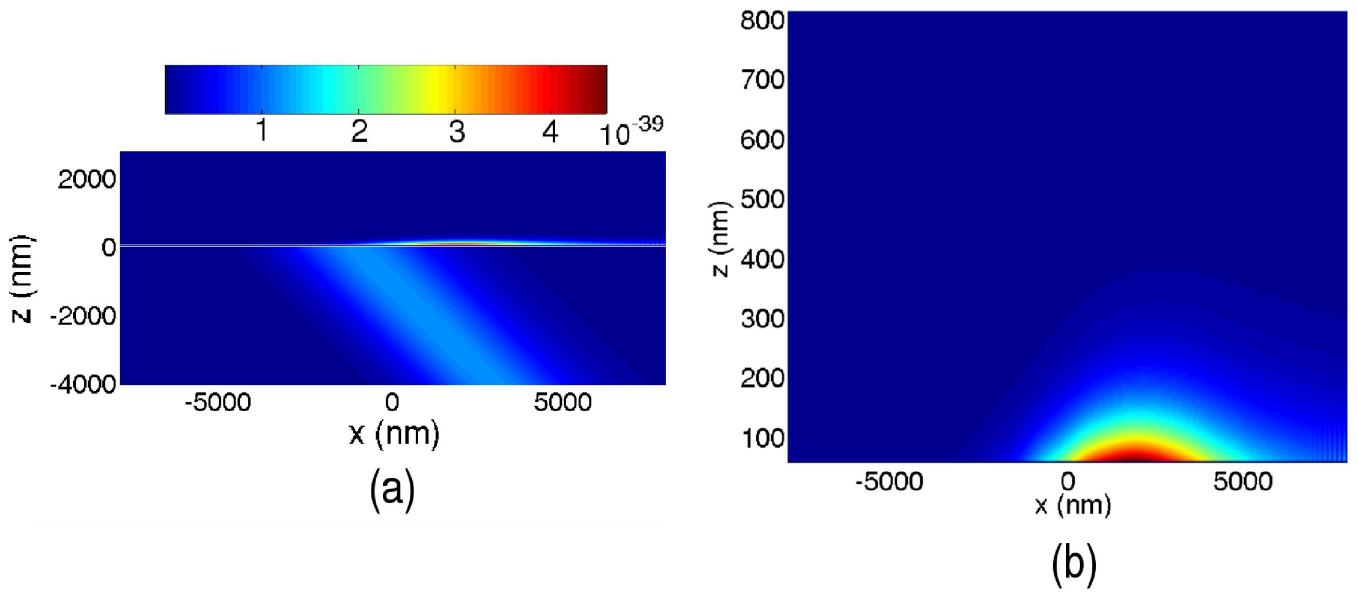


FIG. 6.18: Module carré du champ au second harmonique dans la configuration de Kretschmann. La couche métallique est en argent ( $\epsilon_c(2\omega) = -1,13 + 0,45i$ ). Elle se situe en  $z = 0$ . L'épaisseur de la couche est  $e = 60$  nm et sa largeur de  $l = 20$   $\mu\text{m}$ . Les unités sont normalisées par rapport au maximum de l'intensité fondamentale avec la couche métallique. (a) Vue d'ensemble. (b) Zoom de la figure (a) sur le milieu de transmission ( $z > 0$ ) au niveau de la surface.

La marche créée par la fin de la couche métallique génère le même phénomène d'interférence à droite de l'image de second harmonique (figure 6.18-(b)). Quoiqu'il en soit, les valeurs atteintes pour le second harmonique dans la configuration de Kretschmann avec un plasmon métal-air sont encore négligeables devant celles obtenues grâce à une pointe métallique qui aurait été introduite dans le système.

Ces résultats sont obtenus sans tenir compte des composantes tangentielles du champ électrique fondamental dans la génération de second harmonique. Si on introduit ces composantes en prenant la même symétrie de surface que précédemment (c.à.d.  $C_{3v}$ ), les résultats obtenus dans ce cas sont donnés sur la figure 6.19. Dans ce cas, nous retrouvons la même distribution d'intensité que sur la figure 6.18-(a) et (b). Cependant, les valeurs atteintes par le second harmonique sont cent fois plus élevées que pour l'approximation sans les composantes tangentielles. Pour les surfaces planes, l'approximation énoncée dans l'équation (4.45) n'est plus valable et il faut revenir à la théorie plus générale du chapitre 3. Ceci complique un peu le terme non linéaire qui devient anisotrope. Dans notre cas cette anisotropie ne change pas le plan de polarisation du second harmonique qui reste dans le plan principal, mais il se peut que pour d'autres classes de symétrie de la surface la polarisation sorte de ce plan.

Il faut encore comparer ce résultat à celui trouvé pour une sonde de microscope optique en champ proche métallique pour s'apercevoir que le second harmonique généré par une surface métallique reste négligeable devant celui d'une pointe et ce, même en considérant les composantes tangentielles du champ fondamental.



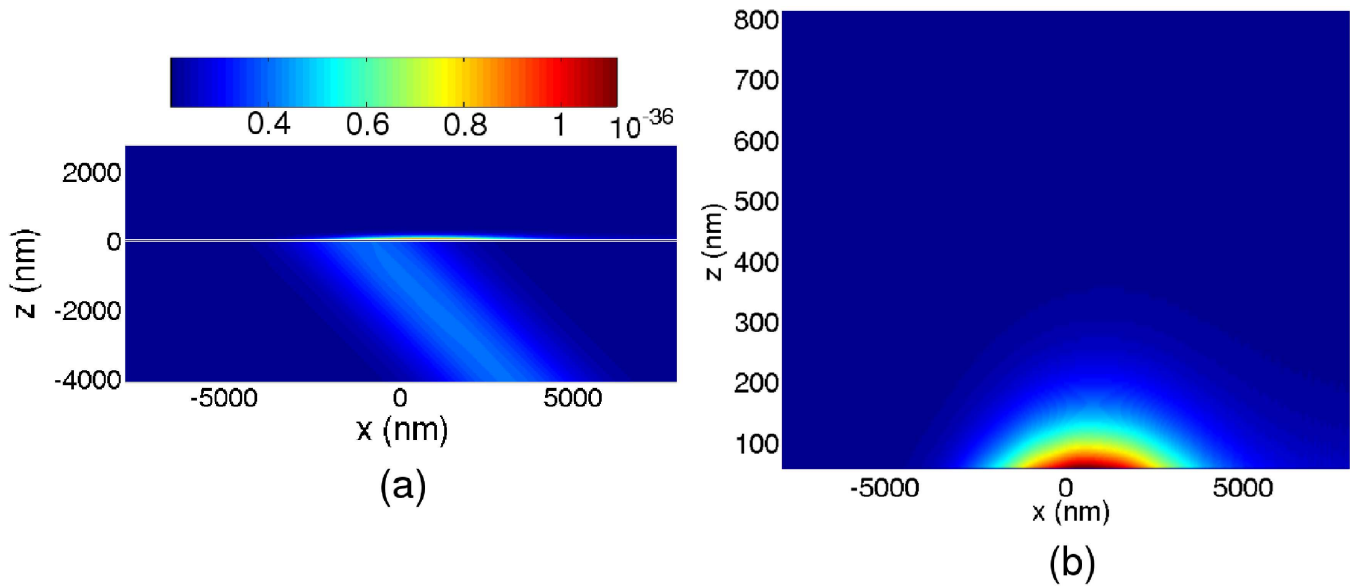


FIG. 6.19: Module carré du champ au second harmonique dans la configuration de Kretschmann en tenant compte des composantes tangentielles du champ fondamental dans la génération de second harmonique. La couche métallique est en argent ( $\epsilon_c(2\omega) = -1,13 + 0,45i$ ). Elle se situe en  $z = 0$ . L'épaisseur de la couche est  $e = 60$  nm et sa largeur  $l = 20$   $\mu\text{m}$ . Les unités sont normalisées par rapport au maximum de l'intensité fondamentale avec la couche métallique. (a) Vue d'ensemble. (b) Zoom de la figure (a) sur le milieu de transmission ( $z > 0$ ) au niveau de la surface.

### 6.3.4 Génération de second harmonique par un défaut de surface.

Nous reprenons la même expérience que dans le paragraphe précédent, mais nous enlevons la surface métallique partout sauf sur une bande centrale de largeur  $l = 60$  nm et d'épaisseur  $e = 60$  nm. Ainsi, nous avons créé une singularité localisée au niveau de la surface et nous espérons exalter la génération de second harmonique à cet endroit.

Cette expérience est représentée sur la figure 6.20. L'objet est donc éclairé par une onde évanescente car l'angle d'incidence est supérieur à l'angle de réflexion totale pour l'interface considérée.

Les résultats obtenus sans tenir compte des composantes tangentielles du champ fondamental et les prenant en compte sont identiques et sont représentés sur la figure 6.21. Ceci veut dire que dans le cas de notre objet fortement diffractant, le mécanisme décrit dans l'équation (4.45) est prédominant. Le résultat montre, à la fréquence fondamentale (figure 6.21-a), une exaltation d'un facteur dix du module carré du champ diffracté par rapport à celui du champ incident. Ceci est à relier au module du second harmonique (figure 6.21-b) qui est du même ordre de grandeur que celui du résultat avec une excitation par un plasmon de surface tenant compte des composantes tangentielles du champ fondamental dans la génération de second harmonique (figure 6.19). Ceci veut dire que la contribution des composantes normales dans la génération de second harmonique est largement exaltée par la présence de singularité au niveau de la surface.

Pour les deux harmoniques, le champ est très confiné autour de l'objet. Pour la fréquence fondamentale, la figure 6.21-a montre un phénomène d'interférence sur la gauche de l'objet. Cet effet provient de la rencontre de l'onde évanescente incidente et de celle réfléchi sur l'objet. Ces figures d'interférences sont

### 6.3. GÉNÉRATION DE SECOND HARMONIQUE POUR UNE SURFACE SÉPARANT DES MILIEUX CENTROSYMÉTRIQUES NON LINÉAIRES

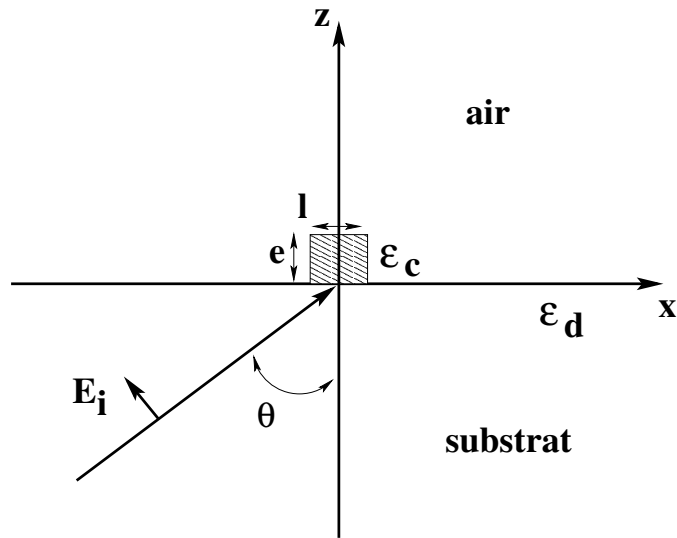


FIG. 6.20: schéma représentant l'expérience de génération de second harmonique par un défaut métallique posé sur une surface plane diélectrique. L'onde incidente  $E_i$  est un faisceau gaussien polarisé (TM) de longueur d'onde  $\lambda$ . Cette onde se propage depuis un diélectrique de permittivité  $\epsilon_d$  sur une couche mince de matériau centrosymétrique de permittivité  $\epsilon_c$ . Cette couche est d'épaisseur  $e$  et de largeur  $l$ .

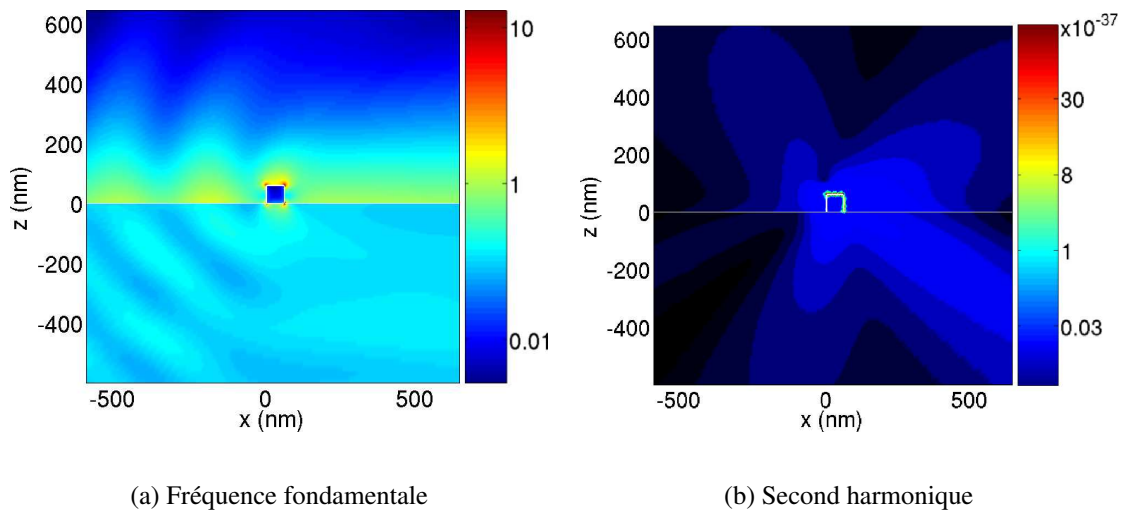


FIG. 6.21: Module carré du champ au second harmonique obtenu par diffraction sur une fine bande métallique en argent ( $\epsilon_c(2\omega) = -1,13 + 0,45i$ ). Elle se situe en  $z = 0$ . L'épaisseur de la couche est  $e = 60$  nm et sa largeur  $l = 60$  nm. La longueur d'onde, l'angle d'incidence et beam waist sont identiques aux expériences précédentes. (a) les unités sont normalisées par rapport au faisceau incident. (b) les unités sont normalisées par rapport au maximum du champ diffracté à la fréquence fondamentale.

absentes du résultat à la fréquence du second harmonique. La figure de diffraction de cet harmonique présente plutôt un figure de rayonnement avec au moins cinq lobes distincts.

Encore une fois, le résultat qui nous intéresse le plus est la valeur atteinte par le module du second harmonique. Cette valeur est la plus grande obtenue dans cette section et confirme donc le fait que les objets fortement diffractants sont des sources intéressantes pour la génération de second harmonique dans les matériaux centrosymétriques<sup>[115]</sup>.

Cette valeur reste une fois de plus très inférieure au résultat trouvé pour une pointe métallique. Ceci implique dans notre modèle que les effets non linéaires d'une pointe métallique sont perturbés uniquement par la présence physique d'un objet et non par la génération de second harmonique induite par l'objet. Cette conclusion s'applique aux pointes métalliques et en aucun cas nous pouvons étendre ceci au cas des pointes diélectriques. Au contraire, le résultat énoncé dans la figure 6.14 montre un facteur d'exaltation pour la pointe diélectrique équivalent à celui de l'objet métallique de la figure 6.21-a. Si les phénomènes non linéaires correspondants sont de même nature, il n'y a aucune raison pour que les intensités du second harmonique ne soient pas du même ordre de grandeur entre une pointe diélectrique et un objet métallique.

## 6.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exposé les résultats obtenus concernant la génération de second harmonique dans les matériaux centrosymétriques. Dans un premier temps, l'étude des pointes utilisées en microscopie optique en champ proche a montré que les sondes métalliques ont un meilleur facteur d'exaltation de champ fondamental à leur extrémité que les pointes diélectriques. Par extension, nous pouvons conclure que la génération de second harmonique est plus intense sur les pointes métalliques que sur celles faites avec des diélectriques. En ce qui concerne le confinement de champ en bout de pointe métallique, les résultats montrent que le second harmonique décroît plus rapidement que le champ fondamental en s'éloignant de la pointe et ce, dans toutes les directions. Malgré sa faible intensité (négligeable par rapport à celle des matériaux non centrosymétriques dans des configurations géométriques classiques), le second harmonique généré en bout de pointe métallique s'avère être une source secondaire très localisée qui peut trouver nombres d'applications en microscopie optique en champ proche ou en nano-optique.

Ces résultats sur les pointes ont suscité notre intérêt pour l'étude de la génération de second harmonique par des objets susceptibles d'être mis en interaction avec notre pointe. Ainsi, nous avons pu comparer les intensités obtenues est montrer que la source de second harmonique de la pointe n'était pas perturbée par celles de l'objet étudié et ce, quelque soit le profil de l'échantillon pourvu que celui ci soit centrosymétrique. Cependant, cette conclusion ne s'applique qu'aux pointes métalliques. Pour ce qui est des pointes diélectriques non métallisées, les sources non linéaires générées en bout de sonde et sur l'objet sont du même ordre de grandeur.

---

[115] A. ZAYATS, T. KALKBRENNER, V. SANDOGHDAR & J.MLYNEK, "Second harmonic generation from individual surface defects under local excitation," *Phys. Rev. B* **61**, 4545–8 (2000).

Dans ce chapitre, une dernière question a attiré notre attention : la contribution des composantes tangentielles du champ fondamental à la surface de l'objet étudié dans la génération de second harmonique pour les matériaux centrosymétriques. Le résultat obtenu montre que pour des objets très diffractants (objet de dimensions largement inférieures à la longueur d'onde) seules les composantes normales du champ fondamental sont nécessaires pour modéliser la génération de second harmonique dans les matériaux centrosymétriques. Les composantes tangentielles dominent le phénomène lorsque les objets sont peu diffractants et à la limite pour les surfaces planes. Nous n'avons pas cherché la limite de la taille des rugosités pour laquelle cette conclusion n'est plus valide

Cependant, plusieurs études en cours dans la suite de ce travail de thèse confortent ces conclusions. En effet, que ce soit des nanocapsules métalliques distribuées de façon aléatoire sur une surface diélectrique ou des réseaux métalliques, les résultats montrent que si l'objet est de taille très inférieure à la longueur d'onde, les composantes tangentielles du champ fondamental n'influent pas sur la génération de second harmonique.

# CONCLUSION GÉNÉRALE

---

---

Ce travail de thèse contribue à l'étude de la génération de second harmonique optique dans le domaine champ proche et ce, pour différents types de matériaux. En fait, les matériaux étudiés ont été séparés en deux classes : les matériaux centrosymétriques et les matériaux non centrosymétriques. Ce choix est dû à la différence entre les sources non linéaires générant le second harmonique dans ces deux types de matériaux.

Dans les matériaux non centrosymétriques (sections 3.2 et 3.4.2), les sources non linéaires ont une origine dipolaire électrique, elles ont un caractère local. Ceci se traduit par une génération de second harmonique possible dans tout le volume du matériau non centrosymétrique. Le second harmonique est alors relié au champ fondamental par une forme quadratique donnée dans l'équation (3.12) qui dépend d'un tenseur de susceptibilité non linéaire  $\chi(2\omega)$ . Dans les matériaux centrosymétriques (sections 3.3 et 3.4.1), la contribution dipolaire devient nulle de part l'existence du centre d'inversion. Les sources non linéaires générant le second harmonique sont dues aux contributions négligées dans les matériaux non centrosymétriques, à savoir, les contributions quadripolaires électriques et dipolaires magnétiques. Cependant, ces effets ne génèrent aucun courant propagatif dans le volume d'un matériau centrosymétrique. Seule la présence d'une surface permet de générer un phénomène cohérent (propagatif) à la fréquence du second harmonique. La présence d'une surface ne rend pas seulement propagatif l'effet dû aux contributions quadripolaires électriques et dipolaires magnétiques, mais elle permet aussi la contribution dipolaire électrique confinée au niveau de la surface d'un matériau centrosymétrique grâce à la brisure de symétrie. En d'autres termes, la génération de second harmonique dans les matériaux centrosymétriques est uniquement possible grâce à la présence d'une surface. La dépendance de cet effet non linéaire engendré par la surface est donné dans le tableau 3.2 en fonction du champ fondamental.

Ce travail a été effectué en posant quelques restrictions. Pour commencer, les sources non linéaires dépendent uniquement du champ électrique fondamental. Les effets non linéaires magnétiques sont donc négligés. Ensuite, ces sources non linéaires sont considérées comme une réponse instantanée du milieu à l'excitation électromagnétique. C'est-à-dire que la dispersion en longueur d'onde de la susceptibilité non linéaire est négligée. Enfin, dans un domaine plus spécifique, les effets dipolaires dus à la surface sont prédominants pour la génération de second harmonique dans les matériaux centrosymétriques. Autrement dit, la contribution des effets quadripolaires électriques et dipolaires magnétiques est négligée dans la génération de second harmonique pour les matériaux centrosymétriques. Le second harmonique est relié au champ électrique fondamental de façon quadratique et dépend, comme pour les milieux non centrosymétriques, d'un tenseur de susceptibilité non linéaire appelé susceptibilité non linéaire de surface :  $\chi^s(2\omega)$ . Ces sources non linéaires sont alors introduites dans les équations de Maxwell en négligeant les non linéarités dont les fréquences sont différentes de celles du second harmonique. Ces sources se présentent donc sous la forme du vecteur polarisation non linéaire  $\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega)$ . Une autre hypothèse est alors posée : l'intensité du second harmonique reste très faible devant celle du champ fondamental. Cette hypothèse permet de résoudre séparément les équations de Maxwell pour le champ à la fréquence fondamentale et pour le second harmonique.

Dans ce travail de thèse, nous avons développé deux méthodes de calcul permettant de résoudre les équations de Maxwell avec des termes non linéaires. Ces deux méthodes sont basées sur deux principes différents, ce qui a permis de confronter leurs résultats. Dans l'ordre chronologique, la première méthode développée est la méthode de Rayleigh perturbative. Cette méthode résout les équations de Maxwell dans l'espace de Fourier. Nous avons développé deux approches de cette méthode : une approche modale qui consiste à rechercher les modes propres de la matrice de propagation (section 4.2.1) et une autre qui est basée sur la résolution directe des différentes composantes de polarisation du champ électrique (4.2.2). La première approche de cette méthode permet un calcul efficace sur des systèmes multicouches rugueux non linéaires, mais il n'est pas possible de fournir une résolution analytique. La deuxième approche quant à elle permet, ce calcul analytique mais devient vite fastidieuse pour des systèmes multicouches. En général, la méthode de Rayleigh est appliquée sur des systèmes périodiques dont les rugosités sont très faibles devant la longueur d'onde (aux longueurs d'onde optique, cette hauteur est au maximum de quelques dizaines de nanomètres). Même si ces restrictions peuvent quelquefois être dépassées, la méthode de Rayleigh ne permet pas de modéliser des géométries à forte amplitude (aux longueurs d'onde optique, structures de quelques centaines de nanomètres ou plus, comme les pointes).

Un programme fondé sur la méthode des différences finies dans le domaine temporelle (FDTD) a été développé au laboratoire et permet de pallier au problème énoncé au niveau de la méthode perturbative, en modélisant n'importe quels types de géométrie. Cette méthode utilise les équations de Maxwell dans l'espace direct. L'espace et le temps sont discrétisés. Les équations de Maxwell en rotationnel sont remplacées par les différences finies. L'algorithme de Yee permet une résolution par itération. Cette méthode est très puissante, mais utilise beaucoup de mémoire et le calcul dure beaucoup plus longtemps que pour la méthode perturbative. C'est pourquoi des astuces de programmation sont nécessaires pour réduire ce temps de calcul, comme le maillage adaptatif qui resserre le maillage uniquement aux endroits qui le nécessite. Une autre astuce de programmation consiste à diminuer la taille de la fenêtre de calcul en mettant des conditions sur ces bords pour simuler leurs absences. Ces conditions utilisées aux laboratoires sont les méthodes de Mur à l'ordre deux et la PML (perfectly matched layers).

Ces deux méthodes ont été appliquées dans les matériaux non centrosymétriques, afin de calculer le second harmonique. Les résultats obtenus ont tout d'abord été confrontés entre eux dans une géométrie particulière (5.2), ce qui a permis de valider nos méthodes pour ce cas.

Cette étude permet aussi de montrer que le second harmonique est plus confiné au niveau de la surface étudiée que le champ fondamental. Ce qui laisse envisager des améliorations de résolution pour la microscopie en champ proche. Ensuite, les deux méthodes ont été appliquées à des expériences comportant une configuration plus complexes qui ont déjà fait l'objet de publication (5.3). Nous avons ainsi validé les résultats obtenus au second harmonique par nos méthodes sur des matériaux non centrosymétriques dans des configurations quelconques grâce aux résultats des publications antérieures. Cette section nous a permis de mettre en évidence l'influence des sondes utilisées en microscopie en champ proche sur la détection du second harmonique. Nous soulevons aussi le problème de l'interaction entre le second harmonique

---

généralisé par l'échantillon et celui généré par la pointe qui vient perturber le résultat final. Ce problème est discuté dans le dernier chapitre en considérant une pointe faite dans un matériau centrosymétrique. Les résultats obtenus grâce à la FDTD permettent de dire que le champ au second harmonique émis par la pointe (constituée d'un matériau centrosymétrique) ne vient pas perturber celui émis par un échantillon non centrosymétrique. Ce premier résultat ne veut pas dire que le champ de second harmonique émis par la pointe est négligeable dans toutes les circonstances, cela veut juste dire que le second harmonique émis par un matériau centrosymétrique est très nettement inférieur à celui émis par un autre matériau non centrosymétrique. Dans cette partie, nous avons aussi mis en évidence que l'intensité au second harmonique en bout de pointe métallique est proportionnelle à la puissance quatrième de la composante longitudinale à l'axe de la pointe du champ fondamental. L'intensité du second harmonique est directement liée au facteur d'exaltation du champ fondamental en bout de pointe. Une remarque importante est aussi démontrée dans cette section : le champ électrique du second harmonique est nettement plus confiné autour du sommet de la pointe que le champ fondamental. Les intensités restant très faibles, nous avons comparé nos résultats obtenus en bout de pointe métallique au second harmonique avec ceux obtenus sur des surfaces planes ou rugueuses de matériaux centrosymétriques. Ces résultats montrent que l'intensité au second harmonique émise en bout de pointe reste très nettement supérieure à celle émise par un échantillon de matériau centrosymétrique. Ainsi nous pouvons dire que la pointe métallique peut être utilisée comme source secondaire très localisée sur des échantillons centrosymétriques afin d'en étudier leurs profils.

Cette dernière remarque ouvre certaines perspectives à l'utilisation des pointes métalliques combinées avec la génération de second harmonique. Ainsi, un microscope optique en champ proche sans ouverture utilisant la génération de second harmonique a déjà été développé <sup>[100]</sup>, mais beaucoup de travail reste encore à effectuer pour caractériser complètement la réponse non linéaire de la pointe.

D'autres perspectives sont encore au stade de la réflexion et des essais théoriques. Le champ à  $2\omega$  en bout de pointe métallique peut être utilisé comme source secondaire pour exciter localement certaines particules et provoquer, par exemple, de la fluorescence. Plus généralement, l'utilisation de la génération de second harmonique dans l'optique en champ proche permet d'obtenir des confinements de champ importants près des objets étudiés, ce qui, malgré la faiblesse de l'intensité à détecter, devrait permettre d'améliorer la résolution pour la microscopie optique en champ proche ou encore de sélectionner localement certains effets en nano-optique. Par exemple, nous commençons d'étudier les nano-billes métalliques qui sont, au même titre que les pointes, des sources non linéaires secondaires très locales.

Toutefois, les modèles théoriques utilisés ici, bien que donnant des résultats corrects, restent à améliorer. Nous envisageons l'étude théorique de situation où les effets des différentes composantes de  $\chi^s$  puissent être déterminées de façon significative afin de proposer des tests expérimentaux.

Une autre partie non étudiée dans ce travail est la génération de second harmonique sur des matériaux ou des structures magnétiques. Les outils développés ici (Méthode perturbative ou FDTD) devraient per-

---

[100] A. ZAYATS & V. SANDOGHDAR, "Apertureless near-field optical microscopy via local second-harmonic generation," *Journal of Microscopy* **202**, 94–9 (2001).



mettre de traiter ce sujet d'actualité de façon efficace.

Mais le plus gros travail est expérimental. Il consiste à caractériser les tenseurs de susceptibilité non linéaire de surface des matériaux centrosymétriques. Toutes les études laissent ouverte une question fondamentale : quelle est la limite de validité de notre description macroscopique des propriétés optique linéaires ou non linéaires des matériaux. En effet, les modèles utilisés pour l'instant introduisent une couche de surface qui crée cette non linéarité, cette couche ne dépassant pas le nanomètre d'épaisseur. À cette échelle, nous rencontrons des problèmes pour relier les grandeurs macroscopiques (permittivité, perméabilité), définies habituellement pour les volumes de matériaux, et leurs correspondances dans les couches fines voire monoatomiques. Cette discussion est beaucoup plus importante pour les métaux où les effets non locaux interviennent plus tôt.



---

## TROISIÈME PARTIE

---

### **Annexes**

---



# RÉSOLUTION DES ÉQUATIONS DE CONTINUITÉ DANS LA MÉTHODE DE RAYLEIGH PERTURBATIVE

---

## Sommaire

---

A.1	Ordre zéro de perturbation pour le premier harmonique . . . . .	148
A.2	Ordre un de perturbation pour le premier harmonique . . . . .	149
A.3	Ordre zéro de perturbation pour le second harmonique . . . . .	152
A.4	Ordre un de perturbation pour le second harmonique . . . . .	155

---

Nous donnons ici les équations de continuité et les coefficients qui s'y rapportent pour les différents ordres de perturbation de chaque harmonique (voir section 4.2).

## A.1 Ordre zéro de perturbation pour le premier harmonique

### A.1.1 Système d'équations de continuité aux interfaces pour l'ordre zéro de perturbation

Nous notons ci-dessous le système d'équations de continuité pour l'ordre zéro de perturbation à la fréquence du premier harmonique.

– équations dues à la continuité des composantes tangentielles à la surface du champ électrique :

$$E_{(2+)y0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)y0}^{(0)}(\omega) - E_{(1-)y0}^{(0)}(\omega) = E_{(1+)y0}^{(0)}(\omega), \quad (\text{A.1})$$

$$E_{(2+)x0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)x0}^{(0)}(\omega) - E_{(1-)x0}^{(0)}(\omega) = E_{(1+)x0}^{(0)}(\omega), \quad (\text{A.2})$$

$$E_{(2+)y0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)y0}^{(0)}(\omega)e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} = E_{(3+)y0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(3+)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}, \quad (\text{A.3})$$

$$E_{(2+)x0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)x0}^{(0)}(\omega)e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} = E_{(3+)x0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(3+)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}, \quad (\text{A.4})$$

– équations dues à la continuité des composantes tangentielles à la surface du champ magnétique :

$$\begin{aligned} &\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)(E_{(2+)x0}^{(0)}(\omega) - E_{(2-)x0}^{(0)}(\omega)) + \gamma_{(1)}^{(0)}(\omega)E_{(1-)x0}^{(0)}(\omega) = \\ &\gamma_{(1)}^{(0)}(\omega)E_{(1+)x0}^{(0)}(\omega) + \alpha^{(0)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega) - E_{(1+)z0}^{(0)}(\omega) - E_{(1-)z0}^{(0)}(\omega)), \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

$$\begin{aligned} &\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)(E_{(2+)y0}^{(0)}(\omega) - E_{(2-)y0}^{(0)}(\omega)) + \gamma_{(1)}^{(0)}(\omega)E_{(1-)y0}^{(0)}(\omega) = \\ &\gamma_{(1)}^{(0)}(\omega)E_{(1+)y0}^{(0)}(\omega) + \beta^{(0)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega) - E_{(1+)z0}^{(0)}(\omega) - E_{(1-)z0}^{(0)}(\omega)), \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

$$\begin{aligned} &\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)(E_{(2+)x0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(2-)x0}^{(0)}(\omega)e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}) - \gamma_{(3+)}^{(0)}(\omega)E_{(3+)x0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(3+)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} = \\ &\alpha^{(0)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(3+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(3)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}), \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

$$\begin{aligned} &\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)(E_{(2+)y0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(2-)y0}^{(0)}(\omega)e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}) - \gamma_{(3)}^{(0)}(\omega)E_{(3+)y0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(3)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} = \\ &\beta^{(0)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(3+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(3)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}), \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

– équations dues à la continuité des composantes normales à la surface du vecteur déplacement électrique :

$$\varepsilon_{(2)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)) - \varepsilon_{(1)}E_{(1-)z0}^{(0)}(\omega) = \varepsilon_{(1)}(\omega)E_{(1+)z0}^{(0)}(\omega), \quad (\text{A.9})$$

$$\varepsilon_{(2)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}) = \varepsilon_{(3)}(\omega)E_{(3+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(3)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}, \quad (\text{A.10})$$

– équations dues à l'équation de Maxwell-Gauss :

$$\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) - E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)) + \gamma_{(1)}^{(0)}(\omega)E_{(1-)z0}^{(0)}(\omega) = \gamma_{(1)}^{(0)}(\omega)E_{(1+)z0}^{(0)}(\omega) \quad (\text{A.11})$$

$$\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)0z^2} - E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)0z^2}) = \gamma_{(3)}^{(0)}(\omega)E_{(3+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(3)}^{(0)}(\omega)0z^2} \quad (\text{A.12})$$

## A.1.2 Grandeurs dans les solutions des équations de continuité de l'ordre zéro de perturbation

Les solutions des équations de continuité à l'ordre zéro de perturbation pour le premier harmonique sont exprimées en fonction de grandeurs dont nous donnons la forme analytique ici :

$$\begin{aligned} deno_z^{(0)} &= (\varepsilon_{(3)}\varepsilon_{(1)}(\gamma_{(2)}^{(0)})^2 - (\varepsilon_{(2)})^2\gamma_{(3)}^{(0)}\gamma_{(1)}^{(0)})\cos(\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}) \\ &+ i(\varepsilon_{(2)}\varepsilon_{(1)}\gamma_{(3)}^{(0)}\gamma_{(2)}^{(0)} - \varepsilon_{(2)}\varepsilon_{(3)}\gamma_{(2)}^{(0)}\gamma_{(1)}^{(0)})\sin(\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}) \end{aligned} \quad (A.13)$$

$$deno^{(0)} = (\gamma_{(1)}^{(0)} - \gamma_{(2)}^{(0)})(\gamma_{(3)}^{(0)} - \gamma_{(2)}^{(0)})e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}} - (\gamma_{(1)}^{(0)} + \gamma_{(2)}^{(0)})(\gamma_{(3)}^{(0)} + \gamma_{(2)}^{(0)})e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}} \quad (A.14)$$

$$A_x^{(0)} = \alpha^{(0)}\left(1 - \frac{\varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(1)}}\right)(E_{Oz}^{(0)2+} + E_{Oz}^{(0)2-}) \quad (A.15)$$

$$A_y^{(0)} = \beta^{(0)}\left(1 - \frac{\varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(1)}}\right)(E_{Oz}^{(0)2+} + E_{Oz}^{(0)2-}) \quad (A.16)$$

$$B_x^{(0)} = \alpha^{(0)}\left(1 - \frac{\varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(3)}}\right)(E_{Oz}^{(0)2+} e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}} + E_{Oz}^{(0)2-} e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}}) \quad (A.17)$$

$$B_y^{(0)} = \beta^{(0)}\left(1 - \frac{\varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(3)}}\right)(E_{Oz}^{(0)2+} e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}} + E_{Oz}^{(0)2-} e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}}) \quad (A.18)$$

## A.2 Ordre un de perturbation pour le premier harmonique

### A.2.1 Système d'équations de continuité aux interfaces pour l'ordre un de perturbation

Les équations de continuité à l'ordre un de perturbation sont données pour un ordre de diffraction  $(p_x, p_y)$ . Toutes les grandeurs correspondant à l'ordre un de perturbation sont écrites pour cette ordre de diffraction, mais nous ne l'explicitons pas dans les équations pour ne pas surcharger les notations.

– équations dues à la continuité des composantes tangentielles à la surface du champ électrique :

$$E_{(2+)y0}^{(1)}(\omega) + E_{(2-)y0}^{(1)}(\omega) - E_{(1-)y0}^{(1)}(\omega) = i\tilde{f}^1\beta^{(1)}(\omega)\left(\frac{\varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(1)}} - 1\right)(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)), \quad (A.19)$$

$$E_{(2+)x0}^{(1)}(\omega) + E_{(2-)x0}^{(1)}(\omega) - E_{(1-)x0}^{(1)}(\omega) = i\tilde{f}^1\alpha^{(1)}(\omega)\left(\frac{\varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(1)}} - 1\right)(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)), \quad (A.20)$$

$$\begin{aligned} E_y^{(1)2+}(\omega)e^{r\gamma_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} + E_y^{(1)2-}(\omega)e^{-r\gamma_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(3+)y0}^{(1)}(\omega)e^{r\gamma_{(3)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} = \\ i\tilde{f}^2\beta^{(1)}(\omega)\left(\frac{\varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(3)}} - 1\right)(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}), \end{aligned} \quad (A.21)$$

$$\begin{aligned} E_x^{(1)2+}(\omega)e^{r\gamma_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} + E_x^{(1)2-}(\omega)e^{-r\gamma_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(3+)x0}^{(1)}(\omega)e^{r\gamma_{(3)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} = \\ i\tilde{f}^2\alpha^{(1)}(\omega)\left(\frac{\varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(3)}} - 1\right)(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}), \end{aligned} \quad (A.22)$$

– équations dues à la continuité des composantes tangentielles à la surface du champ magnétique :

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(1)}(\omega)(E_{(2+)x0}^{(1)}(\omega) - E_x^{(1)2-}(\omega)) + \gamma_{(1)}^{(1)}(\omega)E_{(1-)x0}^{(1)}(\omega) = \\ & \alpha^{(1)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(1)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(1)}(\omega) - E_{(1-)z0}^{(1)}(\omega)) + i\tilde{f}_{(1)}(\varepsilon_{(1)} - \varepsilon_{(2)})\frac{\omega^2}{c^2}(E_{(2+)x0}^{(0)}(\omega) - E_{(2-)x0}^{(0)}(\omega)), \end{aligned} \quad (\text{A.23})$$

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(1)}(\omega)(E_{(2+)y0}^{(1)}(\omega) - E_y^{(1)2-}(\omega)) + \gamma_{(1)}^{(1)}(\omega)E_{(1-)y0}^{(1)}(\omega) = \\ & \beta^{(1)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(1)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(1)}(\omega) - E_{(1-)z0}^{(1)}(\omega)) + i\tilde{f}_{(1)}(\varepsilon_{(1)} - \varepsilon_{(2)})\frac{\omega^2}{c^2}(E_{(2+)y0}^{(0)}(\omega) - E_{(2-)y0}^{(0)}(\omega)), \end{aligned} \quad (\text{A.24})$$

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(1)}(\omega)(E_{(2+)x0}^{(1)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(2-)x0}^{(1)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}}) - \gamma_{(3)}^{(1)}(\omega)E_{(3+)x0}^{(1)}(\omega)e^{r_{(3)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} = \\ & \alpha^{(1)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(1)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(1)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(3+)z0}^{(1)}(\omega)e^{r_{(3)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}) + \\ & i\tilde{f}_{(1)}(\varepsilon_{(3)} - \varepsilon_{(2)})\frac{\omega^2}{c^2}(E_{(2+)x0}^{(0)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(2-)x0}^{(0)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}), \end{aligned} \quad (\text{A.25})$$

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(1)}(\omega)(E_{(2+)y0}^{(1)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(2-)y0}^{(1)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}}) - \gamma_{(3)}^{(1)}(\omega)E_{(3+)y0}^{(1)}(\omega)e^{r_{(3)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} = \\ & \beta^{(1)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(1)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(1)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(3+)z0}^{(1)}(\omega)e^{r_{(3)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}) + \\ & i\tilde{f}_{(1)}(\varepsilon_{(3)} - \varepsilon_{(2)})\frac{\omega^2}{c^2}(E_{(2+)y0}^{(0)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(2-)y0}^{(0)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}), \end{aligned} \quad (\text{A.26})$$

– équations dues à la continuité des composantes normales à la surface du vecteur déplacement électrique :

$$\begin{aligned} & \varepsilon_{(2)}(\omega)\left(E_{(2+)z0}^{(1)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(1)}(\omega)\right) - \varepsilon_{(1)}E_{(1-)z0}^{(1)}(\omega) = \\ & i\tilde{f}_{(1)}(\varepsilon_{(1)} - \varepsilon_{(2)})\left(-\frac{2\pi p_x}{a_x}(E_{(2+)x0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)x0}^{(0)}(\omega)) - \frac{2\pi p_y}{a_y}(E_{(2+)y0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)y0}^{(0)}(\omega)) + \right. \\ & \left. \gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) - E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega))\right), \end{aligned} \quad (\text{A.27})$$

$$\begin{aligned} & \varepsilon_{(2)}(\omega)\left(E_{(2+)z0}^{(1)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(1)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}}\right) - \varepsilon_{(3)}(\omega)E_{(3+)z0}^{(1)}(\omega)e^{r_{(3)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} = \\ & i\tilde{f}_{(2)}(\varepsilon_{(3)} - \varepsilon_{(2)})\left(-\frac{2\pi p_x}{a_x}(E_{(2+)x0}^{(0)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)x0}^{(0)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}) - \right. \\ & \left. \frac{2\pi p_y}{a_y}(E_{(2+)y0}^{(0)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)y0}^{(0)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}) + \right. \\ & \left. \gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}})\right), \end{aligned} \quad (\text{A.28})$$

– équations dues à l'équation de Maxwell-Gauss :

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(1)}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(1)}(\omega) - E_{(2-)z0}^{(1)}(\omega)) + \gamma_{(1)}^{(1)}(\omega)E_{(1-)z0}^{(1)}(\omega) = \\ & i\tilde{f}_{(1)}\left(\frac{\varepsilon_{(1)} - \varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(1)}}\right)(\alpha^{(1)}(\omega) + \beta^{(1)}(\omega))(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)), \end{aligned} \quad (\text{A.29})$$

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{2+}(\omega)(E_{(2+)z0}^{(1)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(2-)z0}^{(1)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}}) - \gamma_{(3)}^{(1)}(\omega)E_{(3+)z0}^{(1)}(\omega)e^{r_{(3)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} = \\ & i\tilde{f}_{(2)}\left(\frac{\varepsilon_{(3)} - \varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(1)}}\right)(\alpha^{(1)}(\omega) + \beta^{(1)}(\omega))(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}}) \end{aligned} \quad (\text{A.30})$$



## A.2.2 Grandeurs dans les solutions des équations de continuité de l'ordre un de perturbation

Les coefficients  $A_i^{(1)}$  rencontrés dans le tableau 4.2 sont les seconds membres des équations (A.19 A.30) :

$$A_1^{(1)}(\omega) = \iota \tilde{f}_{(1)} \beta^{(1)}(\omega) \left( \frac{\varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(1)}} - 1 \right) (E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)), \quad (\text{A.31})$$

$$A_2^{(1)}(\omega) = \iota \tilde{f}_{(1)} \alpha^{(1)}(\omega) \left( \frac{\varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(1)}} - 1 \right) (E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)), \quad (\text{A.32})$$

$$A_3^{(1)}(\omega) = \iota \tilde{f}_{(2)} \beta^{(1)}(\omega) \left( \frac{\varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(3)}} - 1 \right) (E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}), \quad (\text{A.33})$$

$$A_4^{(1)}(\omega) = \iota \tilde{f}_{(2)} \alpha^{(1)}(\omega) \left( \frac{\varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(3)}} - 1 \right) (E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}), \quad (\text{A.34})$$

$$A_5^{(1)}(\omega) = \alpha^{(1)}(\omega) (E_{(2+)z0}^{(1)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(1)}(\omega) - E_{(1-)z0}^{(1)}(\omega)) + \iota \tilde{f}_{(1)} (\varepsilon_{(1)} - \varepsilon_{(2)}) \frac{\omega^2}{c^2} (E_{(2+)x0}^{(0)}(\omega) - E_{(2-)x0}^{(0)}(\omega)), \quad (\text{A.35})$$

$$A_6^{(1)}(\omega) = \beta^{(1)}(\omega) (E_{(2+)z0}^{(1)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(1)}(\omega) - E_{(1-)z0}^{(1)}(\omega)) + \iota \tilde{f}_{(1)} (\varepsilon_{(1)} - \varepsilon_{(2)}) \frac{\omega^2}{c^2} (E_{(2+)y0}^{(0)}(\omega) - E_{(2-)y0}^{(0)}(\omega)), \quad (\text{A.36})$$

$$A_7^{(1)}(\omega) = \alpha^{(1)}(\omega) (E_{(2+)z0}^{(1)}(\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(1)}(\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(3+)z0}^{(1)}(\omega) e^{r_{(3)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}) + \iota \tilde{f}_{(1)} (\varepsilon_{(3)} - \varepsilon_{(2)}) \frac{\omega^2}{c^2} (E_{(2+)x0}^{(0)}(\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(2-)x0}^{(0)}(\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}), \quad (\text{A.37})$$

$$A_8^{(1)}(\omega) = \beta^{(1)}(\omega) (E_{(2+)z0}^{(1)}(\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(1)}(\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(3+)z0}^{(1)}(\omega) e^{r_{(3)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}) + \iota \tilde{f}_{(1)} (\varepsilon_{(3)} - \varepsilon_{(2)}) \frac{\omega^2}{c^2} (E_{(2+)y0}^{(0)}(\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} - E_{(2-)y0}^{(0)}(\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}), \quad (\text{A.38})$$

$$A_9^{(1)}(\omega) = \iota \tilde{f}_{(1)} (\varepsilon_{(1)} - \varepsilon_{(2)}) \left( -\frac{2\pi p_x}{a_x} (E_{(2+)x0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)x0}^{(0)}(\omega)) - \frac{2\pi p_y}{a_y} (E_{(2+)y0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)y0}^{(0)}(\omega)) + \gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) - E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)) \right), \quad (\text{A.39})$$

$$A_{10}^{(1)}(\omega) = \iota \tilde{f}_{(2)} (\varepsilon_{(3)} - \varepsilon_{(2)}) \left( -\frac{2\pi p_x}{a_x} (E_{(2+)x0}^{(0)}(\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)x0}^{(0)}(\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}) - \frac{2\pi p_y}{a_y} (E_{(2+)y0}^{(0)}(\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)y0}^{(0)}(\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}) + \gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(\omega)z_{(2)}}) \right), \quad (\text{A.40})$$

$$A_{11}^{(1)}(\omega) = i\tilde{f}_{(1)}\left(\frac{\varepsilon_{(1)} - \varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(1)}}\right)(\alpha^{(1)}(\omega) + \beta^{(1)}(\omega))(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)), \quad (\text{A.41})$$

$$A_{12}^{(1)}(\omega) = i\tilde{f}_{(2)}\left(\frac{\varepsilon_{(3)} - \varepsilon_{(2)}}{\varepsilon_{(1)}}\right)(\alpha^{(1)}(\omega) + \beta^{(1)}(\omega))(E_{(2+)z0}^{(0)}(\omega)e^{r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(\omega)e^{-r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}}). \quad (\text{A.42})$$

Dans les grandeurs non explicitées dans le tableau 4.2, il y a aussi les deux dénominateurs :

$$\begin{aligned} deno_z^{(1)}(\omega) &= (\varepsilon_{(2)}(\omega)\gamma_{(1)}^{(1)}(\omega) - \varepsilon_{(1)}(\omega)\gamma_{(2)}^{(1)}(\omega))(\varepsilon_{(3)}(\omega)\gamma_{(2)}^{(1)}(\omega) + \varepsilon_{(2)}(\omega)\gamma_{(3)}^{(1)}(\omega))e^{-r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} + \\ &(\varepsilon_{(2)}(\omega)\gamma_{(1)}^{(1)}(\omega) + \varepsilon_{(1)}(\omega)\gamma_{(2)}^{(1)}(\omega))(\varepsilon_{(3)}(\omega)\gamma_{(2)}^{(1)}(\omega) - \varepsilon_{(2)}(\omega)\gamma_{(3)}^{(1)}(\omega))e^{r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}}, \end{aligned} \quad (\text{A.43})$$

$$\begin{aligned} deno^{(1)}(\omega) &= (\gamma_{(1)}^{(1)}(\omega) - \gamma_{(2)}^{(1)}(\omega))(\gamma_{(2)}^{(1)}(\omega) + \gamma_{(3)}^{(1)}(\omega))e^{-r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}} + \\ &(\gamma_{(1)}^{(1)}(\omega) + \gamma_{(2)}^{(1)}(\omega))(\gamma_{(2)}^{(1)}(\omega) - \gamma_{(3)}^{(1)}(\omega))e^{r_{(2)}^{(1)}(\omega)z_{(2)}}. \end{aligned} \quad (\text{A.44})$$

## A.3 Ordre zéro de perturbation pour le second harmonique

### A.3.1 Système d'équations de continuité aux interfaces pour l'ordre zéro de perturbation

Nous notons ci-dessous le système d'équations de continuité pour l'ordre zéro de perturbation à la fréquence du premier harmonique.

– équations dues à la continuité des composantes tangentielles à la surface du champ électrique :

$$E_{(2+)y0}^{(0)}(2\omega) + E_{(2-)y0}^{(0)}(2\omega) - E_{(1-)y0}^{(0)}(2\omega) = -E_{p0y}^{(0)b}(2\omega), \quad (\text{A.45})$$

$$E_{(2+)x0}^{(0)}(2\omega) + E_{(2-)x0}^{(0)}(2\omega) - E_{(1-)x0}^{(0)}(2\omega) = -E_{p0x}^{(0)b}(2\omega), \quad (\text{A.46})$$

$$E_{(2+)y0}^{(0)}(2\omega)e^{r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)y0}^{(0)}(2\omega)e^{-r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} - E_{(3+)y0}^{(0)}(2\omega)e^{r_{(3)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} = -E_{p0y}^{(0)h}(2\omega)e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta}, \quad (\text{A.47})$$

$$E_{(2+)x0}^{(0)}(2\omega)e^{r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)x0}^{(0)}(2\omega)e^{-r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} - E_{(3+)x0}^{(0)}(2\omega)e^{r_{(3)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} = -E_{p0x}^{(0)h}(2\omega)e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta}, \quad (\text{A.48})$$

– équations dues à la continuité des composantes tangentielles à la surface du champ magnétique :

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) (E_{(2+)x0}^{(0)}(2\omega) - E_{(2-)x0}^{(0)}(2\omega)) + \gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega) E_{(1-)x0}^{(0)}(2\omega) = \\ & - \gamma_{nl}^{(0)}(2\omega) E_{p0x}^{(0)b}(2\omega) + \alpha^{(0)}(2\omega) (E_{(2+)z0}^{(0)}(2\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(2\omega) + E_{p0z}^{(0)b}(2\omega) - E_{(1-)z0}^{(0)}(2\omega)), \end{aligned} \quad (\text{A.49})$$

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) (E_{(2+)y0}^{(0)}(2\omega) - E_{(2-)y0}^{(0)}(2\omega)) + \gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega) E_{(1-)y0}^{(0)}(2\omega) = \\ & - \gamma_{nl}^{(0)}(2\omega) E_{p0y}^{(0)b}(2\omega) + \beta^{(0)}(2\omega) (E_{(2+)z0}^{(0)}(2\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(2\omega) + E_{p0z}^{(0)b}(2\omega) - E_{(1-)z0}^{(0)}(2\omega)), \end{aligned} \quad (\text{A.50})$$

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) (E_{(2+)x0}^{(0)}(2\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} - E_{(2-)x0}^{(0)}(2\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}}) - \gamma_{(3)}^{(0)}(2\omega) E_{(3+)x0}^{(0)}(2\omega) e^{r_{(3)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} = \\ & - \gamma_{nl}^{(0)}(2\omega) E_{p0x}^{(0)h}(2\omega) e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta} + \alpha^{(0)}(2\omega) (E_{(2+)z0}^{(0)}(2\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(2\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} \\ & + E_{p0z}^{(0)h}(2\omega) e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta} - E_{(3+)z0}^{(0)}(2\omega) e^{r_{(3)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}}), \end{aligned} \quad (\text{A.51})$$

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) (E_{(2+)y0}^{(0)}(2\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} - E_{(2-)y0}^{(0)}(2\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}}) - \gamma_{(3)}^{(0)}(2\omega) E_{(3+)y0}^{(0)}(2\omega) e^{r_{(3)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} = \\ & - \gamma_{nl}^{(0)}(2\omega) E_{p0y}^{(0)h}(2\omega) e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta} + \beta^{(0)}(2\omega) (E_{(2+)z0}^{(0)}(2\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(2\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} + \\ & E_{p0z}^{(0)h}(2\omega) e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta} - E_{(3+)z0}^{(0)}(2\omega) e^{r_{(3)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}}), \end{aligned} \quad (\text{A.52})$$

– équations dues à la continuité des composantes normales à la surface du vecteur déplacement électrique :

$$\epsilon_{(2)}(2\omega) (E_{(2+)z0}^{(0)}(2\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(2\omega)) - \epsilon_{(1)} E_{(1-)z0}^{(0)}(2\omega) = -(\epsilon_{(2)}(2\omega) E_{p0z}^{(0)b}(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)b}(2\omega)}{\epsilon_0}), \quad (\text{A.53})$$

$$\begin{aligned} & \epsilon_{(2)}(2\omega) (E_{(2+)z0}^{(0)}(2\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} + E_{(2-)z0}^{(0)}(2\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}}) \\ & - \epsilon_{(3)}(2\omega) E_{(3+)z0}^{(0)}(2\omega) e^{r_{(3)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} = -(\epsilon_{(2)}(2\omega) E_{p0z}^{(0)h}(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)h}(2\omega)}{\epsilon_0}) e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta}, \end{aligned} \quad (\text{A.54})$$

– équations dues à l'équation de Maxwell-Gauss :

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) (E_{(2+)z0}^{(0)}(2\omega) - E_{(2-)z0}^{(0)}(2\omega)) + \gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega) E_{(1-)z0}^{(0)}(2\omega) = \\ & - \gamma_{nl}^{(0)}(2\omega) (E_{p0z}^{(0)h}(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)b}(2\omega)}{\epsilon_0 \epsilon_{(2)}(2\omega)}) - \alpha^{(0)}(2\omega) \frac{\mathbb{P}_{0x}^{nl(0)b}(2\omega)}{\epsilon_0 \epsilon_{(2)}(2\omega)} - \beta^{(0)}(2\omega) \frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl(0)b}(2\omega)}{\epsilon_0 \epsilon_{(2)}(2\omega)} \end{aligned} \quad (\text{A.55})$$

$$\begin{aligned} & \gamma^{2+}(2\omega) E_{(2+)z0}^{(0)}(2\omega) e^{r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} + \gamma^{2-}(2\omega) E_{(2-)z0}^{(0)}(2\omega) e^{-r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} - \gamma_{(3)}^{(0)}(2\omega) E_{(3+)z0}^{(0)}(2\omega) e^{r_{(3)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} = \\ & (-\gamma_{nl}^{(0)}(2\omega) (E_{p0z}^{(0)h}(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)h}(2\omega)}{\epsilon_0 \epsilon_{(2)}(2\omega)}) - \alpha^{(0)}(2\omega) \frac{\mathbb{P}_{0x}^{nl(0)h}(2\omega)}{\epsilon_0 \epsilon_{(2)}(2\omega)} - \beta^{(0)}(2\omega) \frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl(0)h}(2\omega)}{\epsilon_0 \epsilon_{(2)}(2\omega)}) e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta} \end{aligned} \quad (\text{A.56})$$

### A.3.2 Grandeurs dans les solutions des équations de continuité de l'ordre zéro de perturbation

Les coefficients  $A_i^{(0)}$  sont les seconds membres des équations (A.45 A.56), ils remplacent les coefficients du tableau 4.2 :

$$A_1^{(0)}(2\omega) = -E_{p0y}^{(0)b}(2\omega), \quad (\text{A.57})$$

$$A_2^{(0)}(2\omega) = -E_{p0x}^{(0)b}(2\omega), \quad (\text{A.58})$$

$$A_3^{(0)}(2\omega) = -E_{p0y}^{(0)h}(2\omega)e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta}, \quad (\text{A.59})$$

$$A_4^{(0)}(2\omega) = -E_{p0x}^{(0)h}(2\omega)e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta}, \quad (\text{A.60})$$

$$A_5^{(0)}(2\omega) = -\gamma_{nl}^{(0)}(2\omega)E_{p0x}^{(0)b}(2\omega) + \alpha^{(0)}(2\omega)(E_{(2+)z0}^{(0)}(2\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(2\omega) + E_{p0z}^{(0)b}(2\omega) - E_{(1+)z0}^{(0)}(2\omega) - E_{(1-)z0}^{(0)}(2\omega)), \quad (\text{A.61})$$

$$A_6^{(0)}(2\omega) = -\gamma_{nl}^{(0)}(2\omega)E_{p0y}^{(0)b}(2\omega) + \beta^{(0)}(2\omega)(E_{(2+)z0}^{(0)}(2\omega) + E_{(2-)z0}^{(0)}(2\omega) + E_{p0z}^{(0)b}(2\omega) - E_{(1+)z0}^{(0)}(2\omega) - E_{(1-)z0}^{(0)}(2\omega)), \quad (\text{A.62})$$

$$A_7^{(0)}(2\omega) = -\gamma_{nl}^{(0)}(2\omega)E_{p0x}^{(0)h}(2\omega)e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta} + \alpha^{(0)}(2\omega)(E_{(2+)z0}^{(0)}(2\omega)e^{r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z(2)} + E_{(2-)z0}^{(0)}(2\omega)e^{-r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z(2)} + E_{p0z}^{(0)h}(2\omega)e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta} - E_{(3+)z0}^{(0)}(2\omega)e^{r_{(3)}^{(0)}(2\omega)z(2)}), \quad (\text{A.63})$$

$$A_8^{(0)}(2\omega) = -\gamma_{nl}^{(0)}(2\omega)E_{p0y}^{(0)h}(2\omega)e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta} + \beta^{(0)}(2\omega)(E_{(2+)z0}^{(0)}(2\omega)e^{r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z(2)} + E_{(2-)z0}^{(0)}(2\omega)e^{-r_{(2)}^{(0)}(2\omega)z(2)} + E_{p0z}^{(0)h}(2\omega)e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta} - E_{(3+)z0}^{(0)}(2\omega)e^{r_{(3)}^{(0)}(2\omega)z(2)}), \quad (\text{A.64})$$

$$A_9^{(0)}(2\omega) = -(\epsilon_{(2)}(2\omega)E_{p0z}^{(0)b}(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)b}(2\omega)}{\epsilon_0}), \quad (\text{A.65})$$

$$A_{10}^{(0)}(2\omega) = -(\epsilon_{(2)}(2\omega)E_{p0z}^{(0)h}(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)h}(2\omega)}{\epsilon_0})e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta}, \quad (\text{A.66})$$

$$A_{11}^{(0)}(2\omega) = -\gamma_{nl}^{(0)}(2\omega)(E_{p0z}^{(0)h}(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)h}(2\omega)}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}(2\omega)}) - \alpha^{(0)}(2\omega)\frac{\mathbb{P}_{0x}^{nl(0)b}(2\omega)}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}(2\omega)} - \beta^{(0)}(2\omega)\frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl(0)b}(2\omega)}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}(2\omega)}, \quad (\text{A.67})$$

$$A_{12}^{(0)}(2\omega) = (-\gamma_{nl}^{(0)}(2\omega)(E_{p0z}^{(0)h}(2\omega) + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)h}(2\omega)}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}(2\omega)}) - \alpha^{(0)}(2\omega)\frac{\mathbb{P}_{0x}^{nl(0)h}(2\omega)}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}(2\omega)} - \beta^{(0)}(2\omega)\frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl(0)h}(2\omega)}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}(2\omega)})e^{r_{nl}^{(0)}(2\omega)\delta}. \quad (\text{A.68})$$

Il y a aussi les deux dénominateurs qui remplacent ceux du tableau 4.2 :

$$\begin{aligned} deno_z^{(0)}(2\omega) &= (\varepsilon_{(2)}(2\omega)\gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega) - \varepsilon_{(1)}(2\omega)\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega))(\varepsilon_{(3)}(2\omega)\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) + \varepsilon_{(2)}(2\omega)\gamma_{(3)}^{(0)}(2\omega))e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} + \\ &(\varepsilon_{(2)}(2\omega)\gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega) + \varepsilon_{(1)}(2\omega)\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega))(\varepsilon_{(3)}(2\omega)\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) - \varepsilon_{(2)}(2\omega)\gamma_{(3)}^{(0)}(2\omega))e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}}, \end{aligned} \quad (\text{A.69})$$

$$\begin{aligned} deno^{(0)}(2\omega) &= (\gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega) - \gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega))(\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) + \gamma_{(3)}^{(0)}(2\omega))e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}} + \\ &(\gamma_{(1)}^{(0)}(2\omega) + \gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega))(\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega) - \gamma_{(3)}^{(0)}(2\omega))e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}(2\omega)z_{(2)}}. \end{aligned} \quad (\text{A.70})$$

## A.4 Ordre un de perturbation pour le second harmonique

### A.4.1 Système d'équation de continuité aux interfaces pour l'ordre un de perturbation

Les équations de continuité à l'ordre un de perturbation sont données pour un ordre de diffraction  $(p_x, p_y)$ . Toutes les grandeurs correspondant à l'ordre un de perturbation sont écrites pour cet ordre de diffraction, mais nous ne l'explicitons pas dans les équations pour ne pas surcharger les notations. Nous avons aussi omis la dépendance en fréquence pour la même raison, toutes les grandeurs sont à la fréquence du second harmonique.

– équations dues à la continuité des composantes tangentielles à la surface du champ électrique :

$$\begin{aligned} E_{(2+)y0}^{(1)} + E_{(2-)y0}^{(1)} - E_{(1-)y0}^{(1)} &= -E_{p0y}^{(1)b} + i\tilde{f}_{(1)} \left( \frac{2\pi p_y}{a_y} (E_{(1-)z0}^{(1)} - E_{(2+)z0}^{(0)} - E_{(2-)z0}^{(0)} \right. \\ &\left. - E_{p0z}^{(0)h} - \gamma_{(1)}^{(0)} E_{(1-)y0}^{(1)} - \gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+)y0}^{(1)} - E_{(2-)y0}^{(1)}) - \gamma_{nl}^{(0)} E_{p0y}^{(1)b} \right), \end{aligned} \quad (\text{A.71})$$

$$\begin{aligned} E_{(2+)x0}^{(1)} + E_{(2-)x0}^{(1)} - E_{(1-)x0}^{(1)} &= -E_{p0x}^{(1)b} + i\tilde{f}_{(1)} \left( \frac{2\pi p_x}{a_x} (E_{(1-)z0}^{(1)} - E_{(2+)z0}^{(0)} - E_{(2-)z0}^{(0)} \right. \\ &\left. - E_{p0z}^{(0)h} - \gamma_{(1)}^{(0)} E_{(1-)x0}^{(1)} - \gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+)x0}^{(1)} - E_{(2-)x0}^{(1)}) - \gamma_{nl}^{(0)} E_{p0x}^{(1)b} \right), \end{aligned} \quad (\text{A.72})$$

$$\begin{aligned} E_y^{(1)2+} e^{r\gamma_{(2)}^{(1)}z_{(2)}} + E_y^{(1)2-} e^{-r\gamma_{(2)}^{(1)}z_{(2)}} - E_{(3+)y0}^{(1)} e^{r\gamma_{(3)}^{(1)}z_{(2)}} &= -E_{p0y}^{(1)h} e^{r\gamma_{nl}^{(1)}\delta} + \\ i\tilde{f}_{(2)} \left( \frac{2\pi p_y}{a_y} (E_{(3+)z0}^{(1)} e^{r\gamma_{(3+)}^{(0)}z_{(2)}} - E_{(2+)z0}^{(0)} e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}} - E_{(2-)z0}^{(0)} e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}} - E_{p0z}^{(0)h} e^{r\gamma_{nl}^{(0)}\delta}) + \right. \\ &\left. \gamma_{(3)}^{(0)} E_{(3+)y0}^{(1)} e^{-r\gamma_{(3)}^{(0)}z_{(2)}} - \gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+)y0}^{(1)} e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}} - E_{(2-)y0}^{(1)} e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}}) - \gamma_{nl}^{(0)} E_{p0y}^{(1)b} e^{r\gamma_{nl}^{(0)}\delta} \right), \end{aligned} \quad (\text{A.73})$$

$$\begin{aligned} E_x^{(1)2+} e^{r\gamma_{(2)}^{(1)}z_{(2)}} + E_x^{(1)2-} e^{-r\gamma_{(2)}^{(1)}z_{(2)}} - E_{(3+)x0}^{(1)} e^{r\gamma_{(3)}^{(1)}z_{(2)}} &= -E_{p0x}^{(1)h} e^{r\gamma_{nl}^{(1)}\delta} + \\ i\tilde{f}_{(2)} \left( \frac{2\pi p_x}{a_x} (E_{(3+)z0}^{(1)} e^{r\gamma_{(3+)}^{(0)}z_{(2)}} - E_{(2+)z0}^{(0)} e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}} - E_{(2-)z0}^{(0)} e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}} - E_{p0z}^{(0)h} e^{r\gamma_{nl}^{(0)}\delta}) + \right. \\ &\left. \gamma_{(3)}^{(0)} E_{(3+)x0}^{(1)} e^{-r\gamma_{(3)}^{(0)}z_{(2)}} - \gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+)x0}^{(1)} e^{r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}} - E_{(2-)x0}^{(1)} e^{-r\gamma_{(2)}^{(0)}z_{(2)}}) - \gamma_{nl}^{(0)} E_{p0x}^{(1)b} e^{r\gamma_{nl}^{(0)}\delta} \right), \end{aligned} \quad (\text{A.74})$$

– équations dues à la continuité des composantes tangentielles à la surface du champ magnétique :

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(1)}(E_{(2+)x0}^{(1)} - E_x^{(1)2-}) + \gamma_{(1)}^{(1)}E_{(1-)x0}^{(1)} = -\gamma_{nl}^{(1)}E_{p0x}^{(1)b} + \alpha^{(1)}(E_{(2+)z0}^{(1)} + E_{(2-)z0}^{(1)} + E_{p0z}^{(1)b} - E_{(1-)z0}^{(1)}) + \\ & \iota\tilde{f}_{(1)}((\gamma_{(1)}^{(0)})^2E_{(1-)x0}^{(0)} - ((\gamma_{(2)}^{(0)})^2(E_{(2+)x0}^{(0)} - E_{(2-)x0}^{(0)}) + (\gamma_{nl}^{(0)})^2E_{p0x}^{(0)b}) + \\ & \alpha^{(0)}(\gamma_{(1)}^{(0)}E_{(1-)z0}^{(0)} + (\gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+)z0}^{(0)} - E_{(2-)z0}^{(0)}) + \gamma_{nl}^{(0)}E_{p0z}^{(0)b})), \end{aligned} \quad (\text{A.75})$$

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(1)}(E_{(2+)y0}^{(1)} - E_y^{(1)2-}) + \gamma_{(1)}^{(1)}E_{(1-)y0}^{(1)} = -\gamma_{nl}^{(1)}E_{p0y}^{(1)b} + \beta^{(1)}(E_{(2+)z0}^{(1)} + E_{(2-)z0}^{(1)} + E_{p0z}^{(1)b} - E_{(1-)z0}^{(1)}) + \\ & \iota\tilde{f}_{(1)}((\gamma_{(1)}^{(0)})^2E_{(1-)y0}^{(0)} - ((\gamma_{(2)}^{(0)})^2(E_{(2+)y0}^{(0)} - E_{(2-)y0}^{(0)}) + (\gamma_{nl}^{(0)})^2E_{p0y}^{(0)b}) + \\ & \beta^{(0)}(\gamma_{(1)}^{(0)}E_{(1-)z0}^{(0)} + (\gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+)z0}^{(0)} - E_{(2-)z0}^{(0)}) + \gamma_{nl}^{(0)}E_{p0z}^{(0)b})), \end{aligned} \quad (\text{A.76})$$

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(1)}(E_{(2+)x0}^{(1)}e^{r_{(2)}^{(1)}z(2)} - E_{(2-)x0}^{(1)}e^{-r_{(2)}^{(1)}z(2)}) - \gamma_{(3)}^{(1)}E_{(3+)x0}^{(1)}e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)} = -\gamma_{nl}^{(1)}E_{p0x}^{(1)h}e^{r_{nl}^{(1)}\delta} + \alpha^{(1)}(E_{(2+)z0}^{(1)}e^{r_{(2)}^{(1)}z(2)} + \\ & E_{(2-)z0}^{(1)}e^{-r_{(2)}^{(1)}z(2)} + E_{p0z}^{(1)h}e^{r_{nl}^{(0)}\delta} - E_{(3+)z0}^{(1)}e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)}) + \iota\tilde{f}_{(2)}((\gamma_{(3)}^{(0)})^2E_{(3+)x0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)} - \\ & ((\gamma_{(2)}^{(0)})^2(E_{(2+)x0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} - E_{(2-)x0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)}) + (\gamma_{nl}^{(0)})^2E_{p0x}^{(0)b}e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) - \alpha^{(0)}(\gamma_{(3)}^{(0)}E_{(3+)z0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)} - \\ & (\gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+)z0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} - E_{(2-)z0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)}) + \gamma_{nl}^{(0)}E_{p0z}^{(0)b}e^{r_{nl}^{(0)}\delta})), \end{aligned} \quad (\text{A.77})$$

$$\begin{aligned} & \gamma_{(2)}^{(1)}(E_{(2+)y0}^{(1)}e^{r_{(2)}^{(1)}z(2)} - E_{(2-)y0}^{(1)}e^{-r_{(2)}^{(1)}z(2)}) - \gamma_{(3)}^{(1)}E_{(3+)y0}^{(1)}e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)} = -\gamma_{nl}^{(1)}E_{p0y}^{(1)h}e^{r_{nl}^{(1)}\delta} + \alpha^{(1)}(E_{(2+)z0}^{(1)}e^{r_{(2)}^{(1)}z(2)} + \\ & E_{(2-)z0}^{(1)}e^{-r_{(2)}^{(1)}z(2)} + E_{p0z}^{(1)h}e^{r_{nl}^{(0)}\delta} - E_{(3+)z0}^{(1)}e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)}) + \iota\tilde{f}_{(2)}((\gamma_{(3)}^{(0)})^2E_{(3+)y0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)} - \\ & ((\gamma_{(2)}^{(0)})^2(E_{(2+)y0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} - E_{(2-)y0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)}) + (\gamma_{nl}^{(0)})^2E_{p0y}^{(0)b}e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) - \alpha^{(0)}(\gamma_{(3)}^{(0)}E_{(3+)z0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)} - \\ & (\gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+)z0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} - E_{(2-)z0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)}) + \gamma_{nl}^{(0)}E_{p0z}^{(0)b}e^{r_{nl}^{(0)}\delta})), \end{aligned} \quad (\text{A.78})$$

– équations dues à la continuité des composantes normales à la surface du vecteur déplacement électrique :

$$\begin{aligned} & \epsilon_{(2)}\left(E_{(2+)z0}^{(1)} + E_{(2-)z0}^{(1)}\right) - \epsilon_{(1)}E_{(1-)z0}^{(1)} = -\epsilon_{(2)}E_{p0z}^{(1)b} - \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(1)b}}{\epsilon_0} + \iota\tilde{f}_{(1)}\left(-\frac{2\pi p_x}{a_x}(\epsilon_{(2)}(E_{(2+)x0}^{(0)} + E_{(2-)x0}^{(0)} \right. \\ & \left. + E_{p0x}^{(1)b} - \frac{\mathbb{P}_{0x}^{nl(0)b}}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}}) - \epsilon_{(1)}E_{(1-)x0}^{(0)} - \frac{2\pi p_y}{a_y}(\epsilon_{(2)}(E_{(2+)y0}^{(0)} + E_{(2-)y0}^{(0)} + E_{p0y}^{(1)b} - \frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl(0)b}}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}}) - \epsilon_{(1)}E_{(1-)y0}^{(0)} + \right. \\ & \left. - \epsilon_{(2)}(\gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+)z0}^{(0)} - E_{(2-)z0}^{(0)}) + \gamma_{nl}^{(0)}(E_{p0z}^{(0)b} + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)b}}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}})) - \epsilon_{(1)}\gamma_{(1)}^{(0)}E_{(1-)z0}^{(0)}\right), \end{aligned} \quad (\text{A.79})$$

$$\begin{aligned} & \epsilon_{(2)}\left(E_{(2+)x0}^{(1)}e^{r_{(2)}^{(1)}z(2)} + E_{(2-)x0}^{(1)}e^{-r_{(2)}^{(1)}z(2)}\right) - \epsilon_{(3)}E_{(3+)x0}^{(1)}e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)} = (-\epsilon_{(2)}E_{p0z}^{(1)h} - \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(1)h}}{\epsilon_0})e^{r_{nl}^{(1)}\delta} \\ & + \iota\tilde{f}_{(2)}\left(-\frac{2\pi p_x}{a_x}(\epsilon_{(2)}(E_{(2+)x0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} + E_{(2-)x0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)} + (E_{p0x}^{(1)h} - \frac{\mathbb{P}_{0x}^{nl(0)h}}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}})e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) - \epsilon_{(3)}E_{(3+)x0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(0)}z(2)} - \right. \\ & \left. \frac{2\pi p_y}{a_y}(\epsilon_{(2)}(E_{(2+)y0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} + E_{(2-)y0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)} + (E_{p0y}^{(1)h} - \frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl(0)h}}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}})e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) - \epsilon_{(3)}E_{(3+)y0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(0)}z(2)} + \right. \\ & \left. - \epsilon_{(2)}(\gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+)z0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} - E_{(2-)z0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)}) + \gamma_{nl}^{(0)}(E_{p0z}^{(0)h} + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)h}}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}}))e^{r_{nl}^{(0)}\delta} + \epsilon_{(3)}\gamma_{(3)}^{(0)}E_{(3+)z0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(0)}z(2)}\right), \end{aligned} \quad (\text{A.80})$$

ANNEXE A. RÉSOLUTION DES ÉQUATIONS DE CONTINUITÉ DANS LA  
MÉTHODE DE RAYLEIGH PERTURBATIVE

---

– équations dues à l'équation de Maxwell-Gauss :

$$\begin{aligned}
& \gamma_{(2)}^{(1)}(E_{(2+)z0}^{(1)} - E_{(2-)z0}^{(1)}) + \gamma_{(1)}^{(1)}E_{(1-)z0}^{(1)} = -\gamma_{nl}^{(1)}(E_{p0z}^{(1)b} + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(1)b}}{\epsilon_0}) - \alpha^{(1)}(E_{p0x}^{(1)b} + A_1^{(1)}) - \beta^{(1)}(E_{p0y}^{(1)b} + A_2^{(1)}) \\
& + i\tilde{f}_{(1)}(\alpha^{(0)}(-\gamma_{(1)}^{(0)}E_{(1-)x0}^{(0)} - \gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+)x0}^{(0)} - E_{(2-)x0}^{(0)}) - \gamma_{nl}^{(0)}(E_{p0x}^{(0)b} + \frac{\mathbb{P}_{0x}^{nl(0)b}}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}})) \\
& + \beta^{(0)}(-\gamma_{(1)}^{(0)}E_{(1-)y0}^{(0)} - \gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+)y0}^{(0)} - E_{(2-)y0}^{(0)}) - \gamma_{nl}^{(0)}(E_{p0y}^{(0)b} + \frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl(0)b}}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}})) \\
& - (\gamma_{(2)}^{(0)})^2(E_{(2+)z0}^{(0)} - E_{(2-)z0}^{(0)}) + (\gamma_{(1)}^{(0)})^2E_{(1-)z0}^{(0)} - (\gamma_{nl}^{(0)})^2(E_{p0z}^{(0)b} + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)b}}{\epsilon_0}), \tag{A.81}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \gamma^{2+}(E_{(2+)z0}^{(1)}e^{r_{(2)}^{(1)z(2)}} - E_{(2-)z0}^{(1)}e^{-r_{(2)}^{(1)z(2)}}) - \gamma_{(3)}^{(1)}E_{(3+)z0}^{(1)}e^{r_{(3)}^{(1)z(2)}} = -\gamma_{nl}^{(1)}(E_{p0z}^{(1)h} + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(1)h}}{\epsilon_0})e^{r_{nl}^{(1)}\delta} \\
& - \alpha^{(1)}(E_{p0x}^{(1)h}e^{r_{nl}^{(1)}\delta} + A_3^{(1)}) - \beta^{(1)}(E_{p0y}^{(1)h}e^{r_{nl}^{(1)}\delta} + A_4^{(1)}) \\
& + i\tilde{f}_{(1)}(\alpha^{(0)}(\gamma_{(3)}^{(0)}E_{(3+)x0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(0)z(2)}} - \gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+)x0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)z(2)}} - E_{(2-)x0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)z(2)}}) - \gamma_{nl}^{(0)}(E_{p0x}^{(0)h} + \frac{\mathbb{P}_{0x}^{nl(0)h}}{\epsilon_0})e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) \\
& + \beta^{(0)}(\gamma_{(3)}^{(0)}E_{(3+)y0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(0)z(2)}} - \gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+)y0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)z(2)}} - E_{(2-)y0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)z(2)}}) - \gamma_{nl}^{(0)}(E_{p0y}^{(0)h} + \frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl(0)h}}{\epsilon_0})e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) \\
& - (\gamma_{(2)}^{(0)})^2(E_{(2+)z0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)z(2)}} - E_{(2-)z0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)z(2)}}) + (\gamma_{(3)}^{(0)})^2E_{(3+)z0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(0)z(2)}} - (\gamma_{nl}^{(0)})^2(E_{p0z}^{(0)h} + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)h}}{\epsilon_0})e^{r_{nl}^{(0)}\delta} \tag{A.82}
\end{aligned}$$

### A.4.2 Grandeurs dans les solutions des équations de continuité de l'ordre un de perturbation

Les coefficients  $A_i^{(1)}$  rencontrés dans le tableau 4.2 sont les seconds membres des équations (A.71 A.82) :

$$A_1^{(1)} = -E_{p0x}^{(1)b} + i\tilde{f}_{(1)} \left( \frac{2\pi p_x}{a_x} (E_{(1-),z0}^{(1)} - E_{(2+),z0}^{(0)} - E_{(2-),z0}^{(0)} - E_{p0z}^{(0)h}) - \gamma_{(1)}^{(0)} E_{(1-),x0}^{(1)} - \gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+),x0}^{(1)} - E_{(2-),x0}^{(1)}) - \gamma_{nl}^{(0)} E_{p0x}^{(1)b} \right), \quad (\text{A.83})$$

$$A_2^{(1)} = -E_{p0y}^{(1)b} + i\tilde{f}_{(1)} \left( \frac{2\pi p_y}{a_y} (E_{(1-),z0}^{(1)} - E_{(2+),z0}^{(0)} - E_{(2-),z0}^{(0)} - E_{p0z}^{(0)h}) - \gamma_{(1)}^{(0)} E_{(1-),y0}^{(1)} - \gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+),y0}^{(1)} - E_{(2-),y0}^{(1)}) - \gamma_{nl}^{(0)} E_{p0y}^{(1)b} \right), \quad (\text{A.84})$$

$$A_3^{(1)} = -E_{p0x}^{(1)h} e^{r_{nl}^{(1)}\delta} + i\tilde{f}_{(2)} \left( \frac{2\pi p_x}{a_x} (E_{(3+),z0}^{(1)} e^{r_{(3+),z(2)}^{(0)}} - E_{(2+),z0}^{(0)} e^{r_{(2),z(2)}^{(0)}} - E_{(2-),z0}^{(0)} e^{-r_{(2),z(2)}^{(0)}} - E_{p0z}^{(0)h} e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) + \gamma_{(3)}^{(0)} E_{(3+),x0}^{(1)} e^{-r_{(3),z(2)}^{(0)}} - \gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+),x0}^{(1)} e^{r_{(2),z(2)}^{(0)}} - E_{(2-),x0}^{(1)} e^{-r_{(2),z(2)}^{(0)}}) - \gamma_{nl}^{(0)} E_{p0x}^{(1)b} e^{r_{nl}^{(0)}\delta} \right), \quad (\text{A.85})$$

$$A_4^{(1)} = -E_{p0y}^{(1)h} e^{r_{nl}^{(1)}\delta} + i\tilde{f}_{(2)} \left( \frac{2\pi p_y}{a_y} (E_{(3+),z0}^{(1)} e^{r_{(3+),z(2)}^{(0)}} - E_{(2+),z0}^{(0)} e^{r_{(2),z(2)}^{(0)}} - E_{(2-),z0}^{(0)} e^{-r_{(2),z(2)}^{(0)}} - E_{p0z}^{(0)h} e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) + \gamma_{(3)}^{(0)} E_{(3+),y0}^{(1)} e^{-r_{(3),z(2)}^{(0)}} - \gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+),y0}^{(1)} e^{r_{(2),z(2)}^{(0)}} - E_{(2-),y0}^{(1)} e^{-r_{(2),z(2)}^{(0)}}) - \gamma_{nl}^{(0)} E_{p0y}^{(1)b} e^{r_{nl}^{(0)}\delta} \right), \quad (\text{A.86})$$



ANNEXE A. RÉSOLUTION DES ÉQUATIONS DE CONTINUITÉ DANS LA  
MÉTHODE DE RAYLEIGH PERTURBATIVE

---

$$\begin{aligned}
 A_5^{(1)} &= -\gamma_{nl}^{(1)} E_{p0x}^{(1)b} + \alpha^{(1)} (E_{(2+)z0}^{(1)} + E_{(2-)z0}^{(1)} + E_{p0z}^{(1)b} - E_{(1-)z0}^{(1)}) + \\
 & i\tilde{f}_{(1)} ((\gamma_{(1)}^{(0)})^2 E_{(1-)x0}^{(0)} - ((\gamma_{(2)}^{(0)})^2 (E_{(2+)x0}^{(0)} - E_{(2-)x0}^{(0)}) + (\gamma_{nl}^{(0)})^2 E_{p0x}^{(0)b}) + \\
 & \alpha^{(0)} (\gamma_{(1)}^{(0)} E_{(1-)z0}^{(0)} + (\gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+)z0}^{(0)} - E_{(2-)z0}^{(0)}) + \gamma_{nl}^{(0)} E_{p0z}^{(0)b})), \tag{A.87}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 A_6^{(1)} &= -\gamma_{nl}^{(1)} E_{p0y}^{(1)b} + \beta^{(1)} (E_{(2+)z0}^{(1)} + E_{(2-)z0}^{(1)} + E_{p0z}^{(1)b} - E_{(1-)z0}^{(1)}) + \\
 & i\tilde{f}_{(1)} ((\gamma_{(1)}^{(0)})^2 E_{(1-)y0}^{(0)} - ((\gamma_{(2)}^{(0)})^2 (E_{(2+)y0}^{(0)} - E_{(2-)y0}^{(0)}) + (\gamma_{nl}^{(0)})^2 E_{p0y}^{(0)b}) + \\
 & \beta^{(0)} (\gamma_{(1)}^{(0)} E_{(1-)z0}^{(0)} + (\gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+)z0}^{(0)} - E_{(2-)z0}^{(0)}) + \gamma_{nl}^{(0)} E_{p0z}^{(0)b})), \tag{A.88}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 A_7^{(1)} &= -\gamma_{nl}^{(1)} E_{p0x}^{(1)h} e^{r_{nl}^{(1)}\delta} + \alpha^{(1)} (E_{(2+)z0}^{(1)} e^{r_{(2)}^{(1)}z(2)} + \\
 & E_{(2-)z0}^{(1)} e^{-r_{(2)}^{(1)}z(2)} + E_{p0z}^{(1)h} e^{r_{nl}^{(0)}\delta} - E_{(3+)z0}^{(1)} e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)}) + i\tilde{f}_{(2)} ((\gamma_{(3)}^{(0)})^2 E_{(3+)x0}^{(0)} e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)} - \\
 & ((\gamma_{(2)}^{(0)})^2 (E_{(2+)x0}^{(0)} e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} - E_{(2-)x0}^{(0)} e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)}) + (\gamma_{nl}^{(0)})^2 E_{p0x}^{(0)b} e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) - \alpha^{(0)} (\gamma_{(3)}^{(0)} E_{(3+)z0}^{(0)} e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)} - \\
 & (\gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+)z0}^{(0)} e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} - E_{(2-)z0}^{(0)} e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)}) + \gamma_{nl}^{(0)} E_{p0z}^{(0)b} e^{r_{nl}^{(0)}\delta})), \tag{A.89}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 A_8^{(1)} &= -\gamma_{nl}^{(1)} E_{p0y}^{(1)h} e^{r_{nl}^{(1)}\delta} + \alpha^{(1)} (E_{(2+)z0}^{(1)} e^{r_{(2)}^{(1)}z(2)} + \\
 & E_{(2-)z0}^{(1)} e^{-r_{(2)}^{(1)}z(2)} + E_{p0z}^{(1)h} e^{r_{nl}^{(0)}\delta} - E_{(3+)z0}^{(1)} e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)}) + i\tilde{f}_{(2)} ((\gamma_{(3)}^{(0)})^2 E_{(3+)y0}^{(0)} e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)} - \\
 & ((\gamma_{(2)}^{(0)})^2 (E_{(2+)y0}^{(0)} e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} - E_{(2-)y0}^{(0)} e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)}) + (\gamma_{nl}^{(0)})^2 E_{p0y}^{(0)b} e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) - \alpha^{(0)} (\gamma_{(3)}^{(0)} E_{(3+)z0}^{(0)} e^{r_{(3)}^{(1)}z(2)} - \\
 & (\gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+)z0}^{(0)} e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} - E_{(2-)z0}^{(0)} e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)}) + \gamma_{nl}^{(0)} E_{p0z}^{(0)b} e^{r_{nl}^{(0)}\delta})), \tag{A.90}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 A_9^{(1)} &= -\varepsilon_{(2)} E_{p0z}^{(1)b} - \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(1)b}}{\varepsilon_0} + i\tilde{f}_{(1)} \left( -\frac{2\pi p_x}{a_x} (\varepsilon_{(2)} (E_{(2+)x0}^{(0)} + E_{(2-)x0}^{(0)}) \right. \\
 & \left. + E_{p0x}^{(1)b} - \frac{\mathbb{P}_{0x}^{nl(0)b}}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}} \right) - \varepsilon_{(1)} E_{(1-)x0}^{(0)} - \frac{2\pi p_y}{a_y} (\varepsilon_{(2)} (E_{(2+)y0}^{(0)} + E_{(2-)y0}^{(0)}) + E_{p0y}^{(1)b} - \frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl(0)b}}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}}) - \varepsilon_{(1)} E_{(1-)y0}^{(0)} + \\
 & -\varepsilon_{(2)} (\gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+)z0}^{(0)} - E_{(2-)z0}^{(0)}) + \gamma_{nl}^{(0)} (E_{p0z}^{(0)b} + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)b}}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}})) - \varepsilon_{(1)} \gamma_{(1)}^{(0)} E_{(1-)z0}^{(0)}, \tag{A.91}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 A_{10}^{(1)} &= (-\varepsilon_{(2)} E_{p0z}^{(1)h} - \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(1)h}}{\varepsilon_0}) e^{r_{nl}^{(1)}\delta} \\
 & + i\tilde{f}_{(2)} \left( -\frac{2\pi p_x}{a_x} (\varepsilon_{(2)} (E_{(2+)x0}^{(0)} e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} + E_{(2-)x0}^{(0)} e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)} + (E_{p0x}^{(1)h} - \frac{\mathbb{P}_{0x}^{nl(0)h}}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}}) e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) - \varepsilon_{(3)} E_{(3+)x0}^{(0)} e^{r_{(3)}^{(0)}z(2)} \right) - \\
 & \frac{2\pi p_y}{a_y} (\varepsilon_{(2)} (E_{(2+)y0}^{(0)} e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} + E_{(2-)y0}^{(0)} e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)} + (E_{p0y}^{(1)h} - \frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl(0)h}}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}}) e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) - \varepsilon_{(3)} E_{(3+)y0}^{(0)} e^{r_{(3)}^{(0)}z(2)}) + \\
 & -\varepsilon_{(2)} (\gamma_{(2)}^{(0)} (E_{(2+)z0}^{(0)} e^{r_{(2)}^{(0)}z(2)} - E_{(2-)z0}^{(0)} e^{-r_{(2)}^{(0)}z(2)}) + \gamma_{nl}^{(0)} (E_{p0z}^{(0)h} + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)h}}{\varepsilon_0 \varepsilon_{(2)}})) e^{r_{nl}^{(0)}\delta} + \varepsilon_{(3)} \gamma_{(3)}^{(0)} E_{(3+)z0}^{(0)} e^{r_{(3)}^{(0)}z(2)}, \tag{A.92}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 A_{11}^{(1)} &= -\gamma_{nl}^{(1)}(E_{p0z}^{(1)b} + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(1)b}}{\epsilon_0}) - \alpha^{(1)}(E_{p0x}^{(1)b} + A_1^{(1)}) - \beta^{(1)}(E_{p0y}^{(1)b} + A_2^{(1)}) \\
 &+ i\tilde{f}_{(1)}(\alpha^{(0)}(-\gamma_{(1)}^{(0)}E_{(1-),x0}^{(0)} - \gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+),x0}^{(0)} - E_{(2-),x0}^{(0)}) - \gamma_{nl}^{(0)}(E_{p0x}^{(0)b} + \frac{\mathbb{P}_{0x}^{nl(0)b}}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}})) \\
 &+ \beta^{(0)}(-\gamma_{(1)}^{(0)}E_{(1-),y0}^{(0)} - \gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+),y0}^{(0)} - E_{(2-),y0}^{(0)}) - \gamma_{nl}^{(0)}(E_{p0y}^{(0)b} + \frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl(0)b}}{\epsilon_0\epsilon_{(2)}})) \\
 &- (\gamma_{(2)}^{(0)})^2(E_{(2+),z0}^{(0)} - E_{(2-),z0}^{(0)}) + (\gamma_{(1)}^{(0)})^2E_{(1-),z0}^{(0)} - (\gamma_{nl}^{(0)})^2(E_{p0z}^{(0)b} + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)b}}{\epsilon_0}), \tag{A.93}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 A_{12}^{(1)} &= -\gamma_{nl}^{(1)}(E_{p0z}^{(1)h} + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(1)h}}{\epsilon_0})e^{r_{nl}^{(1)}\delta} \\
 &- \alpha^{(1)}(E_{p0x}^{(1)h}e^{r_{nl}^{(1)}\delta} + A_3^{(1)}) - \beta^{(1)}(E_{p0y}^{(1)h}e^{r_{nl}^{(1)}\delta} + A_4^{(1)}) \\
 &+ i\tilde{f}_{(1)}(\alpha^{(0)}(\gamma_{(3)}^{(0)}E_{(3+),x0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(0)z(2)}} - \gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+),x0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)z(2)}} - E_{(2-),x0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)z(2)}}) - \gamma_{nl}^{(0)}(E_{p0x}^{(0)h} + \frac{\mathbb{P}_{0x}^{nl(0)h}}{\epsilon_0})e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) \\
 &+ \beta^{(0)}(\gamma_{(3)}^{(0)}E_{(3+),y0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(0)z(2)}} - \gamma_{(2)}^{(0)}(E_{(2+),y0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)z(2)}} - E_{(2-),y0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)z(2)}}) - \gamma_{nl}^{(0)}(E_{p0y}^{(0)h} + \frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl(0)h}}{\epsilon_0})e^{r_{nl}^{(0)}\delta}) \\
 &- (\gamma_{(2)}^{(0)})^2(E_{(2+),z0}^{(0)}e^{r_{(2)}^{(0)z(2)}} - E_{(2-),z0}^{(0)}e^{-r_{(2)}^{(0)z(2)}}) + (\gamma_{(3)}^{(0)})^2E_{(3+),z0}^{(0)}e^{r_{(3)}^{(0)z(2)}} - (\gamma_{nl}^{(0)})^2(E_{p0z}^{(0)h} + \frac{\mathbb{P}_{0z}^{nl(0)h}}{\epsilon_0})e^{r_{nl}^{(0)}\delta}. \tag{A.94}
 \end{aligned}$$

Dans les grandeurs non explicitées dans le tableau 4.2, il y a aussi les deux dénominateurs :

$$\begin{aligned}
 deno_z^{(1)} &= (\epsilon_{(2)}\gamma_{(1)}^{(1)} - \epsilon_{(1)}\gamma_{(2)}^{(1)})(\epsilon_{(3)}\gamma_{(2)}^{(1)} + \epsilon_{(2)}\gamma_{(3)}^{(1)})e^{-r_{(2)}^{(1)z(2)}} + \\
 &(\epsilon_{(2)}\gamma_{(1)}^{(1)} + \epsilon_{(1)}\gamma_{(2)}^{(1)})(\epsilon_{(3)}\gamma_{(2)}^{(1)} - \epsilon_{(2)}\gamma_{(3)}^{(1)})e^{r_{(2)}^{(1)z(2)}}, \tag{A.95}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 deno^{(1)} &= (\gamma_{(1)}^{(1)} - \gamma_{(2)}^{(1)})(\gamma_{(2)}^{(1)} + \gamma_{(3)}^{(1)})e^{-r_{(2)}^{(1)z(2)}} + \\
 &(\gamma_{(1)}^{(1)} + \gamma_{(2)}^{(1)})(\gamma_{(2)}^{(1)} - \gamma_{(3)}^{(1)})e^{r_{(2)}^{(1)z(2)}}. \tag{A.96}
 \end{aligned}$$

**DISCUSSION SUR L'ACCORD DE PHASE DANS  
LE KDP POUR LA CONFIGURATION DITES DE  
BLOEMBERGEN.**

---

Nous voyons au chapitre 2 que le champ transmis à  $2\omega$  comportait deux parties qui peuvent interférer. Ceci implique donc une étude de l'accord de phase entre ces deux parties pour optimiser le rendement dans le KDP.

Pour simplifier l'étude de l'accord de phase entre la partie homogène et inhomogène du champ total transmis à  $2\omega$ , nous allons nous intéresser uniquement à l'ordre zéro de perturbation, ceci revient à étudier le cas d'une surface plane.

Dans notre cas, le champ total transmis  $\vec{E}_{(2)}(2\omega)$  s'écrit :

$$E_{(2)y}(2\omega) = \frac{\mathbb{P}_{0y}^{nl} e^{i(\alpha(2\omega)x - 2\omega t)}}{(\varepsilon_{(2)}(\omega) - \varepsilon_{(2)}(2\omega))(\gamma_{(2)}(2\omega) + \gamma_{(1)}(2\omega))} \left( (-\gamma_{(1)}(2\omega) - \gamma_{nl}(2\omega)) e^{i\gamma_{(2)}(2\omega)z} + (\gamma_{(2)}(2\omega) + \gamma_{(1)}(2\omega)) e^{i\gamma_{nl}(2\omega)z} \right) \quad (\text{B.1})$$

Dans cette annexe, nous étudions l'efficacité du champ définie dans l'équation (B.2)

$$I_{(2)}(2\omega) = |E_{(2)y}(2\omega)|^2 \frac{Re(|\gamma_{(2)}(2\omega)|)}{Re(|\gamma_i(\omega)|)} = I_{(2)0}(2\omega) \left( 1 + V \cos((\gamma_{(2)}(2\omega) - \gamma_{nl}(2\omega))z) \right) \quad (\text{B.2})$$

Cette forme de l'efficacité dépend d'un terme proportionnel à la polarisation non linéaire ( $I_{(2)0}(2\omega)$ ) multiplié par un terme d'interférence dans les grandes parenthèses dont l'ensemble de minima et maxima ont une visibilité,  $V < 0$ , qui est maximum pour  $\gamma_{(2)}(2\omega) = 2\gamma_{(2)}(\omega)$  :

$$V = \frac{2(-\gamma_{nl}(2\omega) - \gamma_{(1)}(2\omega))(\gamma_{(2)}(2\omega) + \gamma_{(1)}(2\omega))}{(\gamma_{(1)}(2\omega) + \gamma_{nl})^2 + (\gamma_{(1)}(2\omega) + \gamma_{(2)}(2\omega))^2}. \quad (\text{B.3})$$

Dans ces conditions, l'accord de phase est réalisé pour la condition suivante ( $q \in \mathbb{N}$ ) :

$$(\gamma_{(2)}(2\omega) - 2\gamma_{(2)}(\omega))z = (2q + 1)\pi \quad \text{avec } q \in \mathbb{N}. \quad (\text{B.4})$$

si les composantes des vecteurs d'onde sont exprimées en fonction des permittivités électriques et des pulsations correspondantes, la relation d'accord de phase devient :

$$2\frac{\omega}{c} \left( \sqrt{\varepsilon_{(2)}(2\omega) - \varepsilon_{(1)}(\omega) \sin^2(\theta_i)} - \sqrt{\varepsilon_{(2)}(\omega) - \varepsilon_{(1)}(\omega) \sin^2(\theta_i)} \right) z = (2q + 1)\pi \quad (\text{B.5})$$

Cette condition d'accord de phase peut être atteinte en influant sur différents paramètres, tel que : la distance d'observation  $z = z_d$  qui est la distance entre le plan  $z = 0$  et le plan d'observation, ou encore l'angle d'incidence  $\theta_i$ . On pourrait aussi regarder l'influence de la longueur d'onde, mais il faudrait connaître la variation des permittivités et surtout celles des susceptibilités non linéaires, ce qui est difficile à trouver pour ces dernières. Nous pouvons aussi nous intéresser à la combinaison de plusieurs de ces paramètres.

a) L'influence de l'angle d'incidence sur les intensités transmises et réfléchies à la fréquence du second harmonique<sup>[116]</sup> a très rapidement intéressé la communauté de l'optique non linéaire. Ici nous traitons de son effet sur l'accord de phase. Cette étude peut s'effectuer en considérant la composante  $z$  des vecteurs d'onde à la place de l'angle d'incidence. Sur la figure B.1, la variation de l'intensité à la fréquence du second harmonique dans le KDP en fonction de l'angle d'incidence est représentée pour plusieurs distances de détection  $z_d$ . Pour chaque  $z_d$ , les variations passent par des maxima qui dénotent l'angle d'incidence pour lequel on se rapproche le plus de l'accord de phase. Cet angle varie en fonction de la distance d'observation.

Un bref regard sur les équations (B.1) et (B.5), nous permet de mettre en évidence un angle particu-

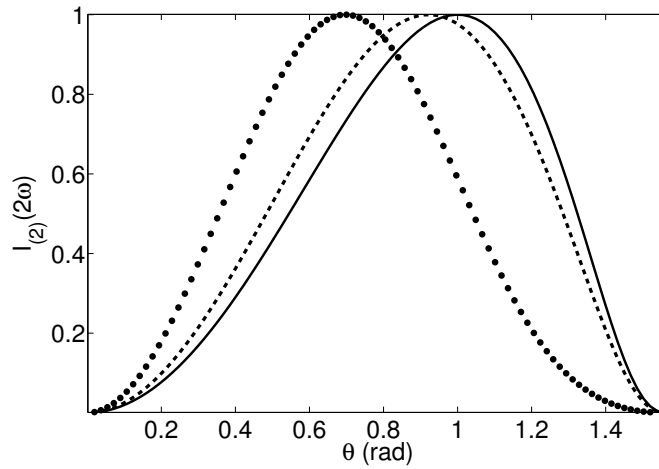


FIG. B.1: Variation, en fonction de l'angle d'incidence  $\theta_i$ , de l'intensité transmise dans le milieu non-linéaire à l'ordre zéro de perturbation,  $I_{(2)}(2\omega)$  et ce pour plusieurs distances d'observation. L'efficacité est normalisée par rapport à son maximum. Ces trois courbes sont réalisées pour des distances d'observation de  $z_d = 1 \mu\text{m}$  pour la ligne continue,  $z_d = 5 \mu\text{m}$  pour la ligne discontinue et  $z_d = 10 \mu\text{m}$  pour les pointillés. Tout ceci est effectué à la longueur d'onde fondamentale  $\lambda = 1064 \text{ nm}$

lier. C'est l'angle pour lequel  $\gamma_{(2)}(2\omega) = 2\gamma_{(2)}(\omega)$  ou autrement dit  $\varepsilon_{(2)}(2\omega) = \varepsilon_{(2)}(\omega)$ . En effet pour cet angle, un effet d'exaltation de champ est à prendre en compte car le dénominateur de l'équation (B.1) devient nul. Nous avons plus précisément une forme indéterminée car le terme d'interférence de l'équation (B.2) devient nul. C'est pour cet angle qui donne une réponse quasi indépendante de la distance d'observation que l'accord de phase peut être obtenu. Cependant, sur la figure B.1, seules les variations standards de la fonction d'interférence par rapport à l'angle d'incidence apparaissent, aucune singularité n'est représentée. Toutefois, en étudiant les surfaces d'indice qui nous intéressent, à savoir celles des indices extraordinaires pour la fréquence fondamentale et celles des indices ordinaires à la seconde harmonique, nous pouvons dire que la condition  $\varepsilon_{(2)}(2\omega) = \varepsilon_{(2)}(\omega)$  n'est jamais vérifiée et ainsi expliquer qu'aucune singularité n'apparaisse sur la figure B.1. En effet, comme le montre la figure B.2, la surface d'indice extraordinaire de la fréquence fondamentale ne coupe ja-

[116] R. CHANG & N. BLOEMBERGEN, "Experimental verification of laws for the reflected intensity of second-harmonic light," Phys. Rev. **144**, 775–80 (1966).

mais la surface d'indice ordinaire du seconde harmonique. De plus, comme le montre la construction des vecteurs d'onde  $\vec{K}_{nl}$  et  $\vec{K}_{(t)}^{(2)}$ , leurs composantes sur l'axe  $z$  ne seront jamais égales. Il n'est donc pas possible, dans notre cas, d'obtenir l'accord de phase qui permet d'exalter le champ transmis à la fréquence du second harmonique dans le KDP grâce à l'adaptation de l'angle d'incidence quelque soient les autres paramètres.

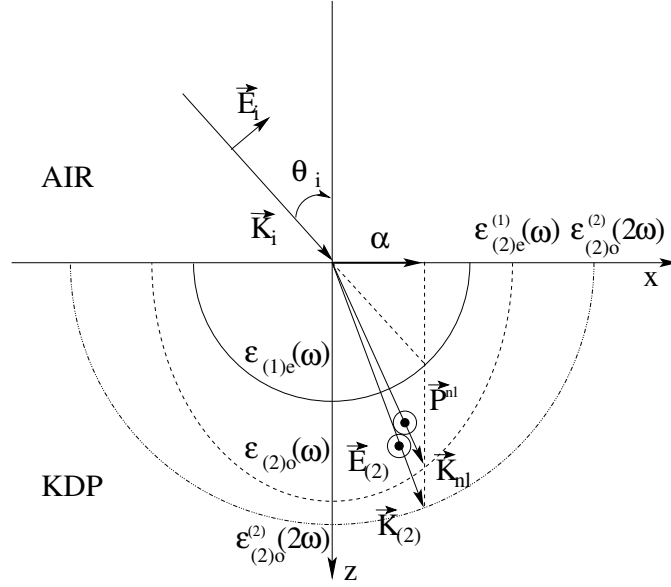


FIG. B.2: Surfaces d'indice. En traits pleins est représentée la surface d'indice du milieu incident dans l'air avec  $\sqrt{\epsilon_{(1)}(\omega)} = 1$  son indice optique. En traits pointillés constants est représentée celle des indices extraordinaires pour la fréquence fondamentale, définie par l'indice ordinaire  $\sqrt{\epsilon_{(2o)}(\omega)} = 1,4942$  sur l'axe  $z$  et l'indice extraordinaire  $\sqrt{\epsilon_{(2e)}(\omega)} = 1,4603$  sur l'axe des  $x$ . En traits pointillés alternés est représentée celle des indices ordinaires pour le second harmonique avec  $\sqrt{\epsilon_{(2o)}(2\omega)} = 1,5129$ , l'indice ordinaire à  $2\omega$ .  $\vec{E}_i$  est une onde incidente de l'air sur le KDP avec un angle  $\theta_i$  et un vecteur d'onde  $\vec{K}_i$  dont la composante suivant  $x$  est  $\vec{v}$ .  $\vec{P}^{nl}$  de vecteurs d'onde  $\vec{K}_{nl}$  et  $\vec{E}_{(2)}$  de vecteurs d'onde  $\vec{K}_{(2)}$  sont respectivement la polarisation non-linéaire et l'onde homogène du champ total transmis au second harmonique.

- b) L'influence de la distance d'observation est représenté pour trois angles d'incidence différents sur la figure B.3. Pour les trois angles, ce sont les représentations de fonction sinus, toutes les trois nulles pour  $z_d = 0$ . En ce point, l'accord de phase ne peut pas être obtenu et ce quelque soient les autres paramètres excepté biensûr le cas  $\epsilon_{(2)}(2\omega) = \epsilon_{(2)}(\omega)$ . Sinon, la même remarque que pour l'influence de l'angle d'incidence est valable. C'est-à-dire, il n'existe aucune distance d'observation pour laquelle il existe un accord de phase quelque soient les autres paramètres.

Pour conclure ce paragraphe, nous pouvons dire que, dans notre cas, Nous ne pouvons pas avoir de phénomène d'exaltation de champ de second harmonique car  $\epsilon_{(2)}(2\omega) \neq \epsilon_{(2)}(\omega)$  et ce, quelque soit l'angle d'incidence.

ANNEXE B. DISCUSSION SUR L'ACCORD DE PHASE DANS LE KDP  
 POUR LA CONFIGURATION DITES DE BLOEMBERGEN.

---

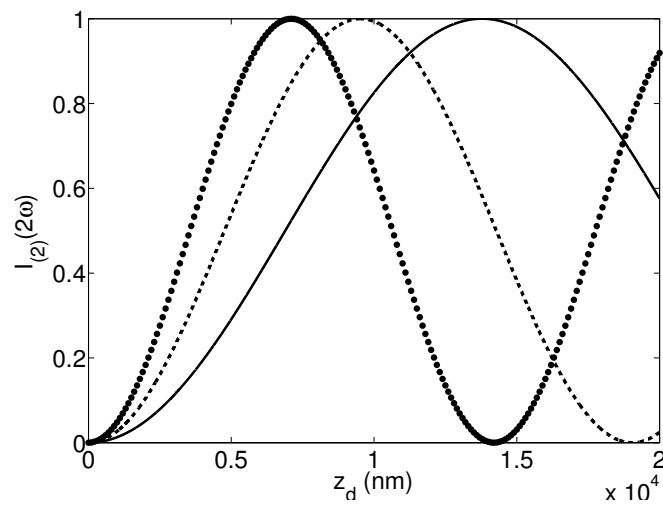


FIG. B.3: Variation, en fonction de la distance de détection  $z_d$ , de l'efficacité transmise dans le milieu non-linéaire à l'ordre zéro de perturbation,  $I_{(2)}(2\omega)$  pour trois angles d'incidence : en pointillés  $\theta = \frac{\pi}{3}$  rad, en ligne discontinue  $\theta = \frac{2\pi}{9}$  rad et en ligne continue  $\theta = \frac{\pi}{18}$  rad. L'efficacité est normalisée par rapport à son maximum. Ces courbes sont réalisées pour la longueur d'onde  $\lambda = 1064$  nm.





---

## Références

---

- [1] D. COURJON & C. BAINIER, in *Le champ proche optique Théorie et applications*, springer, ed., (2001).
- [2] D. COURJON, *Near-Field Microscopy and Near-Field Optics* (World Scientific Pub Co Inc, 2003).
- [3] in *Journal of Microscopy* (twente, 2001), No. pt1/2.
- [4] in *Journal of Microscopy* (Rochester, 2003), No. 3.
- [5] in *Near-Field Optics and Related Techniques (NFO8)* (Seoul, 2004).
- [6] P. FRANKEN, A. HIL, C. PETERS & G. WEINREICH, “Generation of optical harmonics,” *Phys. Rev. Let.* **7**, 118–120 (1961).
- [7] R. TERHUNE, P. MAKER & C. SAVAGE, “Optical harmonic generation in calcite,” *Phys. Rev. Let.* **8**, 404–6 (1962).
- [8] N. BLOEMBERGEN, R. CHANG, S. JHA & C. LEE, “Optical second harmonic generation in reflexion from media with inversion symmetry,” *Phys. Rev.* **174**, 813–22 (1968).
- [9] P. GUYOT-SIONNEST, W. CHEN & Y. SHEN, “General considerations on optical second-harmonic generation from surfaces and interfaces,” *Phys. Rev. B* **33**, 8254–63 (1986).
- [10] J. SIPE, D. MOSS & H. VAN DRIEL, “Phenomenological theory of optical second- and third-harmonic generation from cubic and centrosymmetric crystals,” *Phys. Rev. B* **35**, 1129–41 (1987).
- [11] T. HEINZ, in *Second-Order Nonlinear Optical Effects at Surfaces and Interfaces*, H. Ponath & G. Stegeman, eds., (Elsevier, Amsterdam, 1991).
- [12] J. SIPE, C. SO, M. FUKUI & G. STEGEMAN, “Analysis of second-harmonic generation at metal surfaces,” *Phys. Rev. B* **21**, 4389–402 (1980).
- [13] I. SMOLYANINOV, A. ZAYATS & C. DAVIS, “Near field second harmonic imaging of ferromagnetic and ferroelectric materials,” *Opt. Let.* **22**, 1592–4 (1997).
- [14] S. BOZHEVOLNYI, K. PEDERSEN & B. VOHNSEN, “Near-field optical microscopy of nonlinear susceptibilities,” *Opt. Com.* **150**, 49–55 (1998).

- [15] R. VOLLMER, Q. JIN, H. REGENSBURGER & J. KIRSCHNER, “Second-harmonic generation from magnetic surfaces and thin films,” *J. of Magnetism and Magnetic Materials International* **199**, 611–616 (1999).
- [16] H. SAITO, V. ZAYETS, S. YAMAGATA & K. ANDO, “Magneto-optical studies of ferromagnetism in the II-VI dilutes magnetic semiconductor  $Zn_{1-x}Cr_xTe$ ,” *Phys. Rev. B* **66**, 081201/1–4 (2002).
- [17] S.-C. LIM, “Magnetic second-harmonic generation of an antiferromagnetic film,” *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 1401–10 (2002).
- [18] A. ZAYATS & V. SANDOGHDAR, “Apertureless scanning near-field second-harmonic microscopy,” *Opt. Com.* **178**, 245–49 (2000).
- [19] S. TAKAHASHI & A. ZAYATS, “Near-field second-harmonic generation at a metal tip apex,” *App. Phys. Let.* **80**, 3479–81 (2002).
- [20] A. BOUHELIER, M. BEVERLUIS, A. HARTSCHUH & L. NOVOTNY, “Near-field second-harmonic generation induced by local field enhancement,” *Phys. Rev. Let.* **90**, 013903/1–4 (2003).
- [21] S. BOZHEVILNYI & K. PEDERSEN, “Second Harmonic generation due to surface plasmon localization,” *Surface Science* pp. 384–7 (1997).
- [22] A. ZAYATS, I. SMOLYANINOV & C. DAVIS, “Observation of localized plasmonic excitations in thin metal films with near-field secon-harmonic microscopy,” *Opt. Com.* **169**, 93–96 (1999).
- [23] D. NEWMAN, M. WEARS & R. MATELON, “Plasmon enhanced magneto-optic behaviour in the linear and nonlinear optical fields,” *J. of Magnetism and Magnetic Materials International* **242**, 980–3 (2002).
- [24] D. V. LABEKE & D. BARCHIESI, “Scanning tunneling optical microscopy : a theoretical macroscopic approach,” *J. Opt. Soc. Am. A* **9**, 732–738 (1992).
- [25] L. RAYLEIGH, *Theory of Sound* (Dover, New-York, 1945), Vol. 2.
- [26] P. VAN DEN BERG & J. FOKKEMA, “The Rayleigh hypothesis in the theory of reflection by a grating,” *J. Opt. Soc. Am.* **69**, 27–31 (1979).
- [27] R. DEPINE & M. GIGLI, “Diffraction from corrugated gratings made with biaxial crystals : Rayleigh methods,” *Opt. Com.* **130**, 109–21 (1996).
- [28] G. PARENT, D. VAN-LABEKE & F. BAIDA, “Theoretical study of transient phenomena in near-field optics,” *Journal of Microscopy* **202**, 296–306 (2001).
- [29] F. BAIDA & D. V. LABEKE, “Light transmission by subwavelength annular aperture arrays in metallic films,” *Opt. Com.* **209**, 17–22 (2002).
- [30] A. YARIV & P. YEH, *Optical waves in crystals* (John Wiley & Sons, New york, 1984).
- [31] N. BLOEMBERGEN, *Nonlinear optics* (W.A. Benjamin, New York, 1965).
- [32] J. JACKSON, *Classical electrodynamics* (Jhon Wiley & Sons, New York, 1998).

## RÉFÉRENCES

---

- [33] R. W. BOYD, *Nonlinear optics* (Academic press, Inc, 1992).
- [34] N. BLOEMBERGEN & P. PERSHAN, “Light waves at boundary of non-linear media,” *Phys. Rev.* **128**, 606–22 (1962).
- [35] J. ARMSTRONG, N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING & P. PERSHAN, “Interactions between light waves in nonlinear dielectric,” *Phys. Rev.* **127**, 1918–39 (1962).
- [36] P. PERSHAN, “Nonlinear optical properties of solids : energy considerations,” *Phys. Rev.* **130**, 919–29 (1963).
- [37] F. BROWN, R.E.PARKS & A. SLEEPER, “Nonlinear optical reflection from a metallic boundary,” *Phys. Rev. Let.* **14**, 1029–31 (1965).
- [38] J. RUDNICK & E. STERN, “Second-harmonic radiation from metal surface,” *Phys. Rev. B* **4**, 4274–4290 (1971).
- [39] P. GUYOT-SIONNEST & Y. SHEN, “Local and nonlocal surface nonlinearities for surface optical second-harmonic generation,” *Phys. Rev. B* **35**, 4420–6 (1987).
- [40] Y. SHEN, *The principles of nonlinear optics* (A Wiley-interscience Publication, New York, 1984).
- [41] R. WEAST, *Handbook of lasers* (Chemical Rubber Co., 1971).
- [42] N. BLOEMBERGEN, R. CHANG & C. LEE, “Second harmonic generation of light in reflection from media with inversion symmetry,” *Phys. Rev. Let.* **16**, 986–89 (1966).
- [43] P. GUYOT-SIONNEST & Y. SHEN, “Bulk contribution in surface second-harmonic generation,” *Phys. Rev. B* **38**, 7985–9 (1988).
- [44] K. BENNEMANN, *Nonlinear optics in metals* (Clarendon press.Oxford, New York, 1998).
- [45] H. TOM & G. AUMILLER, “Observation of rotational anisotropy in the second-harmonic generation from a metal surface,” *Phys. Rev. B* **33**, 8818–21 (1986).
- [46] P. FISHER & A. BUCKINGHAM, “Surface second-order nonlinear optical activity,” *J. Opt. Soc. Am. A* **15**, 2951–7 (1998).
- [47] G. AGARWAL & S. JHA, “Surface enhanced second harmonic generation at a metallic grating,” *Phys. Rev. B* **26**, 482–96 (1982).
- [48] S. ENOCH, “Second-harmonic scattered light from one-dimensional rough thin films,” *Opt. Com.* **148**, 137–43 (1998).
- [49] D. MAYSTRE, M. NEVIÈRE, R. REINISCH & J. COUTAZ, “Integral theory for metallic gratings in nonlinear optics and comparaison with experimental results on second-harmonic generation,” *J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 338–46 (1988).
- [50] E. POPOV & M. NEVIÈRE, “Surface-enhanced second-harmonic generation in nonlinear corrugated dielectrics : new theoretical approaches,” *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 1555–64 (1994).

- [51] M. NEVIÈRE, P. VINCENT, D. MAYSTRE, R. REINISCH & J. COUTAZ, “Differential theory for metallic gratings in nonlinear optics : second harmonic generation,” *J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 330–6 (1988).
- [52] G. D’AGUANNO, M. CENTINI, C. SIBILIA, M. BERTOLOTTI, M. BLOEMER & C. BOWDEN, “Generalized coupled-mode theory for  $\chi^{(2)}$  interactions in finite multilayered structures,” *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 2111–21 (2002).
- [53] W. NAKAGAWA, R. TYAN & Y. FAINMAN, “Analysis of enhanced second-harmonic generation in periodic nanostructures using modified rigorous coupled-wave analysis in the undepleted-pump approximation,” *J. Opt. Soc. Am. A* **19**, 1919–28 (2002).
- [54] J. HAUS, B. SOON, M. SCALORA, C. SIBILIA & I. MEL’NIKOV, “Coupled-mode equations for Kerr media with periodically modulated linear and nonlinear coefficients,” *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 2282–91 (2002).
- [55] R. FIKRI, D. BARCHIESI, F. H’DHILI, R. BACHELOT, A. VIAL & P. ROYER, “Modeling recent experiments of apertureless near-field optical microscopy using 2D finite element method,” *Opt. Com.* **221**, 13–22 (2003).
- [56] R. JOSEPH & A. TAFLOVE, “FDTD Maxwell’s equations models for nonlinear electrodynamics and optics,” *IEEE Transactions on Antennas and Propagation* **45**, 364–74 (1997).
- [57] M. GOORJIAN, A. TAFLOVE & M. J. ANS S.C. HAGNESS, “Computational modeling of femtosecond optical solitons from Maxwell’s equations,” *IEEE J. Quantum Electronics* **28**, 2416–22 (1992).
- [58] A. BOURGEADE & E. FREYSZ, “Computational modeling of second harmonic generation by solution of full-wave vector Maxwell equations,” *J. Opt. Soc. Am. B* **17**, 226–34 (2000).
- [59] T.-W. LEE & S. HAGNESS, “Pseudospectral time-domain methods for modeling optical wave propagation in second-order nonlinear materials,” *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 330–342 (2004).
- [60] D. V. LABEKE, A. VIAL & D. BARCHIESI, “Near-field theoretical study of a magneto-optical grating,” *Ultramicroscopy* **61**, 51–5 (1995).
- [61] D. V. LABEKE, A. VIAL, V. NOVOSAD, Y. SOUCHE, M. SCHLENKER & A. D. SANTOS, “Diffraction of light by corrugated magnetic grating : experimental results and calculation using a perturbation approximation to the Rayleigh method,” *Opt. Com.* **124**, 519–28 (1996).
- [62] R. PETIT, *Electromagnetic Theory of Gratings* (Springer-Verlag, New York, 1980).
- [63] D. MAYSTRE, in *Progress in Optics XXI* (North-Holland Physics Publishing, 1984), Chap. Rigorous vector theories of diffraction gratings.
- [64] M. BAGIEU & D. MAYSTRE, “Waterman and Rayleigh methods for diffraction grating problems : extension of the convergence domain,” *J. Opt. Soc. Am. A* pp. 1566–76 (1998).

- [65] R. CARMINATI & J. GREFFET, “Influence of dielectric contrast and topography on the near field scattered by an inhomogeneous surface,” *J. Opt. Soc. Am. A* **12**, 2716–2725 (1995).
- [66] M. NEVIÈRE, E. POPOV, R. REINISCH & G. VITRANT, *Electromagnetic resonances in nonlinear optics* (Gordon and Breach science publisher, 2000).
- [67] D. BARCHIESI & D. V. LABEKE, “A perturbative diffraction theory of a multilayer system : applications to near-field optical microscopy SNOM and STOM,” *Ultramicroscopy* **57**, 196–203 (1995).
- [68] P. YEH, “Electromagnetic propagation in birefringent layered media,” *J. Opt. Soc. Am. A* **69**, 742–755 (1979).
- [69] F. ABELÈS, “Investigations on the propagation of sinusoidal electromagnetic waves in stratified media. Application to thin films,” *Ann. Phys. Paris* **5** **596**, 706–782 (1950).
- [70] M. BORN & L. WOLF, *Principles of Optics* (Pergamon Press, Oxford, 1959).
- [71] J. VIGOUREUX, “Use of Einstein’s addition law in studies of reflection by stratified planar structures,” *J. Opt. Soc. Am. A* **9**, 1313 (1992).
- [72] K. KUNZ & R. J. LUEBBERS, *The finite difference time domain method for electromagnetics* (CRC press, 1993).
- [73] A. TAFLOVE & S. HAGNESS, *Computational electrodynamics : The finite difference time domain method*, 2nd edition ed. (Artech House, Northwood, 2000).
- [74] K. YEE, “Numerical Solution of Initial Boundary Value Problems involving Maxwell’s Equations,” *IEEE Trans. Antennas and Propagation* **14**, 302–7 (1966).
- [75] J. SCHNEIDER & S. HUDSON, “The finite-difference time domain method applied to anisotropic material,” *IEEE trans. antennas and propagation* **41**, 994–9 (1993).
- [76] J. MA, J. XU & Z. CHEN, “Nonlinear PML for absorption of nonlinear electromagnetic waves,” *IEEE MTT-S Int. Microwave Symp.* **3**, 1381–4 (1997).
- [77] G. LAZZI, “Unconditionally stable D-H FDTD formulation with anisotropic PML boundary conditions,” *IEE Mic. Wir. Comp. Let.* **11**, 149–51 (2001).
- [78] J. BERENGER, “A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves,” *J. Comp. Phy.* **114**, 185–200 (1994).
- [79] J. BERENGER, “A perfectly matched layer for free-space simulation in finite-difference computer codes,” *Ann. Telecomm.* **51**, 39–46 (1996).
- [80] J. BERENGER, “Three-dimensional perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves,” *J. Comp. Phy.* **127**, 363–79 (1996).
- [81] S. HAITAO, K. KURODA & Y. SUZUKI, “Non-uniform grid finite-difference time-domain method for the simulation of electromagnetic distributions,” *IEEE Antennas and Propagation Society International Symposium* **1**, 124–7 (1996).

- [82] S. BOZHEVOLNYI, K. PEDERSEN, T. SKETTRUP, X. ZHANG & M. BELMOTE, “Far- and Near-field second-harmonic imaging of ferroelectric domain walls,” *Opt. Com.* **152**, 221–4 (1998).
- [83] I. SMOLYANINOV, C. LEE & C. DAVIS, “Near field second harmonic imaging of lead zirconate titanate piezoceramic,” *App. Phys. Let.* **74**, 1942–4 (1999).
- [84] V. DMITRIEV, G. GURZADYAN & D. NIKOGOSYAN, *Handbook of nonlinear optical crystals* (Springer, 1999), Vol. 64.
- [85] D. V. LABEKE & D. BARCHIESI, “Probes for scanning tunneling optical microscopy : a theoretical comparison,” *J. Opt. Soc. Am. A* **10**, 2193–201 (1993).
- [86] V. BHANTHUMNAVIN & C. LEE, “Optical second harmonic generation at total reflection in a potassium dihydrogen phosphate crystal,” *Phys. Rev. A* **50**, 2579–86 (1994).
- [87] Z. LI, B. GU & G. YANG, “Strong localization of near field second harmonic generation for non linear mesoscopic surface structures.,” *Phys. Rev. B* **59**, 12622–6 (1999).
- [88] A. XIE, B. GU, G. YANG & Z. ZHANG, “Image of near-field second-harmonic generation for inversely poled mesoscopic  $LiNbO_3$ ,” *Phys. Rev. B* **63**, 054104/1–6 (2001).
- [89] S. BOZHEVOLNYI & V. LOZOVSKI, “Second-harmonic scanning optical microscopy of individual nanostructures,” *Phys. Rev. B* **65**, 235420/1–10 (2002).
- [90] T. GROSJEAN & D. COURJON, “Polarization filtering induced by imaging systems : effect on image structure,” *Phys. Rev. E* **67**, 46611/1–6 (2003).
- [91] J. GREFFET & R. CARMINATI, “Image formation in near-field optics,” *Progress-in-Surface-Science* **56**, 133–237 (1997).
- [92] J. PORTO, R. CARMINATI & J. GREFFET, “Theory of electromagnetic field imaging and spectroscopy in scanning near-field optical microscopy,” *J. App. Phys.* **88**, 4845–4850 (2000).
- [93] L. NOVOTNY, E. SÁNCHEZ & X. XIE, “Near-field optical imaging using metal tips illuminated by higher-order Hermite-Gaussian beams,” *Ultramicroscopy* **71**, 21–9 (1998).
- [94] V. KONOPSKY, “Operation of scanning plasmon near field microscope with gold and silver tips in tapping mode : demonstration of submicron resolution.,” *Opt. Com.* **185**, 83–93 (2000).
- [95] H. CORY, A. BOCCARA, J. RIVOAL & A. LAHRECH, “Electric field intensity variation in the vicinity of a perfectly conducting conical probe : application to near-field microscopy,” *Mic. Opt. tech. let.* **18**, 120–4 (1998).
- [96] L. NOVOTNY, M. BERVERLUIS, K. YOUNGWORTH & T. BROWN, “Longitudinal field modes probed by single molecules,” *Phys. Rev. Let.* **86**, 5251–4 (2001).
- [97] L. NOVOTNY, R. BIAN & X. XIE, “Theory of nanometric optical tweezers,” *Phys. Rev. Let.* **79**, 645–8 (1997).

- [98] E. SÁNCHEZ, L. NOVOTNY & X. XIE, “Near-field fluorescence microscopy based on two-photon excitation with metal tips,” *Phys. Rev. Lett.* **82**, 14014–7 (1999).
- [99] Y. KAWATA, C. XU & W. DENK, “Feasibility of molecular-resolution fluorescence near-field microscopy using multi-photon absorption and field enhancement near a sharp tip,” *J. App. Phys.* **85**, 1294–301 (1999).
- [100] A. ZAYATS & V. SANDOGHDAR, “Apertureless near-field optical microscopy via local second-harmonic generation,” *Journal of Microscopy* **202**, 94–9 (2001).
- [101] I. SMOLYANINOV, A. ZAYATS & C. DAVIS, “Near field second harmonic generation from a rough metal surface,” *Phys. Rev. B* **56**, 9290–3 (1997).
- [102] V. SHALAEV & A. SARYCHEV, “Non-linear optics of random metal-dielectric film,” *Phys. Rev. B* **57**, 13265–88 (1998).
- [103] J. GREFFET & C. BAYLARD, “Nonspecular astigmatic reflection of a 3D gaussian beam on an interface,” *Opt. Com.* **93**, 271–6 (1992).
- [104] W. NASALSKI, “Longitudinal and transverse effects of nonspecular reflection,” *J. Opt. Soc. Am. A* **13**, 172–81 (1996).
- [105] F. BAIDA, D. V. LABEKE & J. VIGOUREUX, “Theoretical study of near-field surface plasmon excitation, propagation and diffraction,” *Opt. Com.* **171**, 317–31 (1999).
- [106] F. BAIDA, D. BARCHIESI & D. VANLABEKE, “Near-field effects of focused illumination on periodic structures in scanning tunneling optical microscopy,” *Opt. Lett.* **24**, 1587–9 (1999).
- [107] F. BAIDA, D. V. LABEKE & J.-M. VIGOUREUX, “Numerical study of the displacement of a three-dimensional Gaussian beam transmitted at total internal reflection. Near-field applications,” *J. Opt. Soc. Am. A* **17**, 858–66 (2000).
- [108] T. DRISCOLL & D. GUIDOTTI, “Symmetry analysis of second-harmonic generation in silicon,” *Phys. Rev. B* **28**, 1171–3 (1983).
- [109] T. GROSJEAN, D. COURJON & M. SPAJER, “An all-fiber device for generating radially and other polarized light beams,” *Opt. Com.* **203**, 1–5 (2002).
- [110] E. PALIK, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic Press, 1997).
- [111] T. HEINZ, M. LOY & W. THOMPSON, “Study of Si(111) surfaces by optical second-harmonic generation : reconstruction and surface Phase Transformation,” *Phys. Rev. Lett.* **54**, 63–6 (1985).
- [112] Y. AN & S. CUNDIFF, “Bulk and Surface Contributions to Resonant Second-Harmonic Generation from Si(001) surfaces,” *Appl. Phys. Lett.* **81**, 5174 (2002).
- [113] Y. Q. AN, thesis, Faculty of the Graduate School of the University of Colorado, 2003.
- [114] J. SEIDEL, S. GRAFSTRM, L. ENG, & L. BISCHOFF, “Surface Plasmon Transmission Across Narrow Grooves in Thin Silver Films,” *Appl. Phys. Lett.* **82**, 1368 (2003).

## RÉFÉRENCES

---

- [115] A. ZAYATS, T. KALKBRENNER, V. SANDOGHDAR & J.MLYNEK, “Second harmonic generation from individual surface defects under local excitation,” *Phys. Rev. B* **61**, 4545–8 (2000).
- [116] R. CHANG & N. BLOEMBERGEN, “Experimental verification of laws for the reflected intensity of second-harmonic light,” *Phys. Rev.* **144**, 775–80 (1966).



---



---

## Table des figures

---

4.1	Exemple de systèmes multicouches. Représentation de trois couches successives. (a) Les différentes couches sont dénotées par les indices $j$ et leur épaisseur respective est notée $e_{(j)}$ . La position du plan moyen de la surface séparant les milieux $j$ et $j - 1$ est repérée par $z_{(j)}$ . (b) $h_{(j)}$ représente la hauteur des rugosités de la surface $j$ . $b_{(j)x}$ et $b_{(j)y}$ sont les dimensions du motif du réseau de la surface $j$ respectivement pour les axes $x$ et $y$ . Les périodes des réseaux $a_x$ et $a_y$ , respectivement pour les axes $x$ et $y$ , sont les mêmes pour toutes les surfaces. . . . .	49
4.2	Séparation des champs présents dans une couche $j$ pour le premier et le second harmonique. Les parties montantes sont repérées par un indice $+$ et l'indice $-$ dénote celles descendantes. Dans le cas considéré, la couche $j - 1$ est le milieu incident et la couche $j + 1$ celui de transmission. Ces deux milieux sont linéaires isotropes, alors que le milieu $j$ est le seul à être non linéaire tout en restant isotrope. . . . .	57
4.3	Représentation des couches actives non linéaires. Ce sont les couches comprises entre les traits montrant les surfaces et les traits pointillés suivant le profil de la surface. La couche active inférieure est notée $jb$ et la supérieure $jh$ . Les champs à l'intérieur de ces deux couches sont indiqués de la même façon. L'épaisseur des deux couches est notée $\delta$ . Elle est de l'ordre du nanomètre. . . . .	66
4.4	Représentation de la maille élémentaire $(i, j, k)$ faisant partie de l'ensemble formant l'espace parallélépipédique discrétisé dans l'algorithme de Yee. $(i, j, k)$ sont les coordonnées discrétisées de la maille suivant les axes respectifs $(x, y, z)$ . L'origine du repère discrétisé est assimilée à un des sommets de la boîte formant l'espace. Les dimensions de la maille sont notées $\Delta_x, \Delta_y, \Delta_z$ . Les composantes des champs électriques et magnétiques pour la fréquence $\omega_m$ sont indiquées pour la maille $(i, j, k)$ . Les autres flèches dénotent les composantes des champs dans les mailles adjacentes. Les composantes des champs dans chaque cellule sont données pour une permittivité électrique linéaire propre à la cellule $\epsilon(i, j, k)$ . . . . .	72

4.5	Enchaînement temporel des calculs dans l'algorithme de Yee pour le cas d'une propagation unidimensionnelle suivant $x$ . Les relations spatiales entre les champs magnétique et électrique se retrouvent sur l'axe horizontal alors que les relations temporelles sont sur un axe vertical. $\Delta t$ est le pas de discrétisation temporelle. La position des champs est la même quelque soit la fréquence regardée. . . . .	73
4.6	Discrétisation de l'espace pour le cas à deux dimensions de l'algorithme de Yee . . . . .	79
4.7	Champs aux limites d'une fenêtre de calcul à deux dimensions . . . . .	80
4.8	Position des milieux absorbants autour de la fenêtre de calcul dans la méthode des couches parfaitement adaptées . . . . .	82
4.9	Bord de la fenêtre de calcul en $z = 0$ avec une couche absorbante délimitée par un miroir parfait. . . . .	83
4.10	Schéma récapitulatif de la décomposition de l'espace dans la méthode FDTD complétée par les couches absorbantes de la PML . . . . .	85
5.1	Schéma du réseau considéré vu en perspective (a) et en coupe ( $x$ - $z$ ) (b). $\vec{E}_i$ est l'onde incidente de pulsation $\omega$ , $\theta_i$ est l'angle d'incidence et $\vec{K}_i$ le vecteur d'onde incident. La surface $z=f(x)$ sépare l'air ( $z<0$ ) du KDP ( $z>0$ ). $a$ est la période du réseau et $b$ la largeur du créneau et $c = \frac{b}{a}$ . . . . .	93
5.2	Schéma montrant les angles et polarisations des différents harmoniques temporels dans l'air et le KDP, deux milieux séparés par une interface plane (à gauche des pointillés le premier harmonique, à droite le second). $\vec{E}_i$ est l'onde incidente, les différents $\vec{E}(\omega_m, t)$ , $\theta_i(\omega_m)$ et $\vec{K}_i(\omega_m)$ sont respectivement les champs, les angles de propagation par rapport à l'axe $z$ et les vecteurs d'ondes dans les milieux $i$ pour les harmoniques temporels $m$ . $\vec{\mathbb{P}}^{nl}(2\omega)$ est la polarisation non-linéaire, $\theta_{nl}$ l'angle de propagation de $\vec{\mathbb{P}}^{nl}$ par rapport à l'axe $z$ et $\vec{K}_{nl}$ le vecteur d'onde de la polarisation non-linéaire. . . . .	95
5.3	Une sonde de microscope SNOM balaye suivant l'axe des $x$ à hauteur constante $z_d$ une surface éclairée par un champ à la fréquence $\omega$ . . . . .	97
5.4	(a) Différentes allures dépendant de $\theta_i$ de l'intensité réfléchie à la fréquence du second harmonique $I_{(1)}(2\omega)$ normalisée par rapport à l'intensité incidente. Les intensités ont été tracées avec des lignes continues pour $\theta_i = 0$ Deg, des lignes discontinues pour $\theta_i = 40$ Deg et des lignes pointillées pour $\theta_i = 80$ Deg. (b) Différentes allures dépendant de $\theta_i$ de l'intensité transmise à la fréquence du second harmonique $I_{(2)}(2\omega)$ normalisée par rapport à l'intensité incidente. Les intensités ont été tracées avec des lignes continues pour $\theta_i = 0$ Deg, des lignes discontinues pour $\theta_i = 15$ Deg et des lignes pointillées pour $\theta_i = 20$ Deg. Pour les deux figures, les paramètres de la surface sont $a = 100$ nm, $h = 10$ nm et $c = \frac{1}{5}$ . La longueur d'onde et les hauteurs de détection dans l'air et le KDP sont respectivement $\lambda = 1064$ nm, $z_{d(air)} = -10$ nm et $z_{d(KDP)} = 10$ nm. Les traits verticaux sur chaque figure représentent la position du profil de la surface. . . . .	98

5.5 (a) Différentes allures dépendant de  $z_{d(air)}$  de l'intensité réfléchie à la fréquence du second harmonique  $I_{(1)}(2\omega)$  normalisée par rapport à l'intensité incidente. Les intensités ont été tracées avec des lignes continues pour  $z_d = -10$  nm, des lignes discontinues pour  $z_d = -12$  nm et des lignes pointillées pour  $z_d = -15$  nm. (b) Différentes allures dépendant de  $z_{d(KDP)}$  de l'intensité transmise à la fréquence du second harmonique  $I_{(2)}(2\omega)$  normalisée par rapport à l'intensité incidente. Les intensités ont été tracées avec des lignes continues pour  $z_d = 10$  nm, des lignes discontinues pour  $z_d = 12$  nm et des lignes pointillées pour  $z_d = 15$  nm. Pour les deux figures, les paramètres de la surface sont  $a = 100$  nm,  $h = 10$  nm et  $c = \frac{1}{5}$ . La longueur d'onde et l'angle d'incidence sont respectivement  $\lambda = 1064$  nm,  $\theta_i = 0$  Deg. Les traits verticaux sur chaque figure représentent la position du profil de la surface. . . . . 99

5.6 Comparaisons des résultats des méthodes FDTD (lignes continues) et perturbative (lignes discontinues) pour un réseau unidimensionnel de paramètres  $h = 20$  nm,  $a = 100$  nm,  $c = \frac{1}{5}$  éclairé par une onde incidente de longueur d'onde fondamentale  $\lambda = 1064$  nm. (a) Intensité réfléchie dans le milieu d'incidence détectée pour  $z_d = 12$  nm dans l'air. (b) Intensité transmise dans le milieu d'incidence détectée pour  $z_d = 12$  nm dans le KDP. . . . 101

5.7 Une sonde de microscope STOM balaye dans le plan l'axe  $(x, y)$  à une hauteur constante  $z_d$  au dessus d'une surface séparant un substrat de permittivité relative  $\epsilon_s = 2,25$  sur laquelle repose un pavé de KDP taillé de tel façon que son axe optique soit confondu avec l'axe des  $z$ . Ce pavé est de dimension  $b_x \times b_y \times h$  nm ( $b_x = b_y = 200$  nm et  $h = 50$  nm). L'éclairage se fait depuis le substrat grâce à une onde plane de pulsation  $\omega$  ( $\lambda = 1064$  nm) dont l'angle d'incidence est surcritique ( $\theta = 60$  Deg). . . . . 103

5.8 Intensité détectée par une pointe diélectrique quasi ponctuelle balayant la surface à une hauteur  $z_d = h + 20$  nm du plan de référence. L'objet est centré en  $x = y = 0$  nm. L'angle d'incidence est  $60^\circ$  et la pulsation fondamentale est  $\omega = 1064$  nm. (a) Intensité dans l'air à la fréquence fondamentale normalisée par rapport à l'intensité incidente. (b) Intensité dans l'air pour le second harmonique normalisée par rapport à l'intensité incidente. . . . . 104

5.9 Résultats obtenus dans l'article[87]. (a) intensité à la fréquence fondamentale normalisée par rapport à l'intensité incidente. (b) intensité à la fréquence du second harmonique normalisée par rapport à l'intensité incidente. . . . . 104

5.10 Coupe des intensités de la figure 5.8 dans la direction de l'axe  $x$  pour  $y = 0$  nm. Les lignes continues représentent les résultats obtenus grâce à la méthode perturbative et celles discontinues grâce à la FDTD. (a) Coupe de l'intensité dans l'air à la fréquence fondamentale normalisée par rapport à l'intensité incidente. (b) Coupe de l'intensité dans l'air pour le second harmonique normalisée par rapport à l'intensité incidente. . . . . 105

5.11 Intensité détectée par une pointe diélectrique quasi ponctuelle balayant la surface à un hauteur  $z_d = h + 20$  nm du plan de référence. Polarisation incidente (TE). L'objet est centré en  $x = y = 0$  nm. (a) résultat de la méthode perturbative. (b) Résultat de l'article [87]. . . . . 106

5.12 Schéma de l'expérience simulée, un trait de SBN infini suivant  $y$  éclairé par une onde fondamentale de longueur d'onde  $\lambda = 1064$  nm. L'éclairage se fait depuis le substrat grâce à une onde plane dont l'angle d'incidence est surcritique ( $\theta = 60$  Deg). Une sonde diélectrique de microscope SNOM recouverte d'argent balaye sur l'axe  $x$  à une hauteur constante  $z_d = h + 20$  nm au dessus d'une surface séparant un substrat de permittivité relative  $\epsilon_s = 2,25$  sur laquelle repose un pavé de SBN taillé de tel façon que son axe optique est confondu avec l'axe des  $z$ . ( $b = 200$  nm et  $h = 50$  nm). Le diamètre d'ouverture de la pointe est  $D = 20$  nm et son demi angle d'ouverture au sommet est  $a = 16^\circ$ . . . . . 107

5.13 Intensité détecté par une pointe diélectrique, quasi ponctuelle, balayant la surface à un hauteur  $z_d = h + 20$  nm du plan de référence. Cette intensité est normalisée par rapport à l'intensité incidente à la fréquence fondamentale. L'objet est un pavé de SBN centré en  $x = 0$  nm. Le trait discontinu représente le résultat en considérant une pointe quasi ponctuelle (c.à.d, le module carré du champ électrique). Le trait continu représente la simulation de la même expérience mais avec une détection grâce une pointe diélectrique recouverte d'une épaisseur d'argent de  $ep = 100$  nm avec une ouverture à son extrémité de diamètre  $D = 20$  nm. . . . . 109

6.1 Modèle de pointe métallique. La pointe est formée d'un cône plein de demi angle d'ouverture  $a$ . Ce cône est terminé en son sommet par un hémisphère plein de rayon  $r$ . L'axe de symétrie de la pointe est confondu avec l'axe des  $z$ . . . . . 114

6.2 Schéma de l'expérience modélisée. La pointe en or de demi angle d'ouverture  $a$  est placée à une distance  $d$  d'une surface séparant l'air et un substrat de permittivité  $\epsilon_s$ . Cette pointe est illuminée depuis le substrat par un faisceau gaussien dans le mode  $HG_{00}$ . Initialement, ce faisceau se propage suivant l'axe  $x$  avec une polarisation perpendiculaire à l'axe de la pointe (axe  $x$ ). Il est ensuite focalisé très fortement au niveau de la surface avec un beam waist  $w_0 = 415$  nm. . . . . 114

6.3 Carte de la puissance quatrième du module des composantes transverses et longitudinales du champ électrique transmis dans l'air. Les résultats sont donnés dans un plan perpendiculaire à l'axe  $z$  éloigné d'une distance  $d = 10$  nm de la surface dans l'air. (a) Puissance quatrième du module de la composante  $x$  du champ électrique pour le premier harmonique  $E_x(\omega, t)$ . Les unités sont normalisées par rapport au maximum de la fonction. (b) Puissance quatrième du module de la composante  $z$  du champ électrique pour le premier harmonique  $E_z(\omega, t)$ . Les unités correspondent à une normalisation par rapport au maximum de la puissance quatrième de la composante  $x$ . . . . . 116

TABLE DES FIGURES

---

- 6.4 Carte du module carré du champ électrique fondamental dans le plan  $(x - z)$  pour  $y = 0$ . La pointe se situe à la position du maximum de la composante  $E_z(\omega, t)$ . Un changement de variable est opéré pour mettre l'origine au sommet de la pointe. Les unités sont normalisées par rapport au maximum du module carré du champ électrique fondamental sans la pointe. . . . . 117
- 6.5 Carte du module carré du champ électrique à la fréquence du second harmonique dans le plan  $(x - z)$  pour  $y = 0$ . La pointe se situe à la même position que pour la fréquence fondamentale. Le même changement de variable est opéré. Les unités sont normalisées par rapport au maximum du module carré du champ électrique fondamental sans la pointe. 118
- 6.6 Comparaison entre la puissance quatrième du module de la composante longitudinale du champ électrique fondamental (trait plein) et le module carré du champ électrique au second harmonique en bout de pointe sur l'axe  $y = 0$  à une hauteur constante de la surface  $d = 10$  nm (étoiles). Les étoiles issues du calcul FDTD pour le champ électrique au second harmonique représentent différentes positions de la pointe durant le balayage de la surface (SH : second Harmonic). La ligne continue est la puissance quatrième du module de la composante longitudinale du champ électrique fondamental (FH : First Harmonic). Les unités pour chaque grandeur sont normalisées par rapport à leur maximum respectif. . . . 119
- 6.7 Carte des modules carrés des champs dans le plan  $(x - y)$  à une distance  $e = 5$  nm sous la pointe. La pointe est placée au maximum de la composante  $E_z(\omega, t)$  à une hauteur  $d = 10$  nm de la surface. Un changement de variable est opéré pour que l'origine du repère soit au bout de la pointe. Les unités sont normalisées de la même façon que pour les figures 6.4 et 6.5. . . . . 120
- 6.8 Comparaison entre les confinements des modules carrés du champ électrique fondamental et du champ électrique au second harmonique dans le plan  $(x - y)$  suivant l'axe  $y = 0$  à une distance de la pointe  $e = 5$  nm. Les unités des différentes grandeurs sont normalisées par rapport aux maxima respectifs des résultats des figures 6.7. La ligne continue dénote la décroissance du module carré à la fréquence fondamentale. La ligne discontinue représente celui du second harmonique. . . . . 121
- 6.9 Comparaison entre les confinements des modules carrés du champ électrique fondamental et du champ électrique au second harmonique dans la direction  $z$  pour  $x = 0$ . Les unités des différentes grandeurs sont normalisées par rapport aux maxima respectifs des résultats des figures 6.4 et 6.5. La ligne continue dénote la décroissance du module carré à la fréquence fondamentale. La ligne discontinue représente celui du second harmonique. . . . . 121

6.10 Schéma de l'expérience modélisée. La pointe en or de demi angle d'ouverture  $a$  est placée à une distance  $d$  d'une surface séparant l'air et un substrat de permittivité  $\epsilon_s$ . Cette pointe est illuminée depuis le substrat par un faisceau gaussien polarisé radialement  $E_r$  et d'angle de convergence  $b = 45^\circ$  et de longueur d'onde  $\lambda = 830$  nm. Ce faisceau converge au niveau de la surface sous la pointe avec un beam waist  $w_0 = 5$   $\mu\text{m}$ . L'onde transmise est évanescente. 123

6.11 Carte de la puissance quatrième du module des composantes transverses et longitudinales du champ électrique transmis dans l'air sous la forme d'une onde évanescente. Les résultats sont donnés dans un plan perpendiculaire à l'axe  $z$  éloigné d'une distance  $d = 10$  nm de la surface dans l'air. (a) Puissance quatrième du module de la composante  $r$  du champ électrique pour le premier harmonique  $E_r(\omega, t)$  normalisée par rapport à son maximum dans le plan considéré. (b) Puissance quatrième du module de la composante  $z$  du champ électrique pour le premier harmonique  $E_z(\omega, t)$  normalisé par rapport au maximum de la composante transverse dans le plan considéré. . . . . 124

6.12 Carte du module carré du champ électrique fondamental dans le plan  $(r - z)$ . La pointe se situe en  $r = 0$  et à  $d = 10$  nm de la surface. Les unités sont normalisées par rapport au maximum du module carré du champ électrique fondamental sans la pointe à la longueur d'onde  $\lambda = 830$  nm. . . . . 125

6.13 Carte du module carré du champ électrique pour le second harmonique dans le plan  $(r - z)$ . La pointe se situe en  $r = 0$  et à  $d = 10$  nm de la surface. Les unités sont normalisées par rapport au maximum du module carré du champ électrique fondamental sans la pointe à la longueur d'onde  $\lambda = 830$  nm. . . . . 126

6.14 Carte du module carré du champ électrique fondamental dans le plan  $(r - z)$ . La pointe en verre se situe en  $r = 0$  et à  $d = 10$  nm de la surface. Les unités sont normalisées par rapport au maximum du module carré du champ électrique fondamental sans la pointe à la longueur d'onde  $\lambda = 830$  nm. . . . . 128

6.15 schéma représentant l'expérience de génération de second harmonique sur surface plane. L'onde incidente  $E_i$  est un faisceau gaussien polarisé (TM) de longueur d'onde  $\lambda$ . Cette onde se propage depuis un diélectrique de permittivité  $\epsilon_d$  sur une couche mince de matériau centrosymétrique de permittivité  $\epsilon_c$ . Cette couche est d'épaisseur  $e$  et de largeur  $l$ . . . . . 130

6.16 Module carré du champ électrique résultant de la réflexion d'un faisceau gaussien, de longueur d'onde  $\lambda = 830$  nm et de beam waist  $w_0 = 3$   $\mu\text{m}$ , sur une couche d'or d'épaisseur  $e = 60$  nm et de permittivité  $\epsilon_c(\omega) = -29,33 + 2,04i$  et  $\epsilon_c(2\omega) = -1,15 + 6,39i$ . (a) Résultat à la fréquence fondamentale. Les unités sont normalisées par rapport au module carré du champ incident. (b) Résultat au second harmonique. Les unités sont normalisées par rapport au maximum de l'intensité fondamentale obtenue avec une couche de métal. . 132

TABLE DES FIGURES

---

6.17 Module carré du champ à la fréquence fondamentale ( $\lambda = 632,8$ ) dans la configuration de Kretschmann. La couche métallique est en argent ( $\epsilon_c(\omega) = -17,6 + 0,67i$ ). Elle se situe en  $z = 0$ . L'angle d'incidence est  $\theta = 42,81^\circ$ . L'épaisseur de la couche est  $e = 60$  nm et sa largeur  $l = 20$   $\mu\text{m}$ . Les unités sont normalisées par rapport à l'intensité du faisceau incident. (a) Vue d'ensemble permettant d'apprécier les faisceaux incident et réfléchi dans le substrat ( $z < 0$ ) ainsi que le plasmon de surface dans l'air ( $z > 0$ ). (b) Zoom de la figure (a) sur le plasmon de surface. . . . . 133

6.18 Module carré du champ au second harmonique dans la configuration de Kretschmann. La couche métallique est en argent ( $\epsilon_c(2\omega) = -1,13 + 0,45i$ ). Elle se situe en  $z = 0$ . L'épaisseur de la couche est  $e = 60$  nm et sa largeur de  $l = 20$   $\mu\text{m}$ . Les unités sont normalisées par rapport au maximum de l'intensité fondamentale avec la couche métallique. (a) Vue d'ensemble. (b) Zoom de la figure (a) sur le milieu de transmission ( $z > 0$ ) au niveau de la surface. . . . . 134

6.19 Module carré du champ au second harmonique dans la configuration de Kretschmann en tenant compte des composantes tangentielles du champ fondamental dans la génération de second harmonique. La couche métallique est en argent ( $\epsilon_c(2\omega) = -1,13 + 0,45i$ ). Elle se situe en  $z = 0$ . L'épaisseur de la couche est  $e = 60$  nm et sa largeur  $l = 20$   $\mu\text{m}$ . Les unités sont normalisées par rapport au maximum de l'intensité fondamentale avec la couche métallique. (a) Vue d'ensemble. (b) Zoom de la figure (a) sur le milieu de transmission ( $z > 0$ ) au niveau de la surface. . . . . 135

6.20 schéma représentant l'expérience de génération de second harmonique par un défaut métallique posé sur une surface plane diélectrique. L'onde incidente  $E_i$  est un faisceau gaussien polarisé (TM) de longueur d'onde  $\lambda$ . Cette onde se propage depuis un diélectrique de permittivité  $\epsilon_d$  sur une couche mince de matériau centrosymétrique de permittivité  $\epsilon_c$ . Cette couche est d'épaisseur  $e$  et de largeur  $l$ . . . . . 136

6.21 Module carré du champ au second harmonique obtenu par diffraction sur une fine bande métallique en argent ( $\epsilon_c(2\omega) = -1,13 + 0,45i$ ). Elle se situe en  $z = 0$ . L'épaisseur de la couche est  $e = 60$  nm et sa largeur  $l = 60$  nm. La longueur d'onde, l'angle d'incidence et beam waist sont identiques aux expériences précédentes. (a) les unités sont normalisées par rapport au faisceau incident. (b) les unités sont normalisées par rapport au maximum du champ diffracté à la fréquence fondamentale. . . . . 136

B.1 Variation, en fonction de l'angle d'incidence  $\theta_i$ , de l'intensité transmise dans le milieu non-linéaire à l'ordre zéro de perturbation,  $I_{(2)}(2\omega)$  et ce pour plusieurs distances d'observation. L'efficacité est normalisée par rapport à son maximum. Ces trois courbes sont réalisées pour des distances d'observation de  $z_d = 1$   $\mu\text{m}$  pour la ligne continue,  $z_d = 5$   $\mu\text{m}$  pour la ligne discontinue et  $z_d = 10$   $\mu\text{m}$  pour les pointillés. Tout ceci est effectué à la longueur d'onde fondamentale  $\lambda = 1064$  nm . . . . . 163

B.2 Surfaces d'indice. En traits pleins est représentée la surface d'indice du milieu incident dans l'air avec  $\sqrt{\epsilon_{(1)}(\omega)} = 1$  son indice optique. En traits pointillés constants est représentée celle des indices extraordinaires pour la fréquence fondamentale, définie par l'indice ordinaire  $\sqrt{\epsilon_{(2o)}(\omega)} = 1,4942$  sur l'axe  $z$  et l'indice extraordinaire  $\sqrt{\epsilon_{(2e)}(\omega)} = 1,4603$  sur l'axe des  $x$ . En traits pointillés alternés est représentée celle des indices ordinaires pour le second harmonique avec  $\sqrt{\epsilon_{(2o)}(2\omega)} = 1,5129$ , l'indice ordinaire à  $2\omega$ .  $\vec{E}_i$  est une onde incidente de l'air sur le KDP avec un angle  $\theta_i$  et un vecteur d'onde  $\vec{K}_i$  dont la composante suivant  $x$  est  $\vec{v}$ .  $\vec{P}^{nl}$  de vecteurs d'onde  $\vec{K}_{nl}$  et  $\vec{E}_{(2)}$  de vecteurs d'onde  $\vec{K}_{(2)}(2\omega)$  sont respectivement la polarisation non-linéaire et l'onde homogène du champ total transmis au second harmonique. . . . . 164

B.3 Variation, en fonction de la distance de détection  $z_d$ , de l'efficacité transmise dans le milieu non-linéaire à l'ordre zéro de perturbation,  $I_{(2)}(2\omega)$  pour trois angles d'incidence : en pointillés  $\theta = \frac{\pi}{3}$  rad, en ligne discontinue  $\theta = \frac{2\pi}{9}$  rad et en ligne continue  $\theta = \frac{\pi}{18}$  rad. L'efficacité est normalisée par rapport à son maximum. Ces courbes sont réalisées pour la longueur d'onde  $\lambda = 1064$  nm. . . . . 165



---

## Liste des tableaux

---

3.1	Récapitulatif des résultats sur les sources non linéaires. . . . .	43
3.2	Les sources non linéaires dans les différents matériaux pour une onde plane de pulsation $\omega$ comme champ excitateur. . . . .	44
4.1	Composantes de l'ordre zéro de perturbation des champs électriques du premier harmonique en fonction des composantes du champ incident, $\vec{E}_{(1+)}^{(0)}$ . . . . .	61
4.2	Composantes d'un ordre de diffraction $(p_x, p_y)$ à l'ordre un de perturbation des champs électriques du premier harmonique en fonction des composantes de l'ordre zéro de perturbation des champs électriques. . . . .	63
4.3	Tableau de comparaison entre les méthodes de Mur et PML. Nous comparons les coefficients de réflexion en intensité sur la surface de la fenêtre de calcul aux fréquences du premier et second harmonique dans le cas bidimensionnel. Les ondes incidentes sont des impulsions temporels avec une enveloppe spatiale gaussienne ou de type onde plane . . . .	85
6.1	Variations du facteur d'exaltation du champ électrique fondamental en bout de pointe métallique en fonction de la longueur d'onde incidente. . . . .	127