

Remerciements

J'adresse mes sincères remerciements à Monsieur Roger Maynard d'avoir dirigé mon travail tout au long de ces quatre années de thèse. Grâce à lui, j'ai pu découvrir le domaine de l'optique non linéaire et celui de la diffusion multiple de la lumière. Ses compétences, sa rigueur et sa curiosité scientifique que j'ai très souvent sollicitées ont grandement contribué à la réalisation de ce travail de thèse.

Je tiens à remercier Monsieur Laurent Puech d'avoir assumé le rôle de Président du jury et pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail.

Messieurs Christos Flytzanis et Patrick Sebbah ont toute ma reconnaissance d'avoir accepté la lourde tâche d'être rapporteur de mon travail de thèse.

Je remercie également sincèrement Messieurs Bart Van Tiggelen et Pierre Étienne Wolf d'avoir fait l'effort de participer à mon jury même si la date de soutenance ne leur convenait pas forcément.

Un grand merci également à Françoise et à Michèle qui sont toujours disponibles et toujours prêtes à rendre service à tout instant.

Enfin, je remercie tous les membres du Laboratoire de Physique et de Modélisation de la Matière Condensée (Alain, Alexis, Andrei, David, Cécile, Fred, Gérald, Nicolas, Norbert, Philippe, ...) qui se sont succédés au cours de ces années et qui ont permis de maintenir une ambiance chaleureuse au sein du labo.

Table des matières

7

I Hydrodynamique d'un gaz de photons dans un régime fortement non linéaire. 9

Introduction. 11

1 Les processus paramétriques optiques. 15

- 1.1 Description des processus paramétriques. 15
 - 1.1.1 Interaction de la lumière avec un milieu diélectrique. 15
 - 1.1.2 La polarisation non linéaire. 16
 - 1.1.3 Description des processus paramétriques optiques. 17
 - 1.1.4 La condition de “phase matching”. 18
- 1.2 Processus paramétriques stimulés et spontanés. 20
 - 1.2.1 Théorie classique des processus paramétriques stimulés. 20
 - 1.2.2 Théorie quantique des processus paramétriques spontanés. 21
- 1.3 Résumé. 23

2 Les équations macroscopiques de transport. 25

- 2.1 Équation de Boltzmann. 25
- 2.2 La distribution de Planck modifiée. 26
- 2.3 Le libre parcours moyen. 29
- 2.4 Les équations de “Navier Stokes”. 30
 - 2.4.1 Les équations de continuité. 30
 - 2.4.2 Le fluide parfait. 32
 - 2.4.3 Le fluide visqueux. 35
- 2.5 L'onde de choc. 36

3 L'écoulement de Poiseuille. 39

- 3.1 Influence des conditions limites sur l'écoulement de Poiseuille. 39
 - 3.1.1 L'équation de Poiseuille. 39

3.1.2	Les conditions limites glissantes.	40
3.1.3	Le profil du courant d'énergie.	41
3.1.4	Le flux d'énergie.	42
3.1.5	La conductivité thermique en fonction de la température.	44
3.2	L'écoulement de Poiseuille dans un milieu anisotrope.	45
3.2.1	Milieu faiblement anisotrope.	45
3.2.2	Milieu fortement anisotrope.	46
	Conclusion.	49
A	Système fortement anisotrope.	51
B	Fluid Mechanics of Photonic Gas in Nonlinear Media	53
II	Les corrélations en milieu aléatoire et non linéaire.	69
	Introduction.	71
1	Transport radiatif en milieu non linéaire.	73
1.1	Milieu aléatoire de type Kerr.	73
1.1.1	Description du modèle.	73
1.1.2	La fonction de Green moyenne.	74
1.1.3	Le corrélateur linéaire des champs.	75
1.1.4	Le corrélateur non linéaire des champs.	76
1.2	Milieu aléatoire de type " χ_2 ".	78
1.2.1	Le développement perturbatif.	78
1.2.2	Le diagramme non linéaire.	79
1.3	Résumé.	80
2	Corrélations et rétrodiffusion cohérente.	83
2.1	Les corrélations en transmission.	83
2.1.1	Le système.	83
2.1.2	Le propagateur de diffusion.	84
2.1.3	Calcul du corrélateur linéaire des champs.	86
2.1.4	Calcul du corrélateur non linéaire des champs	87
2.1.5	La fonction de corrélation des champs.	89
2.1.6	La fonction de corrélation des intensités.	89
2.2	Les corrélations en reflexion.	92
2.2.1	La tranche semie-infinie.	92
2.3	Le cône de rétrodiffusion.	95
	Conclusion.	97

A	Les vertex non linéaires.	99
A.1	Le vertex K_3	99
A.2	Le vertex K_2	101
A.3	Quelques formules utiles.	103
B	Speckle Correlation and Coherent BackScattering...	105
C	On the Speckle Correlation in Nonlinear Random Media.	115

Ce mémoire est composé de deux parties indépendantes:

- La première partie sera consacrée à l'étude du transport d'énergie lumineuse dans un régime fortement non linéaire. Dans ce régime, les interactions entre photons seront supposées très fréquentes et les équations du second son, qui ont été initialement établies pour l'hélium liquide, pourront être transposées à l'optique. On montrera en particulier que le fluide lumineux obéit à des équations hydrodynamiques analogues aux équations de Navier Stokes de la mécanique des fluides.
- La seconde partie concernera l'étude des corrélations de l'intensité transmise et de l'intensité réfléchie par un milieu désordonné et non linéaire. Une longueur caractéristique qui dépend à la fois des propriétés du désordre et des caractéristiques non linéaires du milieu, sera introduite. Cette longueur permettra d'interpréter les effets des non linéarités par analogie avec des situations linéaires classiques: corrélations en fonction de la fréquence de l'onde lumineuse ou corrélations en présence d'absorption.

Première partie

Hydrodynamique d'un gaz de photons
dans un régime fortement non linéaire.

Introduction.

L'existence d'ondes de température dans l'hélium II superfluide, appelées ondes de second son, a été prédite par Landau en 1941 [24]. D'un point de vue hydrodynamique, ce phénomène est décrit à l'aide du modèle à deux fluides proposé par Tisza en 1940. Dans ce modèle, tout se passe comme si l'hélium liquide était composé d'un mélange de deux fluides dont la première composante, la composante superfluide, a la propriété particulière de pouvoir s'écouler sans viscosité le long d'une paroi solide alors que la seconde composante, la composante normale, possède le comportement d'un fluide visqueux ordinaire. Dans un tel fluide, des ondes sonores, qui correspondent à des fluctuations locales de la densité ρ et de la pression p de l'hélium, peuvent se propager comme dans n'importe quel fluide ordinaire. Mais on peut également observer des ondes de propagation où les densités respectives ρ_s et ρ_n des composantes superfluide et normale oscillent en opposition de phase. Dans cette situation, la densité ρ du fluide est constante et aucun mode de compression ne peut se propager. Par contre, comme seul le mouvement de la composante normale du liquide peut s'accompagner d'un transport de chaleur, un mode de transport propagatif pour la température est associé à cette situation. Dans ce modèle, on peut montrer que la vitesse c_{II} des ondes de second son est $c_{II} = \sqrt{(Ts^2/c)(\rho_s/\rho_n)}$ où T , s et c sont respectivement la température, la densité d'entropie et la capacité calorifique par unité de volume du liquide à l'équilibre thermodynamique [26].

Landau a montré qu'à basses températures, l'hélium pouvait être représenté par un "gaz" composé par les excitations élémentaires présentes dans le liquide (essentiellement des phonons à basses températures). Il a ainsi pu calculer le rapport des densités ρ_s/ρ_n et a obtenu une expression simple pour la vitesse du second son: $c_{II} = c/\sqrt{3}$ où c est la vitesse du son dans l'hélium. Ce résultat a ensuite été vérifié expérimentalement par Atkins et Osborne [3]. Ward et Wilks ont alors montré que le phénomène du second son n'était pas lié à une propriété de superfluidité de l'hélium et ils ont retrouvé l'expression de la vitesse du second son en considérant uniquement un gaz de phonons en interaction [39], [40]. Le point fondamental de cette théorie est que l'énergie et l'impulsion du système doivent être conservées lors des interactions entre quasi-particules. Le phénomène du second son dans un gaz de quasi-particules est donc tout à fait analogue à la propagation du son dans un gaz atomique ou moléculaire

ordinaire. Ce modèle a permis de valider la suggestion de Peshkov, en 1944, que le second son devait également être observable dans un cristal [32]. Mais pour observer le second son dans un cristal, il est nécessaire que les processus normaux entre phonons (processus qui conservent l'énergie et la quasi-impulsion des phonons) soient les processus microscopiques dominants, c'est à dire les plus fréquents, alors que les processus qui sont à l'origine de la relaxation de la quasi-impulsion (diffusion par des impuretés ou par les parois du matériau aussi bien que les processus umklapp) doivent être négligeables. Le second son n'est donc observable que dans des solides très purs et à très basses températures. Ces conditions sont très restrictives et le second son a été observé dans un solide pour la première fois en 1966, avec un cristal d'hélium ^4He par Ackerman *et al* [1]. Ensuite, l'observation d'onde de température a été effectuée dans des cristaux diélectriques de NaF [29], [33] et de Bi [31], et plus récemment, une mesure de conductivité thermique à basses températures dans un cristal quasi-mono-dimensionnel de $(\text{Ta}_{1-x}\text{Nb}_x\text{Se}_4)_2\text{I}$ ($x = 0; 0,01$) a été interprétée grâce à la théorie du second son [35]. Parallèlement, il a été prédit l'existence d'onde de second son dans les cristaux ferromagnétiques non métalliques [12] ainsi que dans les cristaux ferroélectriques [11].

Le domaine de l'optique non linéaire s'est considérablement développé à partir des années 60 avec la découverte du laser. Grâce à cette source lumineuse de forte puissance, on a pu étudier l'interaction entre la lumière et la matière dans des régimes non linéaires lorsque la réponse du milieu n'est plus seulement proportionnelle au champ électromagnétique incident. L'un des effets non linéaires les plus classiques est celui de la génération de seconde harmonique: lorsque l'on éclaire un matériau non linéaire avec une onde plane monochromatique de fréquence ω , une onde de fréquence 2ω est générée et peut se propager à l'intérieur du milieu. L'interprétation de ce phénomène est très simple en terme de photons. Deux photons d'énergie $\hbar\omega$ interagissent par l'intermédiaire du milieu diélectrique et se recombinent pour former un seul photon d'énergie $2\hbar\omega$. Mais ce processus n'est en fait que le cas particulier de toute une classe de processus à trois photons où deux photons d'énergie respectives $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$ s'associent pour former un seul photon d'énergie $\hbar\omega_3 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2$. Ce processus et le processus inverse (processus où un photon $\hbar\omega_3$ se fragmente en deux photons $\hbar\omega_1$ et $\hbar\omega_2$) sont appelés processus paramétriques optiques ou quelques fois fluorescence ou phosphorescence paramétrique. Ils ont été observés expérimentalement pour la première fois et de façons indépendantes par Harris *et al* [16] et Magde *et al* [28]. Il est important de signaler que les seuls processus paramétriques optiques qui peuvent se développer dans un milieu homogène et infini, doivent vérifier une relation particulière, dite relation de "phase-matching". Cette relation traduit le fait que la quasi-impulsion des photons doit être conservée au cours de l'interaction. Ces processus sont donc analogues aux processus normaux pour les phonons et ils vont nous permettre de rétablir les équations hydrodynamiques du "second son" pour un gaz de photons. Dans une théorie du "second son", seuls les processus normaux sont nécessaires mais l'analogie entre les processus d'interaction pour les photons et les phonons peut être rendue plus complète si on considère des cristaux photoniques. En effet, dans le cas des cristaux photoniques, lorsque le milieu diélectrique non linéaire est réparti sur les noeuds d'un réseau cristallin, le système n'est

invariant que pour les translations effectuées selon un des vecteurs du réseau périodique. La relation de “phase matching” n’est alors vérifiée qu’à un vecteur du réseau réciproque près. Dans cette situation, les processus paramétriques sont analogues aux processus normaux et aux processus umklapp pour les phonons dans un solide cristallin.

Dans une première partie de ce travail, nous rappellerons les principales propriétés des processus paramétriques optiques. En particulier, pour avoir des processus microscopiques qui permettent d’avoir une redistribution des quasi-impulsions des photons dans toutes les directions de l’espace, nous considérerons le cas des matériaux non linéaires centrosymétriques (matériaux pour lesquels la susceptibilité non linéaire de deuxième ordre $\chi^{(2)}$ est nulle). Nous donnerons également la probabilité quantique de transition des processus paramétriques. Cette probabilité de transition est la grandeur caractéristique qui nous permettra d’évaluer les échelles spatiales et temporelles associées à ces interactions microscopiques dans un gaz de photons.

Dans une deuxième partie, nous considérerons un gaz de photons dans un régime fortement non linéaire où les interactions microscopiques entre particules sont très fréquentes et nous établirons les équations hydrodynamiques de transport. Nous montrerons notamment que les équations de transport ont la même structure que les équation de Navier Stokes pour un fluide compressible ordinaire, avec des termes visqueux dissipatifs et un terme non linéaire d’“entraînement”. En linéarisant ces équations, nous retrouverons bien sur les équations du second son. Dans cette partie, par soucis de simplification, nous ne considérerons que le cas de milieux diélectriques isotropes et non dispersifs.

Dans une dernière partie, nous étudierons l’écoulement de type Poiseuille où un gaz de quasi-particules se déplace dans un capillaire de rayon R . Nous essaierons notamment de voir l’influence des interactions entre les quasi-particules et les parois du capillaire sur le transport d’énergie. Dans le cas particulier de cet écoulement, nous nous intéresserons également au cas des milieux fortement anisotropes et quasi-mono-dimensionnels tels que ceux de la référence [35].

Chapitre 1

Les processus paramétriques optiques.

Dans une première partie de ce chapitre, nous allons donner une présentation générale des processus paramétriques optiques et de leurs principales propriétés. Nous insisterons plus particulièrement sur la condition de “phase matching” et les restrictions qu’elle impose sur l’existence de ces processus. Dans un second temps, nous donnerons une description théorique de ces interactions afin d’obtenir la loi de probabilité de transition qui leur est associée. Pour une revue détaillée de ces processus, nous conseillons l’excellent article de Tang [37].

1.1 Description des processus paramétriques.

1.1.1 Interaction de la lumière avec un milieu diélectrique.

Les équations de base de l’électromagnétisme des milieux matériels sont les équations macroscopiques de Maxwell:

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho \quad ; \quad \vec{\nabla} \wedge \vec{E} = \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad ; \quad \vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \vec{j} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \end{array} \right. \quad (1.1)$$

où $\vec{E}$, $\vec{B}$, $\vec{D}$, $\vec{H}$ sont respectivement les valeurs moyennes macroscopiques des champs électrique, magnétique, de déplacement et d’induction et ρ et $\vec{j}$ sont les densités moyennes de charges libres et de courant dans le milieu matériel. Ce système d’équations est fermé grâce aux relations constitutives qui relient les champs $\vec{E}$, $\vec{B}$, $\vec{D}$, $\vec{H}$ entre eux. Ces relations, associées aux équations (1.1), permettent de décrire l’influence du milieu matériel sur la propagation de la lumière. Dans le cas de milieux diélectriques, non magnétiques et en absence de charge libre, ces relations constitutives peuvent s’écrire:

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{B} = \mu_0 \vec{H} \\ \vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}(\vec{E}) \end{array} \right. \quad (1.2)$$

où $\vec{P}(\vec{E})$ est le vecteur polarisation diélectrique du milieu. Pour des milieux homogènes et pour de faibles intensités lumineuses, la relation entre $\vec{P}$ et $\vec{E}$ peut être supposée linéaire:

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi \cdot \vec{E}(\vec{r}, t) \quad (1.3)$$

où χ est le tenseur susceptibilité diélectrique du milieu. Dans le cas d'un milieu isotrope, le tenseur χ se ramène simplement à une constante multiplicative et le champ électrique est alors solution de l'équation de propagation:

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E}(\vec{r}, t) - \epsilon_0 \mu_0 \chi \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2}(\vec{r}, t) = 0. \quad (1.4)$$

Les solutions de cette équation peuvent être décomposées sous la forme d'ondes planes se propageant à la vitesse $v_\phi = c/\sqrt{\chi}$. À cet ordre d'approximation, il n'y a aucune interaction entre deux ondes planes. De manière tout à fait analogue à la description des processus à trois phonons dans un cristal anharmonique, les processus d'interaction entre ondes planes ne pourront être décrit qu'en tenant compte des termes non linéaires de la relation constitutive.

1.1.2 La polarisation non linéaire.

La susceptibilité diélectrique χ est caractéristique du milieu matériel et dépend en particulier de ses propriétés microscopiques. Une modification du milieu (déplacement des atomes par une onde acoustique ou déformation des nuages électroniques par une onde électromagnétique par exemples) peut alors se traduire par une modulation spatiale ou temporelle de χ . Ainsi, lorsque l'on éclaire le milieu sous de fortes puissances lumineuses, l'approximation qui consiste à supposer χ constante n'est plus justifiée et on doit développer la susceptibilité diélectrique en puissances croissantes de $\vec{E}$:

$$\chi(\vec{r}, t) = \chi_1 + \chi_2 \vec{E}(\vec{r}, t) + \chi_3 \vec{E}(\vec{r}, t) \vec{E}(\vec{r}, t) + \dots \quad (1.5)$$

χ_1 est le tenseur susceptibilité diélectrique linéaire, χ_2 et χ_3 sont les tenseurs susceptibilités non linéaires de deuxième et de troisième ordre¹. Le vecteur polarisation peut alors se décomposer sous la forme d'une partie linéaire et d'une partie non linéaire:

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \vec{P}_L(\vec{r}, t) + \vec{P}_{NL}(\vec{r}, t), \quad (1.6)$$

avec

$$\begin{cases} \vec{P}_L(\vec{r}, t) = \chi_1 \vec{E}(\vec{r}, t). \\ \vec{P}_{NL}(\vec{r}, t) = \chi_2 \vec{E}(\vec{r}, t) \vec{E}(\vec{r}, t) + \chi_3 \vec{E}(\vec{r}, t) \vec{E}(\vec{r}, t) \vec{E}(\vec{r}, t) + \dots \end{cases} \quad (1.7)$$

On retient les deux premiers termes du développement car dans le cas des cristaux centrosymétriques, qui admettent un centre d'inversion, le terme χ_2 est nul. En effet pour ces cristaux,

1. χ_1 , χ_2 et χ_3 sont respectivement des tenseurs d'ordre 2, 3 et 4.

le vecteur $\vec{P}$ doit se changer en $-\vec{P}$ lorsque l'on change $\vec{E}$ en $-\vec{E}$ et le terme quadratique $\chi_2 \vec{E}(\vec{r}, t) \vec{E}(\vec{r}, t)$ ne peut subsister.

1.1.3 Description des processus paramétriques optiques.

Considérons un milieu non-centrosymétrique. Le terme principal du développement (1.7) est donc le terme quadratique en $\chi_2 \vec{E}(\vec{r}, t) \vec{E}(\vec{r}, t)$ et lorsque l'on éclaire ce milieu par deux ondes de fréquences ω_1 et ω_2 et de vecteurs d'ondes $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$, le vecteur de polarisation non linéaire créé $\vec{P}_{NL}$ possède une composante modulée temporellement à la fréquence $\omega_1 + \omega_2$ et spatialement par le vecteur d'onde $\vec{k}_1 + \vec{k}_2$. Dans chaque volume élémentaire $d\tau$ du milieu, un

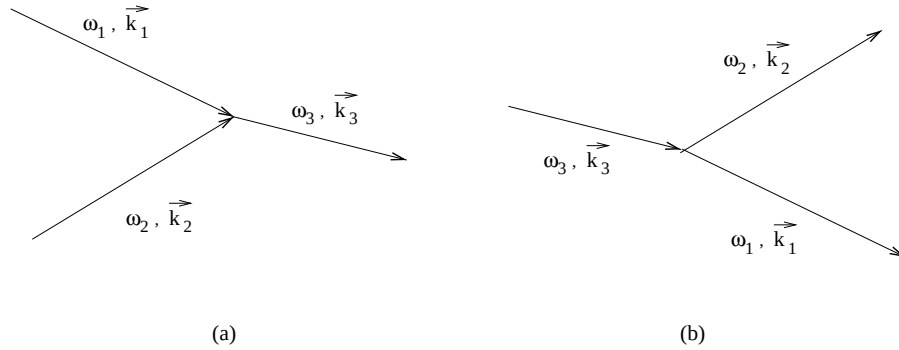


FIG. 1.1 - Représentation schématique des processus paramétriques optiques. (a) Processus direct où deux ondes de fréquence ω_1 et ω_2 et de vecteurs d'onde $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$ se combinent en une seule de fréquence ω_3 et de vecteur d'onde $\vec{k}_3$. (b) Processus paramétrique inverse. Dans un milieu infini, ces processus sont caractérisés par les deux lois de conservation: $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ et $\vec{k}_3 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$.

dipole élémentaire $d\vec{P}_{NL} = \vec{P}_{NL} d\tau$ rayonnera donc une onde lumineuse de fréquence $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. Mais, dans un milieu infini, seule l'onde qui a pour vecteur d'onde $\vec{k}_3 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$ pourra se développer par interférences constructives entre ces sources élémentaires. Cette relation entre les vecteurs d'onde est appelée condition de "phase matching". Ce processus au cours duquel deux ondes électromagnétiques interagissent pour en former une troisième, ainsi que le processus inverse où une onde se fragmente spontanément en deux, sont appelés processus paramétriques optiques. Nous en donnerons une description théorique plus précise dans le deuxième paragraphe. En termes de photons, ces processus s'interprètent comme des processus d'interaction à trois photons et les deux lois de conservation $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ et $\vec{k}_3 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$ traduisent la conservation de l'énergie et de la quasi-impulsion. Pour finir signalons que les processus paramétriques optiques sont souvent présentés en parallèle avec les processus Raman et Brillouin. En effet, ces deux derniers processus sont également des processus d'interaction à trois quasi-particules au cours desquels un photon interagit avec un phonon (acoustique dans le cas des processus Brillouin et optique dans le cas des processus Raman) pour former un

nouveau photon. Au cours de ces processus, l'énergie totale et l'impulsion totale des quasi-particules sont bien sûr conservées mais ce sont des processus inélastiques pour la lumière puisque l'énergie lumineuse totale n'est pas conservée au cours de l'interaction.

1.1.4 La condition de “phase matching”.

En plus des deux lois de conservation qui limitent les processus paramétriques pouvant se développer dans le milieu non linéaire:

$$\begin{cases} \omega_1 + \omega_2 = \omega_3 \\ \vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3 \end{cases} \quad (1.8)$$

nous devons tenir compte de la relation de dispersion du milieu $\omega(\vec{k})$. Par exemple, dans le cas d'un milieu non dispersif d'indice de réfraction n , on a $\omega(\vec{k}) = kc/n$ et il est facile de montrer que les seuls processus possibles sont colinéaires de même sens, c'est à dire que les vecteurs d'onde $\vec{k}_1$, $\vec{k}_2$, $\vec{k}_3$ doivent être dirigés suivant une même direction et un même sens. Dans cette situation, les processus paramétriques ne permettront pas une redistribution spatiale des vecteurs d'onde lumineux. De plus, si on considère le cas plus réaliste d'un milieu dispersif avec une relation de dispersion normale $dn/d\omega > 0$, la condition $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ impose la relation $|\vec{k}_3| > |\vec{k}_1 + \vec{k}_2|$. La relation de conservation de l'impulsion ne pourra donc jamais être vérifiée dans un tel milieu et aucun processus ne pourra se développer. On peut surmonter cette difficulté de deux façons différentes.

La première solution est de considérer des milieux anisotropes uniaxes négatifs avec une biréfringence suffisante. On peut alors diminuer $|\vec{k}_3|$ à condition que cette onde soit polarisée extraordinairement. Pour les deux autres ondes, l'une des deux au moins doit être polarisée ordinairement et il existe deux situations où la condition de “phase matching” peut être vérifiée:

$$\begin{cases} \vec{k}_1^o + \vec{k}_2^o = \vec{k}_3^e. \\ \vec{k}_1^{o,e} + \vec{k}_2^{e,o} = \vec{k}_3^e. \end{cases} \quad (1.9)$$

C'est en particulier, la solution utilisée dans les oscillateurs paramétriques optiques où par une simple rotation de l'axe du cristal anisotrope par rapport à la direction d'un faisceau pompe $\vec{k}_3$, on peut modifier les fréquences et les directions des deux signaux émis $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$. On peut ainsi obtenir des sources de lumière accordables sur une large bande de fréquence.

La seconde solution est de considérer des milieux centrosymétriques et de s'intéresser aux processus non dégénérés à quatre photons [2]. En effet, on peut montrer que même dans le cas

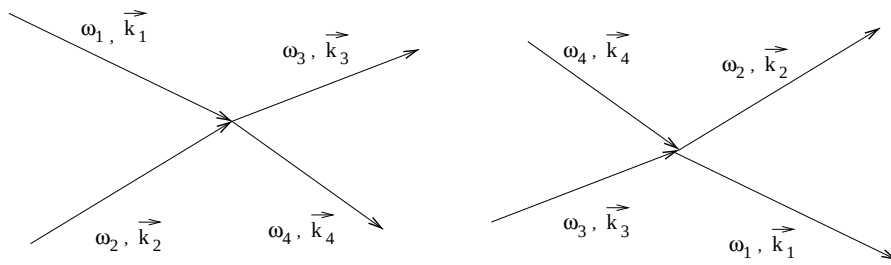


FIG. 1.2 - Les processus paramétriques à quatre photons. Deux ondes incidentes interagissent pour former deux autres ondes avec de nouvelles fréquences et de nouveaux vecteurs d'ondes.

d'un milieu non dispersif $\omega(\vec{k}) = kc/n$, les deux relations de conservation:

$$\begin{cases} \omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4 \\ \vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3 + \vec{k}_4 \end{cases} \quad (1.10)$$

ne conduisent pas uniquement à des processus colinéaires de même sens. En effet, tous les couples de vecteurs d'onde $\{\vec{k}_1, \vec{k}_2\}$ construits sur l'ellipsoïde représenté figure 1.3 vérifient les conditions de "phase matching" [23]. On peut remarquer que dans le cas où les deux vecteurs

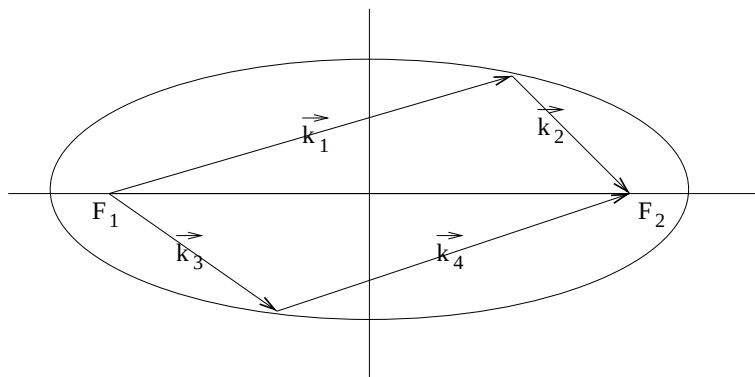


FIG. 1.3 - Construction géométrique qui permet de déterminer les processus paramétriques à quatre photons dans le cas d'un milieu non linéaire centrosymétrique, non dispersif. Les foyers de l'ellipsoïde F_1 et F_2 sont tels que $\vec{F_1 F_2} = \vec{k}_{total} = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$. Le demi grand axe vaut $a = 2n/c \omega_{total} = 2n/c (\omega_1 + \omega_2)$.

d'onde incidents ont la même direction et le même sens, l'ellipsoïde est dégénéré au segment $F_1 F_2$ et dans ce cas particulier tous les processus paramétriques seront de nouveau colinéaires et de même sens.

1.2 Théorie des processus paramétriques stimulés et des processus paramétriques spontanés.

Dans cette partie théorique, nous allons établir l'expression de la probabilité de transition associée à un processus paramétrique optique spontané. Cette probabilité de transition nous permettra notamment d'évaluer dans le chapitre suivant les échelles microscopiques d'interaction dans un gaz hors équilibre et en particulier le libre parcours moyen des photons. Mais pour commencer, il nous a semblé intéressant de rappeler rapidement les principales étapes de la description classique des processus paramétriques stimulés même si pour obtenir une description correcte des processus paramétriques spontanés il est nécessaire d'utiliser la théorie quantique des champs. L'existence des processus paramétriques optiques spontanés a été montrée théoriquement par Louisell *et al* [27] et par Gordon *et al* [10] dans le cas d'un milieu isotrope et non dispersif. Cette théorie a ensuite été reprise par de nombreux auteurs afin de tenir compte de l'anisotropie et de la dispersion des matériaux optiques non linéaires [21], [9], [8], [22], [23], [5], [41].

1.2.1 Théorie classique des processus paramétriques stimulés.

Dorénavant, par soucis de simplification, nous allons considérer les processus paramétriques à quatre ondes dans les milieux centrosymétriques non dispersifs. De plus, nous ne nous intéresserons pas aux effets de polarisation et nous omettrons les indices des composantes du tenseur χ_3 et du vecteur champ électrique. le champ électrique est alors solution de l'équation non linéaire de propagation:

$$\vec{\nabla}^2 E(\vec{r}, t) - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2}(\vec{r}, t) = \mu_0 \epsilon_0 \chi_3 \frac{\partial^2 E^3}{\partial t^2}(\vec{r}, t). \quad (1.11)$$

Il est possible de chercher une solution de cette équation sous la forme d'ondes planes se propageant dans la direction z :

$$E(\vec{r}, t) = A_1(z)e^{i(\omega_1 t - k_1 z)} + A_2(z)e^{i(\omega_2 t - k_2 z)} + A_3(z)e^{i(\omega_3 t - k_3 z)} + A_4(z)e^{i(\omega_4 t - k_4 z)} + c.c. \quad (1.12)$$

Dans cette expression, A_1 et A_2 représentent les amplitudes des ondes incidentes et A_3 et A_4 les amplitudes des ondes générées dans le milieu. On impose donc également les deux conditions de conservation: $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4$ et $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3 + \vec{k}_4$. Les non linéarités étant faibles, on va supposer que les enveloppes A_i varient lentement sur des échelles spatiales de l'ordre de λ_i (approximation des enveloppes lentement variables). Les enveloppes A_i vérifient alors les relations:

$$|\frac{d^2 A_i}{dz^2}| \ll k_i |\frac{dA_i}{dz}|, \quad (1.13)$$

et on peut obtenir leur équations d'évolution en identifiant les termes de l'équation (1.11) associés à chaque fréquence ω_i :

$$\left\{ \begin{array}{l} 2ik_1 \frac{dA_1}{dz}(z) = \mu_0 \epsilon_0 \chi_3 \omega_1^2 A_3(z) A_4(z) A_2^*(z). \\ 2ik_2 \frac{dA_2}{dz}(z) = \mu_0 \epsilon_0 \chi_3 \omega_2^2 A_3(z) A_4(z) A_1^*(z). \\ 2ik_3 \frac{dA_3}{dz}(z) = \mu_0 \epsilon_0 \chi_3 \omega_3^2 A_1(z) A_2(z) A_4^*(z). \\ 2ik_4 \frac{dA_4}{dz}(z) = \mu_0 \epsilon_0 \chi_3 \omega_3^2 A_1(z) A_2(z) A_3^*(z). \end{array} \right. \quad (1.14)$$

On remarque immédiatement que dans l'équation d'évolution de chaque A_i , le second membre est proportionnel au produit des trois autres enveloppes. En conséquence, si initialement les deux enveloppes A_3 et A_4 sont nulles $A_3(0) = A_4(0) = 0$, elles le resteront. Ces équations ne permettent donc pas de décrire les processus où deux ondes A_1 et A_2 interagissent spontanément pour former deux nouvelles ondes A_3 et A_4 et seule la théorie quantique pourra y parvenir. Par contre, elles permettent de décrire les processus stimulés, où en présence de A_3 et A_4 , les amplitudes des ondes A_1 et A_2 diminuent au profit de A_3 et A_4 (voir [4]).

1.2.2 Théorie quantique des processus paramétriques spontanés.

La théorie quantique des processus paramétriques est basée sur la présence de termes non linéaires dans l'expression de l'Hamiltonien du système de manière tout à fait analogue à la description des processus d'interaction entre phonons pour les cristaux anharmoniques. L'Hamiltonien $\mathcal{H}$ du champ électromagnétique dans un milieu diélectrique de volume V est égal à:

$$\mathcal{H} = \int_V \left(\frac{1}{2} \vec{D}(\vec{r}, t) \cdot \vec{E}(\vec{r}, t) + \frac{1}{2\mu_0} B^2(\vec{r}, t) \right) d^3r. \quad (1.15)$$

Dans un milieu non linéaire, cet Hamiltonien peut être décomposé en une partie linéaire $\mathcal{H}_0$ et une partie non linéaire $\mathcal{H}_1$ respectivement égales à:

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{H}_0 = \int_V \left(\frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_1 E^2(\vec{r}, t) + \frac{1}{2\mu_0} B^2(\vec{r}, t) \right) d^3r. \\ \mathcal{H}_1 = \int_V \left(\frac{1}{4} \epsilon_0 \chi_3 E^4(\vec{r}, t) \right) d^3r. \end{array} \right. \quad (1.16)$$

En seconde quantification, on est amené à introduire les opérateurs quantiques de création $a_{\vec{k}}^+$ et d'annihilation $a_{\vec{k}}$ d'un photon de vecteur d'onde $\vec{k}$ [34]. On rappelle que ces opérateurs vérifient les relations de commutation:

$$\left\{ \begin{array}{l} [a_{\vec{k}}, a_{\vec{k}'}^+] = \delta_{\vec{k}, \vec{k}'} \\ [a_{\vec{k}}, a_{\vec{k}'}] = [a_{\vec{k}}^+, a_{\vec{k}'}^+] = 0. \end{array} \right. \quad (1.17)$$

L'Hamiltonien linéaire H_0 s'écrit alors dans cette représentation:

$$H_0 = \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}} \hbar \omega(\vec{k}) (a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} + a_{\vec{k}} a_{\vec{k}}^+). \quad (1.18)$$

Dans cette formule, la somme est étendue à tous les vecteurs $\vec{k}$ compatibles avec les conditions limites périodiques. Les vecteurs propres $|n_{\vec{k}}\rangle$ de cet opérateur représentent les états composés de $N_{\vec{k}}$ photons dans l'état $\vec{k}$. Le vecteur d'état du vide est noté $|0\rangle$. On peut alors facilement montrer que l'état incohérent constitué de N_p photons indépendants dans l'état $\vec{k}_p$ est représenté par le vecteur d'état:

$$|n_{\vec{k}_1} \dots n_{\vec{k}_p} \dots\rangle = \prod_{\vec{k}_p} \frac{1}{\sqrt{N_p!}} (a_{\vec{k}_p}^+)^{N_p} |0\rangle. \quad (1.19)$$

Dans ce schéma, l'Hamiltonien non linéaire H_1 est traité comme une perturbation dépendante du temps qui sera à l'origine des termes d'interactions entre les états propres $|n_{\vec{k}}\rangle$. En effet, en reportant l'expression de l'opérateur de champ électrique:

$$E(\vec{r}, t) = -\frac{i}{\sqrt{\epsilon_0 \chi_1}} \sum_{\vec{k}} \sqrt{\frac{\hbar \omega}{2}} \left\{ a_{\vec{k}} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r} - i\omega t} - a_{\vec{k}}^+ e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r} + i\omega t} \right\} \quad (1.20)$$

dans l'expression de $\mathcal{H}_1$, nous allons voir apparaître tous les produits contenant quatre opérateurs de création ou d'annihilation. (Nous ne tiendrons pas compte des termes $a_{\vec{k}_1} a_{\vec{k}_2} a_{\vec{k}_3} a_{\vec{k}_4}$ et $a_{\vec{k}_1}^+ a_{\vec{k}_2}^+ a_{\vec{k}_3}^+ a_{\vec{k}_4}^+$ qui sont interdits par la loi de conservation de l'énergie ([25], §66)). Ces termes décrivent les divers processus d'interaction à quatre photons. Écrivons par exemple, le terme qui correspond à la désintégration de deux photons $\vec{k}_1, \vec{k}_2$ en deux photons $\vec{k}_3$ et $\vec{k}_4$. Après intégration sur $\vec{r}$, on obtient:

$$\tilde{H}_1(1, 2 \rightarrow 3, 4) = \frac{\chi_3}{\epsilon_0^2 \chi_1^2} \sqrt{\hbar^4 \omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4} a_{\vec{k}_1} a_{\vec{k}_2} a_{\vec{k}_3}^+ a_{\vec{k}_4}^+ e^{-i(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4)t} \delta_{\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3 - \vec{k}_4, \vec{0}} \quad (1.21)$$

Nous retrouvons le terme $\delta_{\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3 - \vec{k}_4, \vec{0}}$ traduisant la relation de “phase matching” que doivent vérifier les quatres vecteurs d'onde dans un milieu homogène. À titre indicatif, il est intéressant de noter que si on n'avait pas un milieu homogène mais un cristal photonique (pour lequel le milieu diélectrique non linéaire serait réparti sur les noeuds d'un réseau cristallin périodique) la condition de “phase matching” ne pourrait être vérifiée qu'à un vecteur $\vec{b}$ du réseau réciproque près: $\vec{k}_1 + \vec{k}_2 = \vec{k}_3 + \vec{k}_4 + \vec{b}$. De manière tout à fait analogue aux processus d'interaction entre phonons dans un cristal, les processus paramétriques pourraient alors être divisé en deux catégories: les processus normaux qui vérifient exactement la condition de “phase matching” ($\vec{b} = \vec{0}$) et les processus “umklapp” qui ne la vérifient pas ($\vec{b} \neq \vec{0}$). L'analogie entre les processus microscopiques d'interaction pour les phonons et pour les photons serait donc beaucoup plus complète dans cette situation. Mais comme dans une théorie du “second-son” nous cherchons à limiter les processus résistifs qui ne conservent pas l'impulsion, nous continuerons par la suite à ne considérer que des milieux optiques homogènes.

D'après la théorie des perturbations, la probabilité de transition $W(\vec{k}_1, \vec{k}_2 \rightarrow \vec{k}_3, \vec{k}_4)$ par unité de temps est donnée par la formule:

$$W(\vec{k}_1, \vec{k}_2 \rightarrow \vec{k}_3, \vec{k}_4) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \left| \frac{1}{i\hbar} \int_0^T \langle \Phi_{\text{final}} | \tilde{H}_1(1, 2 \rightarrow 3, 4) | \Phi_{\text{initial}} \rangle dt \right|^2 \quad (1.22)$$

où, pour le processus considéré, les vecteurs d'états $|\Phi_{\text{initial}}\rangle$ et $|\Phi_{\text{final}}\rangle$ sont égaux à:

$$\begin{cases} |\Phi_{\text{initial}}\rangle = |\dots n_{\vec{k}_1} \dots n_{\vec{k}_2} \dots n_{\vec{k}_3} \dots n_{\vec{k}_4} \dots \rangle \\ |\Phi_{\text{initial}}\rangle = |\dots (n_{\vec{k}_1} - 1) \dots (n_{\vec{k}_2} - 1) \dots (n_{\vec{k}_3} + 1) \dots (n_{\vec{k}_4} + 1) \dots \rangle \end{cases} \quad (1.23)$$

On obtient alors facilement:

$$W(\vec{k}_1, \vec{k}_2 \rightarrow \vec{k}_3, \vec{k}_4) = \frac{\chi_3^2 \hbar^2}{\epsilon_0^4 \chi_1^4} \omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4 \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4) \delta_{\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3 - \vec{k}_4, \vec{0}} \times N_1 N_2 (N_3 + 1)(N_4 + 1). \quad (1.24)$$

On peut noter que cette probabilité de transition est proportionnelle au nombre initial de photons dans les états 1 et 2 et au nombre final de photons dans les états 3 et 4. Les processus paramétriques seront donc d'autant plus fréquents que les populations de photons seront grandes.

1.3 Résumé.

En résumé, nous avons vu que dans un milieu non linéaire centrosymétrique, non dispersif, les processus paramétriques pouvaient être considérés comme des processus d'interaction entre photons entièrement décrits par les deux lois de conservation de l'énergie et de la quasi-impulsion et par leur probabilité de transition W . Ces dernières propriétés n'étant pas remises en cause dans des situations plus réalistes, lorsque l'on considère des matériaux optiques dispersifs ou les effets de polarisation, il semble donc possible d'élaborer une théorie du "second son" pour la lumière. Dans cette théorie, les processus paramétriques joueront pour la lumière le rôle des processus normaux pour les phonons. Par la suite, nous les noterons processus N.

Chapitre 2

Les équations macroscopiques de transport.

Dans ce chapitre, nous allons utiliser la théorie cinétique des gaz de Boltzmann afin d'établir les équations macroscopiques de transport pour l'énergie et pour l'impulsion, dans un gaz de quasi-particules soumis à des interactions microscopiques de type N. Pour résoudre proprement et facilement l'équation de Boltzmann dans cette situation, Guyer et Krumhansl ont introduit une méthode matricielle très astucieuse [14], [15]. Cette méthode leur a notamment permis d'avoir une dérivation microscopique des équations du second son, mais ces équations “sonores” ne sont en fait que la version linéarisée d'équations macroscopiques de transport plus complètes. La méthode matricielle n'est bien sûr pas très adaptée au delà des termes linéaires, et nous allons utiliser dans ce chapitre une méthode simplifiée pour résoudre l'équation de Boltzmann. Nous verrons que les équations hydrodynamiques que nous allons obtenir pour les photons sont très similaires aux équations de Navier Stokes pour un fluide ordinaire.

2.1 Équation de Boltzmann.

Dans ce travail, les photons seront considérés comme des particules classiques d'énergie $\hbar\omega$ et d'impulsion $\hbar\vec{k}$. Le plus simple pour ceci est de construire les paquets d'onde associés à chaque mode quantique $\vec{k}$. La vitesse des photons sera donc la vitesse de groupe $\vec{v}_g(\vec{k})$ de ces paquets d'onde $\vec{v}_g(\vec{k}) = \vec{\nabla}_{\vec{k}}\omega(\vec{k})$. Si on considère un corps noir non linéaire, c'est à dire un corps noir dont la cavité est remplie par un milieu diélectrique non linéaire, les photons présents à l'intérieur de la cavité, pourront subir deux types d'interaction. D'une part les processus N que nous avons décrit au chapitre précédent et d'autre part, les photons pourront être diffusés par les parois de la cavité ou par des impuretés présentes dans le milieu. Ces processus de diffusion seront supposés élastiques et l'énergie des photons sera donc conservée lors de ces collisions. Par contre, l'impulsion lumineuse ne sera pas conservée lors des événements de diffusion et ces processus seront à l'origine de la relaxation de l'impulsion du fluide. Nous les noterons processus R.

Dans ce corps noir, le gaz de photons est décrit par sa fonction de distribution $f(\vec{r}, \vec{k}, t)$ qui est égale à la densité de photons d'impulsion $\hbar\vec{k}$ au point $\vec{r}$ et à l'instant t . L'évolution de cette fonction est donnée par l'équation de théorie cinétique des gaz de Boltzmann:

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial t} + \vec{v}_g(\vec{k}) \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}} \right\} f(\vec{r}, \vec{k}, t) = \mathcal{I}[f(\vec{r}, \vec{k}, t)]. \quad (2.1)$$

L'opérateur du membre de gauche $\mathcal{L} = \frac{\partial}{\partial t} + \vec{v}_g(\vec{k}) \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}}$ est l'opérateur de Liouville qui décrit l'évolution libre des photons se déplaçant à la vitesse $\vec{v}_g(\vec{k})$.

$\mathcal{I}[f(\vec{r}, \vec{k}, t)]$ est l'opérateur de collisions qui représente l'évolution de la fonction de distribution au cours du temps due à la présence des collisions. Si on suppose que les processus N et les processus R sont indépendants, on peut écrire:

$$\mathcal{I}[f(\vec{r}, \vec{k}, t)] = \mathcal{N}[f(\vec{r}, \vec{k}, t)] + \mathcal{R}[f(\vec{r}, \vec{k}, t)] \quad (2.2)$$

où $\mathcal{N}$ et $\mathcal{R}$ sont respectivement les opérateurs de collisions associés aux processus N et R. En faisant le "bilan détaillé" du nombre de photons créés dans l'état $\vec{k}$ et du nombre de photons qui disparaissent de cet état suite à une collision, on obtient l'expression de l'opérateur $\mathcal{N}$ en fonction de la loi de probabilité de transition des processus N:

$$\mathcal{N}[f(\vec{r}, \vec{k}, t)] = \frac{1}{2} \sum_{\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3} \left\{ W(\vec{k}_1, \vec{k}_2 \rightarrow \vec{k}, \vec{k}_3) - W(\vec{k}, \vec{k}_3 \rightarrow \vec{k}_1, \vec{k}_2) \right\}. \quad (2.3)$$

Le facteur $\frac{1}{2}$ est un facteur combinatoire pour ne pas compter deux fois une même collision lorsque l'on échange $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$. Dans l'expression précédente, nous n'avons tenu compte que des processus où deux particules interagissent pour en former deux autres. On pourrait inclure le terme où trois particules "fusionnent" en une seule et le terme réciproque sans difficulté majeure. De même, en notant $\sigma(\vec{k} \rightarrow \vec{k}')$ la section efficace de diffusion d'un photon par une impureté, on obtient pour l'opérateur $\mathcal{R}$:

$$\mathcal{R}[f(\vec{r}, \vec{k}, t)] = \sum_{\vec{k}'} \left\{ \sigma(\vec{k}' \rightarrow \vec{k}) f(\vec{r}, \vec{k}', t) - \sigma(\vec{k} \rightarrow \vec{k}') f(\vec{r}, \vec{k}, t) \right\}. \quad (2.4)$$

Ces deux opérateurs intégraux rendent la résolution de l'équation de Boltzmann très difficile. Selon la méthode générale, nous allons donc tout d'abord déterminer la fonction de distribution du gaz à l'équilibre thermodynamique puis nous reviendrons à la résolution de cette équation pour des systèmes proches de cet état d'équilibre.

2.2 La distribution de Planck modifiée.

Les processus microscopiques N modifiant la répartition des photons dans l'espace des $\vec{k}$, nous allons commencer par chercher la fonction de distribution du gaz $f^{(0)}(\vec{k})$ à l'équilibre thermodynamique. L'équilibre macroscopique est atteint lorsque le système microscopique est

dans un état stationnaire (et homogène) et donc en particulier lorsque chaque processus microscopique est aussi fréquent que son processus inverse. L'intégrale des collisions est alors nulle et le système n'évolue plus. En écrivant l'égalité des deux probabilités de transition: $W(\vec{k}_1, \vec{k}_2 \rightarrow \vec{k}_3, \vec{k}_4) = W(\vec{k}_3, \vec{k}_4 \rightarrow \vec{k}_1, \vec{k}_2)$, nous obtenons une équation fonctionnelle pour $f^{(0)}(\vec{k})$:

$$f_1^{(0)} f_2^{(0)} (f_3^{(0)} + 1) (f_4^{(0)} + 1) = (f_1^{(0)} + 1) (f_2^{(0)} + 1) f_3^{(0)} f_4^{(0)}. \quad (2.5)$$

Dans la formule précédente, nous avons utilisé la notation condensée $f_i^{(0)}$ pour $f^{(0)}(\vec{k}_i)$. En prenant le logarithme de la relation précédente, on montre que $\ln[(f^{(0)} + 1)/f^{(0)}]$ est un invariant collisionnel:

$$\ln \left[\frac{f_1^{(0)} + 1}{f_1^{(0)}} \right] + \ln \left[\frac{f_2^{(0)} + 1}{f_2^{(0)}} \right] = \ln \left[\frac{f_3^{(0)} + 1}{f_3^{(0)}} \right] + \ln \left[\frac{f_4^{(0)} + 1}{f_4^{(0)}} \right]. \quad (2.6)$$

Or, nous avons supposé que les collisions N étaient entièrement décrites par les lois de conservation de l'énergie et de l'impulsion. Donc $\ln[(f^{(0)} + 1)/f^{(0)}]$ ne peut être qu'une combinaison de $\omega(\vec{k})$ et de $\vec{k}$ et nous pouvons écrire:

$$\ln \left[\frac{f^{(0)} + 1}{f^{(0)}} \right] = \beta \hbar \omega(\vec{k}) - \beta \vec{v} \cdot \hbar \vec{k} \quad (2.7)$$

où β et $\vec{v}$ sont les deux coefficients de Lagrange qui permettent d'assurer la conservation de l'énergie totale et de l'impulsion totale du système. La fonction de distribution d'équilibre du gaz est donc:

$$f^{(0)}(\vec{k}) = \frac{1}{e^{\beta(\hbar \omega(\vec{k}) - \vec{v} \cdot \hbar \vec{k})} - 1}. \quad (2.8)$$

Il s'agit de la fonction de distribution de Planck pour le corps noir avec un terme supplémentaire égal à $\vec{v} \cdot \hbar \vec{k}$. Ce terme provient directement de la contrainte associée à la loi de conservation de l'impulsion et il disparaît dans le cas habituel où cette contrainte est levée. L'interprétation physique du paramètre de Lagrange $\vec{v}$ est donnée par la formule (voir [18] §18.6 pour la démonstration):

$$\vec{v} = \frac{\sum \vec{\nabla}_{\vec{k}} \omega(\vec{k}) f^{(0)}(\vec{k})}{\sum f^{(0)}(\vec{k})}. \quad (2.9)$$

$\vec{v}$ est donc la vitesse de groupe moyenne des photons. Elle est appelée vitesse de dérive du gaz. Cette dérive peut être reliée à l'anisotropie introduite par le terme $\vec{v} \cdot \hbar \vec{k}$ dans la répartition d'équilibre des particules. Sur la figure 2.1, nous avons représenté quelques surfaces d'équipopulation pour différentes valeurs de $\vec{v}$ dans un milieu non dispersif $\omega(\vec{k}) = ck$. Les surfaces d'équipopulation n'étant plus des sphères, l'impulsion totale et la vitesse de groupe moyenne des photons sont non nulles.

Le second paramètre de Lagrange β permet de définir la température du système selon la relation habituelle:

$$\beta = \frac{1}{k_B T}. \quad (2.10)$$

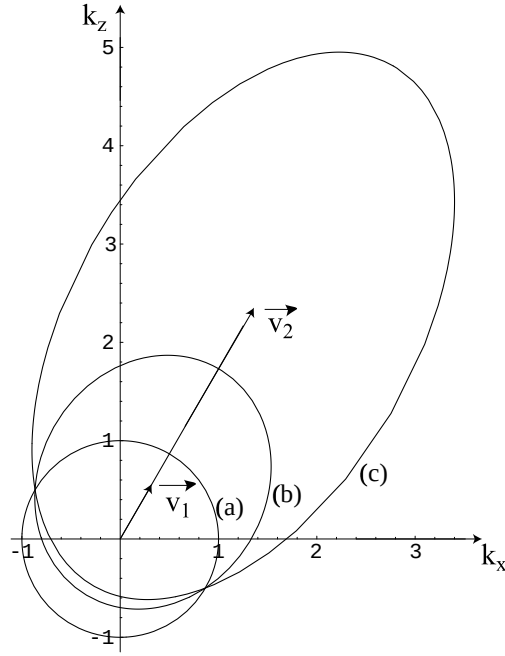


FIG. 2.1 - Quelques contours d'équipopulation de la fonction d'équilibre $f^{(0)}(\vec{k})$ dans le plan (k_x, k_z) pour différentes valeurs du paramètre $\vec{v}$. (a) $|\vec{v}_0| = 0$ (b) $|\vec{v}_1| = 0.5c$ (c) $|\vec{v}_2| = 0.82c$.

Pour déterminer complètement l'état d'équilibre du système, nous devons encore obtenir les deux équations d'état qui relient la température T et la vitesse de groupe moyenne $\vec{v}$ à l'énergie interne totale E et l'impulsion interne totale $\vec{U}$ du système. Ces deux équations d'état sont obtenues à l'aide des deux contraintes qui expriment la conservation de l'énergie totale et de l'impulsion totale du système:

$$\begin{cases} E = \sum_{\vec{k}} \hbar \omega(\vec{k}) f^{(0)}(\vec{k}). \\ \vec{U} = \sum_{\vec{k}} \hbar \vec{k} f^{(0)}(\vec{k}). \end{cases} \quad (2.11)$$

Pour un milieu non dispersif et en étendant la somme sur les vecteurs $\vec{k}$ à une intégration sur l'élément de volume $V d^3k/(2\pi)^3$ où V est le volume du système, nous obtenons:

$$\begin{cases} E = \frac{\pi^2}{30} \frac{V}{\hbar^3 c^3} (k_B T)^4 \frac{1 + \frac{1}{3}(\frac{v}{c})^2}{(1 - (\frac{v}{c})^2)^3}. \\ \vec{U} = \frac{2\pi^2}{45} \frac{V}{\hbar^3 c^3} (k_B T)^4 \frac{1}{(1 - (\frac{v}{c})^2)^3} \frac{\vec{v}}{c^2}. \end{cases} \quad (2.12)$$

Considérons maintenant ces deux équations d'état dans deux cas particuliers et tout d'abord celui pour lequel l'impulsion interne du système est nulle $\vec{U} = \vec{0}$. L'inversion de ces deux

équations permet d'obtenir les expressions de T et de $\vec{v}$:

$$\begin{cases} E = \frac{\pi^2}{30} \frac{V}{\hbar^3 c^3} (k_B T)^4. \\ \vec{v} = \vec{0}. \end{cases} \quad (2.13)$$

Puisque l'impulsion interne du système est nulle $\vec{U} = \vec{0}$, les photons sont répartis selon la distribution isotrope de Planck obtenue pour $\vec{v} = \vec{0}$. La relation entre la température et l'énergie interne du système est alors donnée par la loi de Stéphan.

Le second cas limite correspond au contraire au cas où l'anisotropie est maximum. Imaginons qu'à un instant donné, tous les photons se déplacent dans la même direction $\vec{d}$ et par conséquent, avec la même vitesse de groupe $\vec{v}_g = c\vec{d}$. L'énergie et l'impulsion internes du système sont alors reliées par la formule $|\vec{U}| = E/c$ et les équations d'état donnent:

$$\begin{cases} T = 0. \\ \vec{v} = c\vec{d}. \end{cases} \quad (2.14)$$

La température de ce système est nulle. En effet d'après ce que l'on a vu au chapitre précédent, dans cette situation tous les processus microscopiques sont colinéaires de même sens et le gaz de photons restera donc "ordonné", dans le sens où il n'y a pas de redistribution spatiale des directions de propagation des particules. Dans cet exemple, nous avons en fait un ensemble de photons qui transportent l'énergie E dans la direction $\vec{d}$ à la vitesse c . Les processus N ne font que modifier la répartition des photons, sans changer ce comportement collectif. Autrement dit, seuls des processus microscopiques non colinéaires peuvent faire interagir des photons se propageant dans des directions *différentes* et leur donner un comportement collectif. Cette propriété de non colinéarité des interactions est donc fondamentale pour avoir un comportement hydrodynamique non trivial du gaz de photons.

2.3 Le libre parcours moyen.

Avant de passer à l'étude du système hors équilibre, nous allons chercher à évaluer le libre parcours moyen des photons entre deux collisions N. Si on note n le nombre moyen de particules à l'équilibre et Z le nombre de collisions par unité de temps alors le libre parcours moyen l_N est égal à:

$$l_N = c \frac{n}{Z}. \quad (2.15)$$

Il est facile d'obtenir n à partir de la fonction de distribution d'équilibre:

$$n = \sum_{\vec{k}} f^{(0)}(\vec{k}). \quad (2.16)$$

Par soucis de simplification, nous allons évaluer n et l_N dans le cas particulier d'un système isotrope dont la fonction de distribution est la fonction de Planck. En remplaçant la somme sur $\vec{k}$ par une intégrale, on obtient:

$$n = \frac{V}{(2\pi)^3} \int_0^{+\infty} \frac{1}{e^{\beta\hbar\omega(\vec{k})} - 1} 4\pi k^2 dk = \frac{V}{\pi^2} \zeta(3) \left(\frac{k_B T}{\hbar c} \right)^3 \quad (2.17)$$

où $\zeta(x)$ est la fonction zeta de Riemann.

Quant au nombre de collisions par unité de temps, il est directement relié à la probabilité de transition des processus N par la formule:

$$Z = \sum_{\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3, \vec{k}_4} W(\vec{k}_1, \vec{k}_2 \rightarrow \vec{k}_3, \vec{k}_4) \quad (2.18)$$

En utilisant la formule (1.24) du chapitre précédent, on obtient pour un système à l'équilibre:

$$Z = \frac{V^4}{(2\pi)^{12}} \frac{\chi_3^2 \hbar^2}{\chi_1^2 \epsilon_0^4} \iiint \delta(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4) \delta(\vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3 - \vec{k}_4) \times \\ \omega_1 \omega_2 \omega_3 \omega_4 f_1^{(0)} f_2^{(0)} (f_3^{(0)} + 1) (f_4^{(0)} + 1) d^3 k_1 d^3 k_2 d^3 k_3 d^3 k_4. \quad (2.19)$$

En utilisant les changements de variables $\vec{y}_i = \beta\hbar c \vec{k}_i$ ($|\vec{y}_i| = \beta\hbar \omega_i$), on obtient la formule:

$$Z = 4 \frac{V^4}{(2\pi)^{12}} \frac{\chi_3^2 \hbar^2}{\chi_1^4 \epsilon_0^4 c^9} (\beta\hbar)^{-12} \iiint \delta(y_1 + y_2 - y_3 - y_4) \delta(\vec{y}_1 + \vec{y}_2 - \vec{y}_3 - \vec{y}_4) \times \\ y_1 y_2 y_3 y_4 f^{(0)}(y_1) f^{(0)}(y_2) (f^{(0)}(y_3) + 1) (f^{(0)}(y_4) + 1) d^3 y_1 d^3 y_2 d^3 y_3 d^3 y_4, \quad (2.20)$$

que l'on peut réécrire, en ne gardant explicitement que la dépendance en température:

$$Z = Z_0 T^{12}. \quad (2.21)$$

Cette augmentation du nombre de collisions par unité de temps avec la température est directement reliée à l'augmentation du nombre moyen de photons. On obtient ainsi un libre parcours moyen l_N qui varie comme T^{-9} . Cette analyse dimensionnelle a été introduite par Herring dans le cas d'une relation de dispersion quelconque et pour des interactions à trois quasi-particules¹ [17]. La fréquence des processus N augmente donc avec la force des non linéarités d'une part et avec la température du système d'autre part.

2.4 Les équations de “Navier Stokes”.

2.4.1 Les équations de continuité.

Nous allons maintenant revenir à l'étude d'un système hors équilibre, décrit par la fonction de distribution $f(\vec{r}, \vec{k}, t)$. Pour obtenir les équations macroscopiques de transport pour l'énergie

1. Dans le cas des processus d'interaction à trois particules dans un milieu non dispersif, elle permet de montrer que le libre parcours moyen varie comme T^{-4} .

et l'impulsion, on doit multiplier l'équation de Boltzmann (2.1) par $\hbar\omega$ ou $\hbar\vec{k}$ et sommer sur toutes les valeurs de $\vec{k}$. En introduisant les quantités:

$$\left\{ \begin{array}{l} \epsilon(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}} \hbar\omega(\vec{k}) f(\vec{r}, \vec{k}, t) \\ \vec{j}(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}} \hbar\omega(\vec{k}) \vec{v}_g(\vec{k}) f(\vec{r}, \vec{k}, t) \\ \vec{u}(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}} \hbar\vec{k} f(\vec{r}, \vec{k}, t) \\ \overleftrightarrow{\pi}(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}} \hbar\vec{k} \otimes \vec{v}_g(\vec{k}) f(\vec{r}, \vec{k}, t) \end{array} \right. \quad (2.22)$$

où ϵ , $\vec{j}$, $\vec{u}$ et $\overleftrightarrow{\pi}$ représentent respectivement la densité d'énergie, la densité de flux d'énergie, la densité d'impulsion et la densité de flux d'impulsion par unité de volume², on peut écrire les équations macroscopiques de transport sous la forme:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \epsilon}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = \sum_{\vec{k}} \hbar\omega \mathcal{I}[f]. \\ \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \overleftrightarrow{\pi} = \sum_{\vec{k}} \hbar\vec{k} \mathcal{I}[f]. \end{array} \right. \quad (2.23)$$

Nous devons alors tenir compte des lois de conservation de l'énergie pour les processus N et R et de l'impulsion pour les processus N qui s'expriment par les relations:

$$\sum_{\vec{k}} \hbar\omega \mathcal{N}[f] = 0 ; \quad \sum_{\vec{k}} \hbar\omega \mathcal{R}[f] = 0 ; \quad \sum_{\vec{k}} \hbar\vec{k} \mathcal{N}[f] = \vec{0}. \quad (2.24)$$

Par contre les processus R ne conservant pas l'impulsion, nous allons voir apparaître un terme de relaxation pour la densité $\vec{u}$. En effet, par analogie avec le gaz de Lorentz ([25], § 54), on peut définir un temps caractéristique de relaxation τ_R tel que l'on ait:

$$\sum_{\vec{k}} \hbar\vec{k} \mathcal{R}[f] = -\frac{\vec{u}}{\tau_R}. \quad (2.25)$$

Dans le cas de diffuseurs ponctuels et isotropes, ce temps τ_R est égal à $1/nc\sigma_T$ où n est la densité en diffuseurs et σ_t la section efficace totale de diffusion par une impureté. Nous avons donc deux équations macroscopiques de continuité:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \epsilon}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0, \\ \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \overleftrightarrow{\pi} = -\frac{\vec{u}}{\tau_R}, \end{array} \right. \quad (2.26)$$

2. $\overleftrightarrow{\pi}$ est un tenseur d'ordre 2 dont la composante $\pi_{ij} = \sum_{\vec{k}} \hbar k_i v_{g_j} f(\vec{r}, \vec{k}, t)$ représente le flux dans la direction j de la composante k_i de l'impulsion

mais afin d'obtenir un système fermé, il nous faut encore exprimer les deux densités de courant $\vec{j}$ et $\overset{\leftrightarrow}{\pi}$ en fonction des densités ϵ et $\vec{u}$. Dans le cas d'un milieu non dispersif, il est facile de montrer que la relation $\vec{j} = c^2 \vec{u}$ est vérifiée quelque soit la forme de la fonction de distribution $f(\vec{r}, \vec{k}, t)$. Par contre, il n'existe pas de relation aussi simple pour le tenseur $\overset{\leftrightarrow}{\pi}$ et nous allons devoir résoudre l'équation de Boltzmann et déterminer la fonction de distribution $f(\vec{r}, \vec{k}, t)$ pour pouvoir ensuite obtenir l'expression de $\overset{\leftrightarrow}{\pi}$ à l'aide des formules (2.22).

2.4.2 Le fluide parfait.

L'équilibre thermodynamique local.

Dans un premier temps nous allons considérer le cas d'un fluide parfait qui relaxe instantanément vers la fonction de distribution d'équilibre locale:

$$f(\vec{r}, \vec{k}, t) = f^{(0)}(\vec{r}, \vec{k}, t) = \frac{1}{e^{\beta(\vec{r}, t)(\hbar\omega(\vec{k}) - \vec{v}(\vec{r}, t) \cdot \hbar\vec{k})} - 1}. \quad (2.27)$$

Dans cette approximation, les processus N sont supposés très fréquents et donc en tout point de l'espace et à tout instant, le système peut être décrit par la fonction de distribution d'équilibre $f^{(0)}$ avec des paramètres $\beta(\vec{r}, t)$ et $\vec{v}(\vec{r}, t)$ qui varient sur des échelles spatiales et temporelles grandes devant les échelles microscopiques associées aux processus N.

La pression de radiation.

En reportant cette fonction de distribution dans l'expression microscopique (2.22) de $\overset{\leftrightarrow}{\pi}$, on montre que l'on peut réécrire le tenseur $\overset{\leftrightarrow}{\pi}$ sous la forme:

$$\overset{\leftrightarrow}{\pi} = p \overset{\leftrightarrow}{I} + (\epsilon - 3p) \frac{\vec{u} \otimes \vec{u}}{u^2}, \quad (2.28)$$

où $\overset{\leftrightarrow}{I}$ est le tenseur identité et où la pression de radiation p , la partie isotrope du tenseur de flux d'impulsion $\overset{\leftrightarrow}{\pi}$, est égale à:

$$p = \frac{1}{3} \sqrt{4\epsilon^2 - 3 \frac{\vec{u}^2}{c^2}} - \frac{\epsilon}{3}. \quad (2.29)$$

Dans la figure 2.2, nous avons représenté p/ϵ en fonction de $|\vec{u}|/c\epsilon$. Dans le cas d'une fonction de distribution isotrope, avec $\vec{v} = \vec{0}$ et donc $\vec{u} = \vec{0}$, la pression de radiation est bien sur égale à la pression de radiation du corps noir $\epsilon/3$. Dans le second cas limite où l'anisotropie est maximale $|\vec{u}| = c\epsilon$, tous les photons se déplacent dans la même direction et la pression de radiation, qui représente le flux isotrope d'impulsion, est nulle.

Les équations du “second son”.

Nous avons bien obtenu un système macroscopique d'équations fermées mais la présence de la racine carrée dans l'expression de la pression de radiation rend le système difficile à

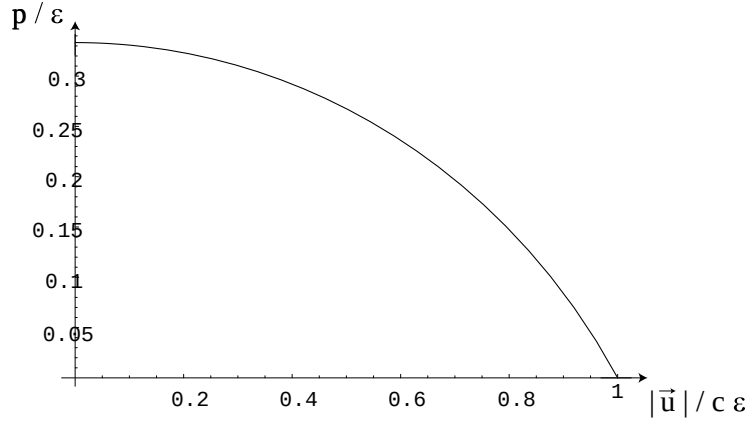


FIG. 2.2 - La pression de radiation p en fonction de la densité d'impulsion $\vec{u}$ pour un gaz de photons en régime fortement non linéaire.

résoudre. Nous allons donc considérer pour commencer un système proche de l'état d'équilibre thermodynamique “global” du corps noir, état d'équilibre défini par une température uniforme T_0 et par l'absence de vitesse de dérive du gaz $\vec{v} = \vec{0}$. Pour un système proche de cet état, on pose:

$$\begin{cases} \beta(\vec{r}, t) = \beta_0 + \delta\beta(\vec{r}, t) \\ \vec{v}(\vec{r}, t) = \delta\vec{v}(\vec{r}, t) \end{cases} \quad (2.30)$$

et à l'ordre le plus bas en $\delta\beta(\vec{r}, t)/\beta_0$ et en $\delta\vec{v}(\vec{r}, t)/c$, on obtient $p = \epsilon/3$. Les équations macroscopiques de transport se réduisent alors à:

$$\begin{cases} \frac{\partial \epsilon}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0. \\ \frac{\partial \vec{j}}{\partial t} + \frac{c^2}{3} \vec{\nabla} \epsilon = -\frac{\vec{j}}{\tau_R}. \end{cases} \quad (2.31)$$

Ces équations hydrodynamiques de transport sont connues sous le nom d'équations du second son. En effet, en les combinant, on montre que la densité d'énergie est solution d'une équation de propagation avec un terme d'atténuation:

$$\frac{\partial^2 \epsilon}{\partial t^2} + \frac{1}{\tau_R} \frac{\partial \epsilon}{\partial t} - \frac{c^2}{3} \vec{\nabla}^2 \epsilon = 0. \quad (2.32)$$

La vitesse de propagation des ondes est la vitesse du second son:

$$c_{II} = \frac{c}{\sqrt{3}}. \quad (2.33)$$

Le facteur $1/\sqrt{3}$ est directement lié à la distribution statistique des photons dans l'espace des $\vec{k}$. Bien qu'à cet ordre d'approximation, la distribution des photons soit isotrope, c'est la moyenne

des carrés des vitesses des particules qui permet de déterminer la vitesse de propagation de l'onde "sonore".

Les "équations d'Euler".

Dans ce paragraphe, nous allons aller au-delà de l'approximation linéaire. À l'ordre suivant du développement, la pression de radiation est donnée par la formule:

$$p = \frac{\epsilon}{3} - \frac{1}{4\epsilon} \frac{\vec{u}^2}{c^2} \approx \frac{\epsilon}{3} - \frac{1}{4\epsilon_0} \frac{\vec{u}^2}{c^2} \quad (2.34)$$

où ϵ_0 est la densité moyenne d'énergie dans le système. Sur la figure 2.3, nous avons représenté la forme exacte de la pression de radiation et la fonction correspondant à cette formule approchée. Cette figure montre que le développement (2.34) permet de décrire des systèmes relativement

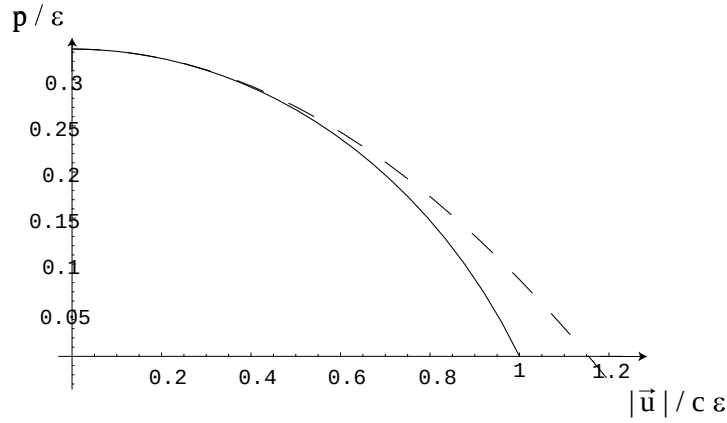


FIG. 2.3 - La pression de radiation p en fonction de la densité d'impulsion $\vec{u}$ (en traits pleins) et son développement limité au second ordre en $|\vec{u}|/c\epsilon$ (en traits pointillés).

éloignés de l'état d'équilibre total. En reportant ce développement dans l'expression de $\vec{\pi}$, on obtient les équations de transport suivantes:

$$\begin{cases} \frac{\partial \epsilon}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0, \\ \frac{\partial \vec{j}}{\partial t} + \frac{c^2}{3} \vec{\nabla} p + \frac{3}{4\epsilon_0} \vec{\nabla} \cdot \vec{j} \otimes \vec{j} = -\frac{\vec{j}}{\tau_R}. \end{cases} \quad (2.35)$$

L'équation de conservation de l'impulsion pour le fluide parfait a donc la même structure que l'équation d'Euler pour un fluide ordinaire avec un terme de pression $\vec{\nabla} p$ et un terme non linéaire d'"entraînement" $\vec{\nabla} \cdot \vec{j} \otimes \vec{j}$.

2.4.3 Le fluide visqueux.

En théorie cinétique des gaz, les termes de viscosité apparaissent lorsque l'on suppose que le fluide relaxe en un temps τ_N non nul vers la distribution d'équilibre $f^{(0)}$ et que l'on tient compte de l'écart de la fonction de distribution f par rapport à $f^{(0)}$ [18]. Pour tenir compte de ce retard dans l'établissement de l'équilibre, nous allons utiliser l'opérateur simplifié à un temps de relaxation:

$$\mathcal{N}[f] = -\frac{f - f^{(0)}}{\tau_N}. \quad (2.36)$$

Nous allons rester bien sur dans le régime où les processus N sont les processus microscopiques les plus fréquents et on aura donc $\mathcal{N} \gg \mathcal{L}, \mathcal{R}$ et on va chercher une solution itérative de l'équation de Boltzmann sous la forme $f = f_0 + f_1 + \dots$ avec:

$$\frac{f_1}{f_0} \sim \frac{\mathcal{L}}{\mathcal{N}}. \quad (2.37)$$

À l'ordre 0 en $\mathcal{L}/\mathcal{N}$, l'équation de Boltzmann donne simplement $\mathcal{N}[f_0] = 0$ dont la solution est $f_0 = f^{(0)}$. C'est l'ordre d'approximation du fluide parfait. On obtient l'expression de f_1 au premier ordre en τ_N et en négligeant l'influence des processus R, nous avons:

$$f_1(\vec{r}, \vec{k}, t) = -\tau_N \mathcal{L}[f^{(0)}(\vec{r}, \vec{k}, t)]. \quad (2.38)$$

En injectant cette relation dans l'expression microscopique (2.22) du tenseur $\overset{\leftrightarrow}{\pi}$ et en le décomposant en $\overset{\leftrightarrow}{\pi} = \overset{\leftrightarrow}{\pi}_0 + \overset{\leftrightarrow}{\pi}_1$ où $\overset{\leftrightarrow}{\pi}_0$ est la composante du fluide parfait calculée dans le paragraphe précédent et $\overset{\leftrightarrow}{\pi}_1$, sa composante visqueuse égale à $\overset{\leftrightarrow}{\pi}_1 = \sum \hbar \vec{k} \vec{v}_g(\vec{k}) f_1(\vec{r}, \vec{k}, t)$, nous obtenons à l'ordre le plus bas en $\delta\beta/\beta_0$ et $\delta\vec{v}/c$:

$$\vec{\nabla} \cdot \overset{\leftrightarrow}{\pi}_1 = -\frac{c^2 \tau_N}{15} \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{j}) - \frac{c^2 \tau_N}{5} \vec{\nabla}^2 \vec{j}. \quad (2.39)$$

Nous n'avons plus qu'à introduire ces deux termes dans les équations macroscopiques de continuité pour obtenir finalement:

$$\begin{cases} \frac{\partial \epsilon}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0. \\ \frac{\partial \vec{j}}{\partial t} + \frac{c^2}{3} \vec{\nabla} p + \frac{3}{4\epsilon_0} \vec{\nabla} \cdot \vec{j} \otimes \vec{j} - \frac{c^2 \tau_N}{5} \left(\frac{1}{3} \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{j}) + \vec{\nabla}^2 \vec{j} \right) = -\frac{\vec{j}}{\tau_R}. \end{cases} \quad (2.40)$$

Mis à part le terme de relaxation $-\vec{j}/\tau_R$ qui est dû à la présence d'impuretés dans le système, les équations de transport obtenues (2.40) sont analogues aux équations de Navier Stokes pour un fluide classique compressible. Les deux termes supplémentaires ont en effet la même structure que les termes de première et de deuxième viscosité pour un fluide compressible. Le fluide photonique présentera donc tous les comportements des fluides ordinaires et dans le chapitre suivant, nous nous intéresserons en particulier à l'étude du transport d'énergie dans un capillaire en parfaite analogie avec l'étude de l'écoulement de Poiseuille. Dans la dernière section de ce chapitre nous allons considérer la propagation d'une onde de choc dans le gaz de photons.

2.5 L'onde de choc.

On appelle onde de choc, un profil mono-dimensionnel tel que celui représenté figure 2.4 qui se propage sans déformation et à vitesse constante dans une direction donnée. Ce profil

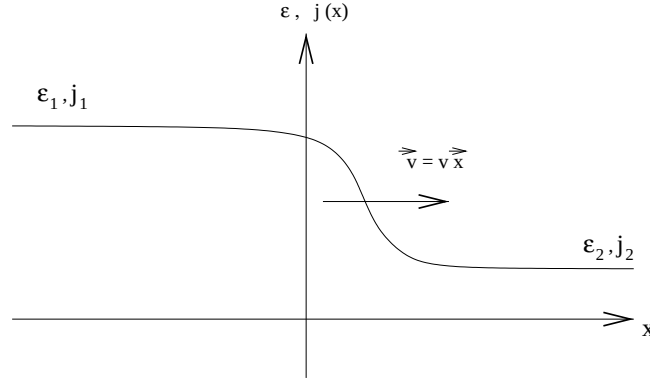


FIG. 2.4 - Le profil d'une onde de choc se propageant dans la direction $\vec{x}$. $\vec{v}$ est la vitesse de propagation de l'onde. ϵ_1 , ϵ_2 , j_1 et j_2 , les valeurs limites de ϵ et de j pour $x = \pm\infty$, sont supposées constantes.

correspond à la situation où une densité d'énergie ϵ_1 et une densité de courant j_1 supérieures à ϵ_2 et j_2 sont soudainement envoyées sur le milieu. Comme on suppose que le profil n'est pas déformé au cours de la propagation le long de l'axe $\vec{x}$, on cherche une solution des équations de transport (2.40) sous la forme:

$$\begin{cases} \epsilon(\vec{r}, t) = \epsilon_0 + \delta\epsilon(x - vt) \\ \vec{j}(\vec{r}, t) = j(x - vt) \vec{x} \end{cases} \quad (2.41)$$

où ϵ_0 est la valeur moyenne de la densité d'énergie $\epsilon(x, t)$. On pose $\xi = x - vt$. En négligeant le terme de relaxation du aux impuretés dans les équations (2.40), on obtient au second ordre en $\delta\epsilon/\epsilon_0$ et $j/c\epsilon_0$:

$$\begin{cases} \delta\epsilon(\xi) = -\frac{1}{v} \frac{(j_1 - j_2)}{2} \tanh\left(\frac{\xi}{L}\right) \\ j(\xi) = \frac{(j_1 + j_2)}{2} - \frac{(j_1 - j_2)}{2} \tanh\left(\frac{\xi}{L}\right) \\ v = \frac{c}{\sqrt{3}} \left(1 + \frac{\sqrt{3}}{4} \frac{(j_1 + j_2)}{c\epsilon_0}\right) \end{cases} \quad (2.42)$$

avec:

$$L = 4 \frac{c^2 \tau_N}{15} \frac{\epsilon_0}{(j_1 - j_2)} . \quad (2.43)$$

Cette longueur L , qui est proportionnelle au coefficient de viscosité $c^2\tau_N/15$, est la longueur caractéristique sur laquelle le profil de l'onde passe de ϵ_1, j_1 à ϵ_2, j_2 . Pour $j_2 = 0$, on remarque que la vitesse de l'onde de choc vaut:

$$v = \frac{c}{\sqrt{3}} \left(1 + \frac{\sqrt{3}}{4} \frac{j_1}{c\epsilon_0} \right). \quad (2.44)$$

On retrouve ici le phénomène de déferlement des ondes: plus j_1 est grand ("Plus la vague est grande"), plus l'onde se déplace rapidement. L'existence et la stabilité linéaire du profil 2.4 sont en fait dues à un équilibre entre le déferlement lié aux non linéarités et la dissipation liée à la viscosité [38].

Chapitre 3

L'écoulement de Poiseuille.

Parmi les nombreux phénomènes hydrodynamiques qui peuvent être décrits à l'aide des équations de transport du chapitre précédent, nous allons maintenant considérer le cas de l'écoulement d'un gaz de quasi-particules dans un cylindre de rayon R en régime stationnaire. La description de cet écoulement de type Poiseuille pour des phonons a été donnée pour la première fois par Sussmann et Thellung [36]; Guyer et Krumhansl ont ensuite obtenu une expression pour la conductivité thermique du gaz en résolvant les équations de transport dans une géométrie cylindrique [15]. Dans leur travail, ils ont notamment considéré que le milieu non linéaire à l'intérieur du cylindre était isotrope et non dispersif. De plus ils ont supposé que le gaz ne peut pas “glisser” le long des parois du cylindre et donc que la densité de courant d'énergie est nulle sur la surface du cylindre. Cette étude a ensuite été utilisée pour interpréter les mesures de conductivité thermique faites par Smontarra *et al* [35]. Mais ces mesures présentent un pic beaucoup plus accentué que ce que la théorie ne laisse prévoir. Les auteurs supposent que ce comportement exceptionnel provient de la forte anisotropie de leur matériau. Dans ce chapitre, nous allons d'une part étudier l'influence des parois du cylindre sur l'écoulement de Poiseuille en utilisant les conditions aux limites dites glissantes et d'autre part étudier le cas d'un milieu quasi-mono-dimensionnel dont la relation de dispersion est très anisotrope.

3.1 Influence des conditions limites sur l'écoulement de Poiseuille.

3.1.1 L'équation de Poiseuille.

Nous allons considérer un gaz de quasi-particules évoluant dans un cylindre de rayon R et de longueur L (voir figure 3.1). Dans cette partie, le milieu qui compose le cylindre sera supposé isotrope et non dispersif. D'après le chapitre précédent, en régime stationnaire, les

équations linéaires de transport sont:

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0, \\ \lambda^2 \vec{\nabla}^2 \vec{j} - \vec{j} = D \vec{\nabla} \epsilon, \end{cases} \quad (3.1)$$

où nous avons posé $D = \frac{1}{3}c^2\tau_R$ et $\lambda = \sqrt{\frac{c^2}{5}\tau_N\tau_R}$. Si on impose un gradient d'énergie le long du cylindre alors en régime stationnaire, un courant d'énergie va se développer selon les formules (3.1). Compte tenu de la symétrie cylindrique du système, on va chercher une solution du

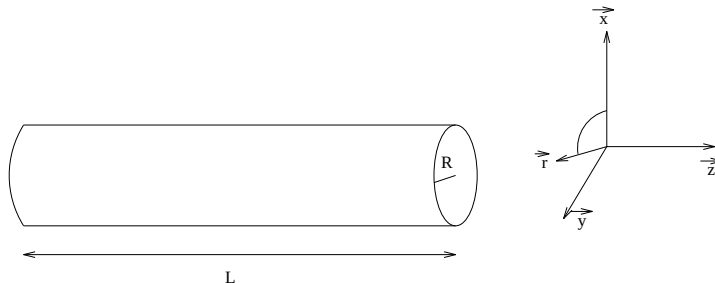


FIG. 3.1 - Le capillaire de rayon R et de longueur L . L'axe du cylindre est choisi dans la direction $\vec{z}$.

problème sous la forme $\epsilon = \epsilon(z)$ et $\vec{j} = j(r)\vec{u}_z$. L'équation qui régit cet écoulement de Poiseuille s'écrit donc:

$$\lambda^2 \vec{\nabla}^2 j(r) - j(r) = D \frac{d\epsilon}{dz}(z). \quad (3.2)$$

On remarque que le premier membre de cette équation ne dépend que de r alors que le second membre ne dépend que de z . En conséquence, ils sont tous les deux égaux à la constante $D\Delta\epsilon/L$ où $\Delta\epsilon = \epsilon(L) - \epsilon(0)$ est la différence d'énergie imposée entre les deux extrémités du cylindre.

3.1.2 Les conditions limites glissantes.

Pour résoudre cette équation, il nous faut préciser les conditions limites sur les parois du cylindre. Dans leur article, Guyer et Krumhansl ont considéré les conditions aux limites nulles $j(R) = 0$ [15]. Au niveau microscopique, cela revient à supposer d'une part qu'il n'y a pas de flux d'énergie à travers les parois du cylindre (la densité de courant doit donc être tangentielle aux parois) et d'autre part que toutes les particules qui sont absorbées par les atomes de la paroi sont réémises localement de façon isotrope selon la distribution de Planck, à la température T . Il y a donc autant de particules réémises vers la droite que vers la gauche et lorsque l'équilibre entre les parois du cylindre et le fluide est atteint, il ne peut subsister de courant d'énergie le long de la paroi. Dans ce travail, nous allons utiliser les conditions

aux limites dites glissantes. Supposons qu'une particule qui entre en collision avec une paroi du cylindre ait la probabilité $1 - \alpha$ d'être réfléchié élastiquement et la probabilité α d'être absorbée puis réémise ultérieurement dans une direction aléatoire. α est appelé coefficient d'accomodation. En évaluant le transfert d'impulsion du fluide vers la paroi à l'aide du modèle microscopique présenté ci dessus d'une part et macroscopiquement d'autre part à l'aide de la force visqueuse qu'exerce le fluide sur le cylindre (voir [18]), on obtient les conditions limites glissantes:

$$j(R) = -c\tau_N \frac{1 - \alpha}{\alpha} \frac{\partial j(R)}{\partial r}. \quad (3.3)$$

Pour $\alpha = 1$, il n'y a pas de glissement possible du fluide sur les parois et on retrouve bien les conditions aux limites nulles: $j(R) = 0$.

3.1.3 Le profil du courant d'énergie.

La résolution de l'équation de Poiseuille (3.2) à l'aide des conditions limites glissantes (3.3) donne:

$$j(r) = -D \frac{\Delta\epsilon}{L} \left\{ 1 - \frac{I_0\left(\frac{r}{\lambda}\right)}{I_0\left(\frac{R}{\lambda}\right) + \sqrt{\frac{5\tau_N}{\tau_R}} \frac{1-\alpha}{\alpha} I_1\left(\frac{R}{\lambda}\right)} \right\} \quad (3.4)$$

où I_0 et I_1 sont les fonctions de Bessel modifiées d'ordre 0 et 1. Sur la figure 3.2, nous avons représenté quelques profils de courant pour diverses valeurs de α et du rapport R/λ . Pour

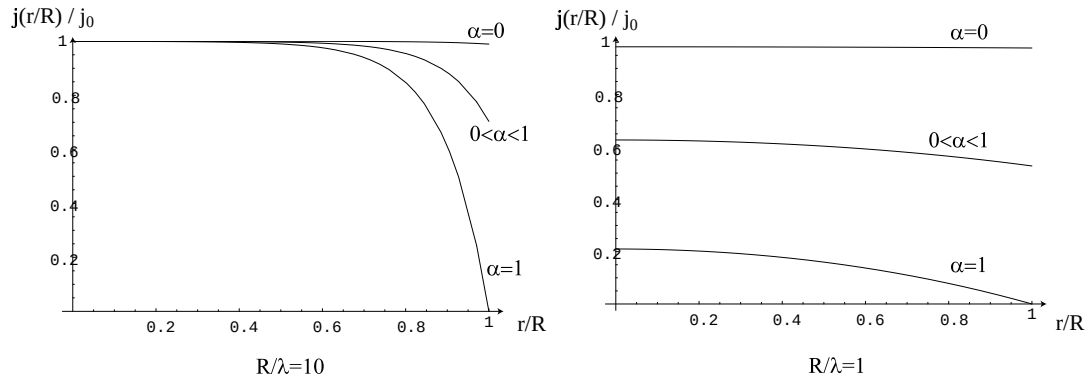


FIG. 3.2 - Le profil de la densité de courant d'énergie dans un capillaire de rayon R . r mesure la distance à l'axe du cylindre. Toutes les courbes sont normalisées par la valeur $j_0 = D\Delta\epsilon/L$. On remarque que l'influence des parois du cylindre est particulièrement importante lorsque l'on utilise les conditions aux limites nulles $\alpha = 1$ et lorsque R est comparable ou petit devant la longueur λ .

interpréter ces courbes, il faut se souvenir que l'on a un fluide visqueux en interaction avec une paroi et c'est donc par l'intermédiaire de la viscosité que les parois modifient le profil de l'écoulement à l'intérieur du cylindre. Pour des fluides peu visqueux et lorsque le rayon du

capillaire est suffisamment grand ($R/\lambda \gg 1$), l'influence des conditions limites est localisée au voisinage des parois du cylindre (voir figure 3.2). Par contre, dans l'autre limite ($R/\lambda \leq 1$), la totalité du profil de courant est affecté par les conditions limites.

L'autre paramètre qui modifie la forme des profils est le coefficient d'accomodation. Lorsque α est nul, les parois ne participent pas à la relaxation de l'impulsion du système. On constate alors que le profil de courant dans le cylindre est constant et vaut

$$j(r) = -D \frac{\Delta\epsilon}{L} \quad (3.5)$$

où $D = 1/3c^2 \tau_R$ est le coefficient de diffusivité thermique. Par contre lorsque α est non nul et plus particulièrement pour $\alpha = 1$, les parois participent à la relaxation de l'impulsion des particules et il en résulte une diminution des profils de densité de courant au voisinage des parois.

3.1.4 Le flux d'énergie.

Le flux d'énergie Φ à travers une section transverse du cylindre est donné par la formule:

$$\Phi = \frac{1}{\pi R^2} \int_0^R j(r) 2\pi r dr = -D \frac{\Delta\epsilon}{L} \left\{ 1 - \frac{2\lambda}{R} \frac{I_1(\frac{R}{\lambda})}{I_0(\frac{R}{\lambda}) + \sqrt{\frac{5\tau_N}{\tau_R} \frac{1-\alpha}{\alpha}} I_1(\frac{R}{\lambda})} \right\}. \quad (3.6)$$

Rappelons tout d'abord les résultats obtenus par Guyer et Krumhanskl dans le cas des conditions aux limites nulles ($\alpha = 0$). Le flux d'énergie, dans cette situation, est égal à:

$$\Phi = -D \frac{\Delta\epsilon}{L} f\left(\frac{R}{\lambda}\right), \quad (3.7)$$

où la fonction $f(x) = 1 - \frac{2}{x} \frac{I_0(x)}{I_1(x)}$ est représentée sur la figure 3.3. Dans la limite $R \gg \lambda$, on

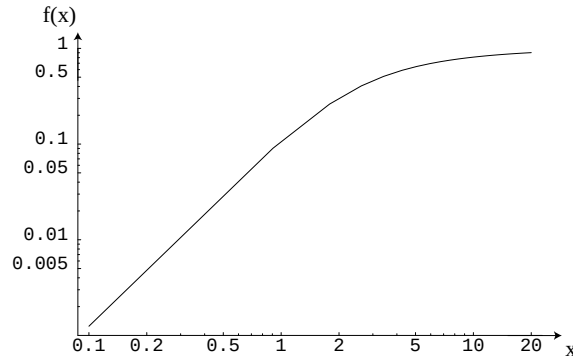


FIG. 3.3 - Diagramme log-log de la fonction $f(x) = 1 - \frac{2}{x} \frac{I_0(x)}{I_1(x)}$.

retrouve:

$$\Phi = -D \frac{\Delta\epsilon}{L}. \quad (3.8)$$

Dans ce régime où le rayon du cylindre est grand devant λ , l'influence des conditions limites est négligeable et le transport d'énergie est limité par les diffusions sur les impuretés. Le temps caractéristique qui intervient dans la conductivité thermique du système est donc le temps de relaxation τ_R associé aux processus R: $D = 1/3c^2\tau_R$.

Dans la limite $R \ll \lambda$, par contre, l'influence des conditions limites n'est plus négligeable et nous avons:

$$\Phi = -\frac{1}{24}c^2\frac{\tau_C^2}{\tau_N}\frac{\Delta\epsilon}{L}. \quad (3.9)$$

Dans cette formule, nous avons introduit le temps de relaxation de Casimir: τ_C . C'est le temps que met une particule pour aller d'une paroi à l'autre du cylindre: $\tau_C = R/c$. On voit donc que le temps caractéristique entrant dans la diffusivité thermique est τ_C^2/τ_N . L'interprétation physique en a été donnée par Guyer et Krumhansl [15]. À cause de la présence des processus N, tout se passe en effet comme si les particules allaient d'une paroi à l'autre par une marche aléatoire dont la longueur de pas serait $c\tau_N$. Le temps que met une particule pour traverser le cylindre vaut alors τ_C^2/τ_N et c'est ce temps qui est le temps caractéristique de relaxation de l'impulsion dans le système. C'est celui que l'on retrouve dans la formule (3.9). Il faut noter que les équations hydrodynamiques de transport du chapitre précédent ne sont valables que lorsque τ_N est le temps microscopique le plus court du système. On a donc $\tau_N \ll \tau_C$ et $\tau_C^2/\tau_N \ll 1$. La présence des processus N rend la diffusivité thermique bien supérieure à celle du régime de Casimir.

Pour $\alpha < 1$, nous avons déjà vu que l'influence des parois diminue jusqu'au cas limite $\alpha = 0$. Les parois n'ont alors plus d'influence sur le transport d'énergie et le flux vaut $\phi = -D\Delta\epsilon/L$ quelque soit le rayon R du capillaire. (voir figure 3.4).

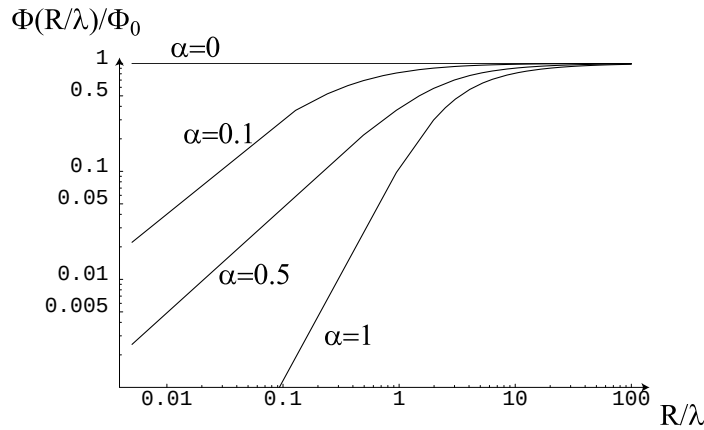


FIG. 3.4 - Le flux d'énergie à travers une section transverse du cylindre en fonction de R/λ . Toutes les courbes sont normalisées par la valeur $\Phi_0 = -D\Delta\epsilon/L$.

3.1.5 La conductivité thermique en fonction de la température.

Dans ce paragraphe, nous allons plus particulièrement considérer le transport de chaleur dans un cristal et déterminer la dépendance de la conductivité thermique $\chi = -\Phi/\frac{\Delta\epsilon}{L}$, en fonction de la température moyenne T_0 du cylindre. À basses températures, les dépendances des temps de relaxation τ_N et τ_R en fonction de la température T_0 peuvent être choisies de la forme:

$$\begin{cases} \tau_N(T_0) = Ae^{\Delta_0/T_0} \\ \tau_R(T_0) = \tau_0(e^{\Delta/T_0} - 1) \end{cases} \quad (3.10)$$

où A , τ_0 , Δ_0 et Δ sont des constantes caractéristiques du milieu [35]. Il nous faut également préciser la valeur du temps de relaxation de Casimir τ_C . Les particules ayant une probabilité α d'être absorbées par les parois du cylindre, elles parcourent la distance R/α entre deux absorptions successives sur les parois du cylindre. Le temps caractéristique de relaxation de l'impulsion par les parois du cylindre est donc:

$$\tau_C = \frac{1}{c} \frac{R}{\alpha}. \quad (3.11)$$

Il nous faut alors distinguer trois régimes selon les valeurs relatives de τ_C , τ_N et τ_R .

Régime de Casimir: $\tau_C \ll \tau_N, \tau_R$.

Dans ce régime, la relaxation de l'impulsion du système est entièrement due aux interactions des quasi-particules avec les parois du cylindre. La conductivité thermique est égale à:

$$\chi = \frac{1}{3}c^2 \tau_C. \quad (3.12)$$

Régime de Poiseuille: $\tau_N \ll \tau_C, \tau_R$.

C'est le régime décrit dans les paragraphes précédents. Nous avons donc:

$$\chi = \frac{1}{3}c^2 \tau_R f(R/\lambda) \quad (3.13)$$

avec:

$$f(R/\lambda) = 1 - \frac{2\lambda}{R} \frac{I_1(\frac{R}{\lambda})}{I_0(\frac{R}{\lambda}) + \sqrt{\frac{5\tau_N}{\tau_R} \frac{1-\alpha}{\alpha}} I_1(\frac{R}{\lambda})}. \quad (3.14)$$

Régime "résistif": $\tau_R \ll \tau_C, \tau_N$.

Enfin, dans cette dernière situation, c'est le temps caractéristique de relaxation de l'impulsion par les processus R qui intervient dans l'expression de la conductivité thermique:

$$\chi = \frac{1}{3}c^2 \tau_R. \quad (3.15)$$

Ces trois formules peuvent être interpolés simplement par l'expression suivante:

$$\chi = \frac{1}{3}c^2 \text{MAX} [\text{MIN} [\tau_C, \tau_N], \tau_R f(R/\lambda)] . \quad (3.16)$$

Nous avons représenté la conductivité thermique en fonction de T_0 pour diverses valeurs de α sur la figure 3.5. Pour $\alpha = 1$, la courbe possède un pic très marqué dont l'origine est liée à l'existence de l'écoulement de Poiseuille. En effet, ce pic correspond à la situation, où la conductivité thermique vaut (voir formule (3.9)):

$$\chi = \frac{1}{3}c^2 \frac{\tau_C^2}{\tau_N}. \quad (3.17)$$

Le temps caractéristique de relaxation de l'impulsion est alors τ_C^2/τ_N qui est beaucoup plus

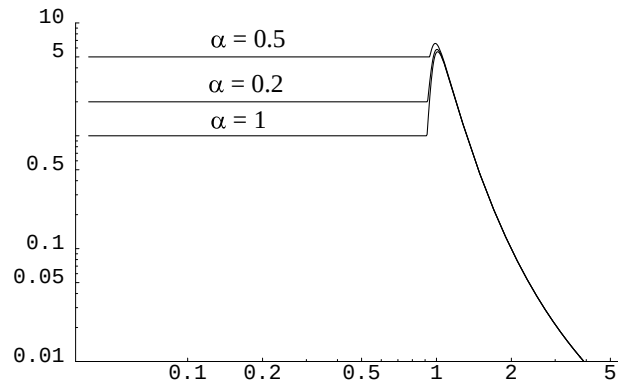


FIG. 3.5 - La conductivité thermique en fonction de la température moyenne T_0 du cylindre. Les 3 courbes correspondent respectivement à $\alpha = 1$, $\alpha = 0.5$ et $\alpha = 0.2$.

grand que τ_C puisque l'on est dans le régime de Poiseuille. Le seul effet visible, lorsque l'on change la valeur du coefficient d'accommodation, est la modification du temps de Casimir. Par contre, on ne constate pas de modification importante de la hauteur ou de la largeur du pic de conductivité. Toute cette étude ne permet donc pas d'améliorer les fits de la référence [35].

3.2 L'écoulement de Poiseuille dans un milieu anisotrope.

3.2.1 Milieu faiblement anisotrope.

Dans cette dernière partie, nous allons étudier l'influence de l'anisotropie de la relation de dispersion du matériau sur l'écoulement de Poiseuille. Dans un premier temps nous allons considérer des matériaux faiblement anisotropes avec une relation de dispersion elliptique $\omega^2(\vec{k}) = c_\perp^2 (k_x^2 + k_y^2) + c_\parallel^2 k_z^2$. On se limitera à la situation où la direction d'anisotropie z est confondue avec la direction de l'axe du cylindre. En reprenant la dérivation des équations macroscopiques de transport du chapitre 2 avec cette nouvelle relation de dispersion, on montre

que l'équation de Poiseuille peut de nouveau s'écrire:

$$\lambda^2 \vec{\nabla}^2 j(r) - j(r) = D \frac{\Delta \epsilon}{L}, \quad (3.18)$$

mais les expressions microscopiques des constantes λ et D sont différentes de celles de la situation précédente. En effet, D qui est la diffusivité thermique le long de l'axe z vaut:

$$D = \frac{1}{3} c_{\parallel}^2 \tau_R, \quad (3.19)$$

et λ , qui est la longueur sur laquelle l'influence des parois modifie l'écoulement des particules devient:

$$\lambda = c_{\perp} \sqrt{\frac{\tau_N \tau_R}{5}}. \quad (3.20)$$

L'analyse de l'écoulement de Poiseuille de la section précédente peut donc être reprise sans autre modification.

3.2.2 Milieu fortement anisotrope.

Considérons maintenant la situation d'une plus forte anisotropie telle qu'on peut la trouver dans un cristal quasi mono-dimensionnel. Dans cette situation, nous pouvons supposer une relation de dispersion de la forme $\omega^2(\vec{k}) = \Omega^2 \sin^2(\frac{k_x a + k_y a}{2}) + c_{\parallel} k_z^2$ où a est la largeur de la première zone de Brillouin (voir figure 3.6). Pour des systèmes quasi-mono-dimensionnels

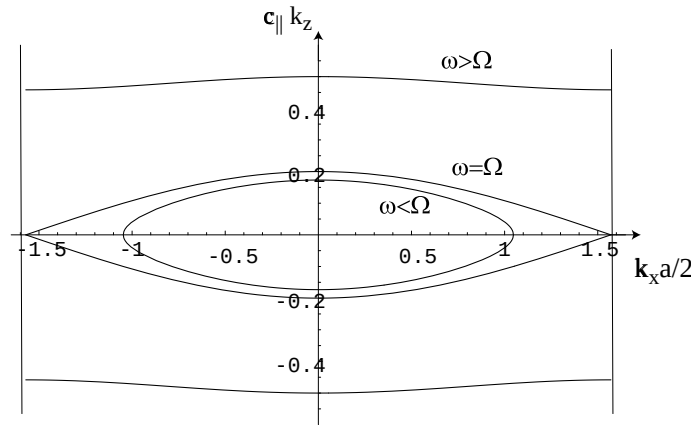


FIG. 3.6 - Les contours des surfaces équiénergies dans le plan (k_x, k_z) pour la relation de dispersion $\omega^2(\vec{k}) = \Omega^2 \sin^2(\frac{k_x a + k_y a}{2}) + c_{\parallel} k_z^2$.

équivalents à ceux considérés dans la référence [35] par exemple, k_z peut être très loin de la première zone de Brillouin alors que dans les directions transverses, k_x et k_y sont proches de la frontière de la première zone de Brillouin. Dans la limite de très forte anisotropie où

$a^2\Omega^2 \ll c_{\parallel}^2$, l'équation macroscopique de transport décrivant l'écoulement de Poiseuille est toujours (cf annexe A):

$$\lambda^2 \vec{\nabla}^2 j(r) - j(r) = D \frac{\Delta \epsilon}{L}, \quad (3.21)$$

mais les expressions microscopiques de D et de λ sont cette fois données par les relations:

$$\left\{ \begin{array}{l} D = c_{\parallel}^2 \tau_R. \\ \lambda = \sqrt{\frac{3}{64\pi^2} a^2 \Omega^2 \tau_N \tau_R \beta_0 \hbar \Omega}. \end{array} \right. \quad (3.22)$$

où $\beta_0 = 1/k_B T_0$. De nouveau, nous avons obtenu des expressions microscopiques différentes pour λ et D mais, nous n'avons pas modifié le comportement collectif des particules sur un niveau macroscopique et l'écoulement est toujours décrit par l'étude de la section précédente.

Conclusion.

En optique non linéaire, les processus paramétriques optiques sont des processus d'interaction entre photons au cours desquels de nouveaux photons, avec de nouvelles fréquences et de nouveaux vecteurs d'onde, sont créés dans le milieu non linéaire. Dans le cas des milieux homogènes et infinis, ces processus conservent l'énergie et l'impulsion des photons de façon tout à fait analogue aux processus normaux pour les phonons en physique du solide. L'analogie est même plus complète dans le cas des cristaux photoniques puisque pour ces cristaux périodiques, la loi de conservation de l'impulsion n'est vérifiée qu'à un vecteur du réseau réciproque près et les processus paramétriques optiques peuvent alors être soit de type "normaux", soit de type "umklapp". Cette analogie offre la possibilité de transposer tous les phénomènes de la physique du solide liés aux interactions entre phonons au domaine de l'optique non linéaire. Dans ce travail, nous nous sommes en particulier intéressés à la théorie du second son. Si on considère un gaz de photons pour lequel les processus paramétriques "normaux" sont très fréquents, on peut montrer que lorsque l'état stationnaire est atteint, les vecteurs d'onde lumineux sont distribués selon une loi de Planck modifiée: par rapport, à la distribution d'équilibre du corps noir il apparaît en effet un terme supplémentaire de dérive directement lié à la loi de conservation de l'impulsion et donc au mouvement collectif des particules. À l'aide de la théorie cinétique des gaz de Boltzmann, nous avons alors établi les équations de continuité pour l'énergie et l'impulsion. Ces équations décrivent le transport d'énergie et d'impulsion sur des échelles temporelles et spatiales grandes devant les échelles microscopiques associées aux processus normaux. Pour des systèmes proches de l'état d'équilibre du corps noir, ce sont les équations du second son. Nous avons montré qu'au delà de cette approximation "sonore", les équations de transport sont analogues aux équation de Navier Stokes pour un fluide compressible ordinaire. En particulier un terme non linéaire d'entraînement et des termes dissipatifs de viscosité apparaissent dans l'équation de conservation de l'impulsion. Dans ces conditions, l'hydrodynamique d'un fluide de quasi-particules est comparable à celle des fluides habituels. Comme exemples d'application de ces équations, nous avons considéré la propagation d'une onde de choc d'énergie dans le milieu non linéaire et l'écoulement de Poiseuille dans un capillaire. Nous avons en particulier étudié l'influence des parois du cylindre sur l'écoulement

en utilisant les conditions limites dites glissantes. Nous avons aussi rapidement étudié le cas de matériau dont la relation de dispersion est très anisotrope. Nous avons alors montré que dans cette situation, seules les expressions microscopiques de la constante de diffusivité et de la longueur d'influence des parois étaient modifiées, la description macroscopique de l'écoulement restant inchangée.

Annexe A

L'équation de Poiseuille pour un système fortement anisotrope.

Dans cette annexe, nous allons établir les équations de Poiseuille dans le cas d'un milieu fortement anisotrope. On rappelle qu'en régime stationnaire, les équations de transport peuvent s'écrire:

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0 \\ \vec{\nabla} \cdot \overset{\leftrightarrow}{\pi} = -\frac{\vec{u}}{\tau_R} \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

et il nous faut exprimer le courant $\vec{j}$ et le tenseur $\overset{\leftrightarrow}{\pi}$ en fonction de ϵ et $\vec{u}$ pour obtenir un système fermé. Dans la symétrie particulière de l'écoulement de Poiseuille, la température et la densité d'énergie ne dépendent que de z : $\beta = \beta(z)$, $\epsilon = \epsilon(z)$ et la vitesse de dérive et les densités de courant et d'impulsion ne dépendent que de r : $\vec{v} = v(r)\vec{z}$, $\vec{u} = u(r)\vec{z}$ et $\vec{j} = j(r)\vec{z}$. La fonction de distribution du fluide parfait est alors:

$$f(\vec{r}, \vec{k}) = f^{(0)}(\vec{r}, \vec{k}) = \frac{1}{e^{\beta(z)(\hbar\omega - \hbar\vec{v}(r) \cdot \vec{k})} - 1}. \quad (\text{A.2})$$

Pour un système proche de l'équilibre thermodynamique, on pose $\beta = \beta_0 + \delta\beta$ et $\vec{v} = \delta\vec{v}$ et on va considérer le développement de la fonction de distribution au premier ordre en $\delta\beta/\beta_0$ et en $\delta\vec{v}/c$:

$$f^{(0)}(\vec{r}, \vec{k}) = F(\beta_0\hbar\omega) + (\delta\beta(\vec{r}) - \beta_0\delta\vec{v}(\vec{r}) \cdot \vec{k})F'(\beta_0\hbar\omega) \quad (\text{A.3})$$

où $F(x) = 1/(e^x - 1)$ et $F'(x) = -e^x/(e^x - 1)^2$. En reportant cette formule dans l'expression microscopique du tenseur $\overset{\leftrightarrow}{\pi}$, on obtient l'expression de la composante $\overset{\leftrightarrow}{\pi}^{(0)}$ pour le fluide parfait:

$$\overset{\leftrightarrow}{\pi}^{(0)} = \sum_{\vec{k}} \hbar \vec{k} \vec{v}_g [F + \delta\beta F']. \quad (\text{A.4})$$

Dans le cas d'un milieu fortement anisotrope dont la relation de dispersion est de la forme $\omega^2(\vec{k}) = \Omega^2 \sin^2(\frac{k_x a + k_y a}{2}) + c_{\parallel}^2 k_z^2$ et si on suppose que la contribution principale de la somme

provient des vecteurs d'onde dont la composante k_z est loin de la frontière de la zone de Brillouin, vecteurs pour lesquels nous avons $c_{\parallel}^2 k_z^2 \gg \Omega^2 \sin^2(k_x a/2)$, on peut obtenir $\overset{\leftrightarrow}{\pi}^{(0)}$ en intégrant sur k_x et k_y de $-\pi/a$ à π/a et sur k_z de $\Omega/c_{\parallel}$ à ∞ . À l'ordre principal en $\sigma = \Omega a/c_{\parallel}$, nous obtenons:

$$\overset{\leftrightarrow}{\pi}^{(0)} = \epsilon \overset{\leftrightarrow}{I}. \quad (\text{A.5})$$

De la même façon, le calcul à l'ordre visqueux donne:

$$\overset{\leftrightarrow}{\pi}^{(1)} = -\nu \vec{\nabla} \vec{j}, \quad (\text{A.6})$$

où la constante ν est égale à:

$$\nu = \frac{3}{64\pi^2} \tau_N \beta_0 \hbar \frac{a^2}{c_{\parallel}^2} \Omega^3. \quad (\text{A.7})$$

En reportant ces expressions dans les équations (A.1), on montre que l'équation de Poiseuille s'écrit de nouveau:

$$\lambda^2 \vec{\nabla}^2 j(r) - j(r) = D \frac{\Delta \epsilon}{L}, \quad (\text{A.8})$$

mais les expressions microscopiques de λ et D sont dans cette situation:

$$\left\{ \begin{array}{l} D = c_{\parallel}^2 \tau_R. \\ \lambda = \frac{3}{64\pi^2} a^2 \Omega^2 \tau_N \tau_R \beta_0 \hbar \Omega. \end{array} \right. \quad (\text{A.9})$$

Annexe B

Fluid Mechanics of Photonic Gas in Nonlinear Media

Soumis à Physica D, le 26 juillet 2000.

Fluid Mechanics of Photonic Gas in Nonlinear Media.

R. Bressoux and R. Maynard

Laboratoire de Physique et de Modélisation de la Matière Condensée,

Université Joseph Fourier - CNRS,

Maison des magistères - BP 166,

38042 GRENOBLE cedex 9, FRANCE.

July 21, 2000

Abstract

We consider a gas of photons propagating in a non linear medium. We show that when the non linear parametric processes are extremely frequent, the macroscopic momentum transport equation is analog to the Navier-Stokes equation for an ordinary fluid. Associated with the energy conservative equation, this equation allows us to predict the existence of “second sound” wave of energy photon density or of a shock wave for the photonic fluid.

Suggested PACS numbers : 42.65.Sf, 05.90.+m, 47.10.+g, 47.70.Mc, 42.70.Qs

In a crystal, the *phonons* undergo two kinds of collisions: the normal processes which conserve the total energy and quasi-momentum of the *phonons* and the umklapp processes which conserve the energy only. Let us call τ_N the relaxation time for the N-processes and τ_U the relaxation time for the U-processes. When the N-processes are more frequent than the U-processes ($\tau_N \ll \tau_U$), a situation which can be realized only at very low temperature, the macroscopic transport of energy in the crystal is no more diffusive but becomes propagative and obey to the equation of second sound [1, 2]. In optics, for non linear homogeneous materials, the analog of the N-processes for the *photons* are the parametric processes which, when the phase matching conditions are satisfied, conserve both the energy and the quasi-momentum of the *photons* [3]. The role of the umklapp processes could be played by the elastic scatterings on impurities or scatterers, the boundary reflexion or the genuine umklapp processes for *photonic crystals*. Hence a gas of *photons*, with strong non linear interaction, will behave in the same way as the *phonon* gas. In this paper, we will show that the momentum transport equation for a gas of *photons* in a non linear homogeneous medium obey to a *photonic Navier Stokes equation*. These new equations describe the quantified electromagnetic field as a *photonic fluid* which can sustain sound (called second sound in this context) and shock waves.

Let us describe a gas of *incoherent* photons of given frequency by the density distribution function $f(\vec{r}, \vec{k}, t)$ which depends on space $\vec{r}$, time t and on the wave vector $\vec{k}$ of the photons. Its evolution is governed by a Boltzmann equation from the kinetic theory which can be written in absence of any Umklapp or assimilated processes ($\tau_U = 0$):

$$\frac{\partial f}{\partial t}(\vec{r}, \vec{k}, t) + \left(\vec{v}_g \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}} \right) f(\vec{r}, \vec{k}, t) = \mathcal{N} \left[f(\vec{r}, \vec{k}, t) \right] \quad (1)$$

where $\vec{v}_g(\vec{k})$ is the group velocity of the photons and $\mathcal{N}[f]$ is the integral of N-collisions. To obtain the macroscopic equations of transport for energy and momentum, we have to multiply (1) by $\hbar\omega$ or $\hbar\vec{k}$ and sum this relation over all wave vectors $\vec{k}$. Since the N-processes preserve the energy and the momentum, we have $\sum_{\vec{k}} \hbar\omega \mathcal{N}[f] = 0$, $\sum_{\vec{k}} \hbar\vec{k} \mathcal{N}[f] = \vec{0}$ and the equation for energy and impulsion conservation are:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \epsilon}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0 \\ \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \overset{\leftrightarrow}{\pi} = \vec{0} \end{array} \right. \quad (2)$$

where ϵ , $\vec{j}$, $\vec{u}$ and $\overset{\leftrightarrow}{\pi}$ are respectively the energy density, the current density of energy, the momentum density and the tensorial momentum flux density:

$$\left\{ \begin{array}{l} \epsilon(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}} \hbar\omega(\vec{k}) f(\vec{r}, \vec{k}, t). \\ \vec{j}(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}} \hbar\omega(\vec{k}) \vec{v}_g(\vec{k}) f(\vec{r}, \vec{k}, t). \\ \vec{u}(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}} \hbar\vec{k} f(\vec{r}, \vec{k}, t). \\ \overset{\leftrightarrow}{\pi}(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}} \hbar \vec{k} \otimes \vec{v}_g(\vec{k}) f(\vec{r}, \vec{k}, t). \end{array} \right. \quad (3)$$

The equations (2) are coupled for a non-dispersive medium with a linear relation of dispersion $\omega(\vec{k}) = ck$, through the relation: $\vec{j} = c^2 \vec{u}$. In order to obtain a closed system, we have to express $\overset{\leftrightarrow}{\pi}$ as a function of ϵ and $\vec{u}$ but there is no simple relation as for the current density and first, we have to obtain the expression of $f(\vec{r}, \vec{k}, t)$.

For a perfect fluid for which $\tau_N \rightarrow 0$, the distribution function relaxes instantaneously toward the

local and drifted equilibrium distribution [4]:

$$f(\vec{r}, \vec{k}, t) = f^*(\vec{r}, \vec{k}, t) = \frac{1}{e^{\beta(\vec{r}, t) (\omega(\vec{k}) - \vec{v}(\vec{r}, t) \cdot \vec{k})} - 1}, \quad (4)$$

where the local temperature of the gas $T(\vec{r}, t) = 1/k_B \beta(\vec{r}, t)$ and the local average group velocity of the photons $\vec{v}(\vec{r}, t)$ are slowly varying functions of $\vec{r}$ and t . By summing (3) over $\vec{k}$, one obtains the microscopic expressions of ϵ , $\vec{j}$, $\vec{u}$ and $\overleftrightarrow{\pi}$ and by eliminating $\beta(\vec{r}, t)$ and $\vec{v}(\vec{r}, t)$ from these expressions, we can show that $\overleftrightarrow{\pi}$ is equal to:

$$\overleftrightarrow{\pi} = p \overleftrightarrow{I} + (\epsilon - 3p) \frac{\vec{j} \otimes \vec{j}}{j^2} \quad (5)$$

where $\overleftrightarrow{I}$ is the identity tensor and the pressure of radiation p (the isotropic part of $\overleftrightarrow{\pi}$) is given by:

$$p = \frac{1}{3} \sqrt{4\epsilon^2 - 3\frac{j^2}{c^2}} - \frac{\epsilon}{3}. \quad (6)$$

When the fluid is almost at rest, the energy current is weak and we can expand p as a serie of $j/c\epsilon$.

For weak current, one can neglect the correction in $(j/c\epsilon)^2$ in (6) and then $p \approx \epsilon/3$. At this order, the continuity equations become:

$$\begin{cases} \frac{\partial \epsilon}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0. \\ \frac{\partial \vec{j}}{\partial t} + \frac{c^2}{3} \vec{\nabla} \epsilon = \vec{0}. \end{cases} \quad (7)$$

They are linear and solvable for excitations of the type $\epsilon(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \sin(\vec{K} \cdot \vec{r} - \Omega t)$. These excitations are called second sound in condensed matter physics [1, 2]. Their dispersion relation is $\Omega = \frac{c}{\sqrt{3}} K$. The factor $\sqrt{3}$ comes from the isotropy of the distribution of the particules velociities, like in an ordinary gas where the velocity of sound is determined by the mean quadratic speed of the particules.

If we go up to the next order in $j/c\epsilon$, the expression of the radiation pressure becomes:

$$p \approx \frac{\epsilon}{3} - \frac{j^2}{4c^2\epsilon}. \quad (8)$$

The exact solution (6) and its second order approximation (8) are plotted in figure 1. We see that this approximation provides us an acceptable description for a system when the system is not too far from equilibrium. The macroscopic equations of conservation can now be written:

$$\begin{cases} \frac{\partial \epsilon}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0. \\ \frac{\partial \vec{j}}{\partial t} + \frac{3}{4} \vec{\nabla} \cdot \left(\frac{\vec{j} \otimes \vec{j}}{\epsilon} \right) + \frac{c^2}{3} \vec{\nabla} p = \vec{0}. \end{cases} \quad (9)$$

This momentum conservation equation is very similar to the Euler equation for an ordinary fluid in absence of external force where ρ the density of the fluid and $\vec{v}$ the field velocity are replaced by ϵ/c^2 and by $\vec{j}/\epsilon$.

For τ_N short but finite, the fluid is no more perfect but viscous. Its viscosity comes up from the exponential relaxation with time τ_N , toward the local drifted distribution $f^*(\vec{r}, \vec{k}, t)$. Using the linearized collision operator:

$$\mathcal{N}[f(\vec{r}, \vec{k}, t)] = -\frac{f(\vec{r}, \vec{k}, t) - f^*(\vec{r}, \vec{k}, t)}{\tau_N}, \quad (10)$$

one can solve Boltzmann equation (1) and obtain the expression of ϵ , $\vec{j}$, $\vec{u}$ and $\vec{\pi}$ at the first order in τ_N [4, 5]. The macroscopic equations of transport become:

$$\begin{cases} \frac{\partial \epsilon}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{j} = 0 \\ \frac{\partial \vec{j}}{\partial t} + \frac{3}{4} \vec{\nabla} \cdot \left(\frac{\vec{j} \otimes \vec{j}}{\epsilon} \right) + c^2 \vec{\nabla} p - \frac{c^2 \tau_N}{5} \vec{\nabla}^2 \vec{j} - \frac{c^2 \tau_N}{15} \vec{\nabla} (\vec{\nabla} \cdot \vec{j}) = \vec{0} \end{cases} \quad (11)$$

By comparison to the usual equation of Navier Stokes for a compressible fluide:

$$\frac{\partial \rho \vec{v}}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{v} \otimes \vec{v}) + \vec{\nabla} p - \rho \nu \vec{\nabla}^2 \vec{v} - \rho \left(\xi + \frac{\nu}{3} \right) \vec{\nabla} (\vec{\nabla} \cdot \vec{v}) = \vec{0} \quad (12)$$

where ν and ξ are respectively the first and the second kinematic viscosity, we find the coefficients of viscosity for a photonic fluid:

$$\nu = \frac{c^2 \tau_N}{5} ; \quad \xi = 0. \quad (13)$$

As expected the second viscosity of the photonic fluid vanishes like in a ultra-relativistic fluid [6].

The generalization of the previous result in regime where the “Umklapp” or elastic scattering are present, is obtained by an additionnal term $-\vec{j}/\tau_U$ in the right part of the momentum conservative equation [4]. The main effect of this term is to relax $\vec{j}$ on a characteristic time τ_U . Then the validity of equations (11) is $\tau_N \ll 1/\Omega \ll \tau_U$ where Ω is the frequency of the macroscopic motion of the photonic fluid.

Two simple applications of these equations in addition of the second sound, are the Poiseuille flow in a fiber and the shock wave propagation. In laminar regime, the flux of energy Φ trough a transversal area of a cylinder of radius R and lenght L can be obtained by solving the linearized equations (11) with the Dirichlet boundary conditions on the surface of the cylinder [7]. For this “Poiseuille flow”, the flux is given by:

$$\Phi = \frac{c^2}{24} \frac{R^2}{c^2 \tau_N} \frac{\Delta \epsilon}{L} \quad (14)$$

where $\Delta \epsilon$ is the energy difference between the ends of the cylinder. In this expression, $R^2/c^2 \tau_N$ is the charateristic time for a photon to diffuse inside the cylinder [7]. Actually, due to frequent

N-processes, the photons cross the fiber by random walks of step $c\tau_N$ and this characteristic time is much larger than the Casimir relaxation time R/c which should appear in the expression of Φ in absence of N-processes.

Concerning the propagation of a shock wave, one can show that a profile (fig. 2) can propagate at constant velocity without deformation in the medium. In a similarity with classical fluid mechanics [8], the velocity of this profile is given by:

$$v = \frac{c}{\sqrt{3}} \left(1 + \frac{\sqrt{3}}{4} \frac{j_1 + j_2}{c\tilde{\epsilon}} \right) \quad (15)$$

where $\tilde{\epsilon}$ is the mean value of the energy. The shape of the profile is given by:

$$\begin{cases} \epsilon(\xi) = \tilde{\epsilon} - \frac{1}{v} \frac{(j_1 - j_2)}{2} \tanh\left(\frac{\xi}{L}\right) \\ j(\xi) = \frac{(j_1 + j_2)}{2} - \frac{(j_1 - j_2)}{2} \tanh\left(\frac{\xi}{L}\right) \end{cases} \quad (16)$$

where $\xi = x - vt$ and L is the characteristic thickness of the profile:

$$L = 4 \frac{c^2 \tau_N}{15} \frac{\tilde{\epsilon}}{(j_1 - j_2)}. \quad (17)$$

As in classical fluid mechanics, the existence and the stability of this solution for the photon energy density is due to the compensation between the non linear and the viscous terms of equations (11).

As a conclusion, we have showed that the macroscopic transport of momentum for a photonic fluid in a limit of very strong non linear interaction $\tau_N \ll \tau_U$ is described by a *photonic Navier-Stokes equation*. Hence, the photonic fluid can exhibit all the usual phenomena observed in fluid mechanics like for instance: sound or rather “second sound”, shock wave, Poiseuille flow in fiber.

References

- [1] J.C. Ward and J. Wilks. The velocity of second sound in liquid helium near the absolut zero. *Phil. Mag.*, **42**:314–316, 1951.
- [2] J.C. Ward and J. Wilks. Second sound and the thermo-mechanical effect at very low temperatures. *Phil. Mag.*, **43**:48–50, 1952.
- [3] C.L. Tang. Spontaneous and stimulated parametric processes. In H. Rabin and C.L. Tang, editors, *Quantum Electronics*, volume 1A, chapter 6. Academic Press New York, 1975.
- [4] R.A. Guyer and J.A. Krumhansl. Solution of the linearized phonon boltzmann equation. *Phys. Rev.*, **148**(2):766–778, 1966.
- [5] R.A. Guyer and J.A. Krumhansl. Dispersion relation for second sound in solids. *Phys. Rev.*, **133**(5A):A1411–A1417, 1964.
- [6] L. Landau and E. Lifchitz. *Theoretical Physics 10 - Kinetic theory*. Edition Mir, 1990.
- [7] R.A. Guyer and J.A. Krumhansl. Thermal conductivity, second sound and phonon hydrodynamic phenomena in nonmetallic crystals. *Phys. Rev.*, **148**(2):778–788, 1966.
- [8] L. Landau and E. Lifchitz. *Theoretical Physics 10 6 - Fluid mechanics*. Ed. Mir, 1990.

Figures

Figure 1: The radiation pressure normalized by the average energy p/ϵ as a function of the normalized current $j/c\epsilon$. The exact solution, given in formula (6), is plotted in continuous line and its second order approximation (formula (8)) in dashed line.

Figure 2: The profile of a shock wave. The profile is propagating at a constant velocity $\vec{v}$ in the x direction. The limiting value j_1, j_2 and ϵ_1, ϵ_2 of j and ϵ for $x \rightarrow \pm\infty$ are supposed constant.

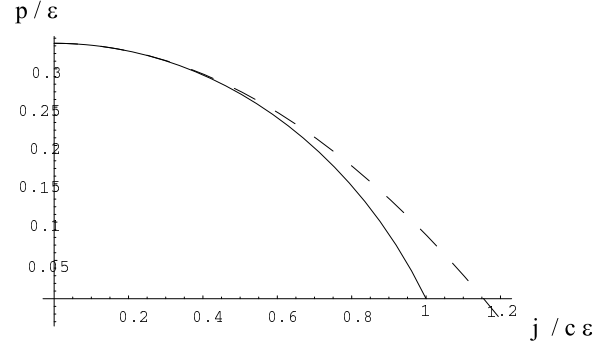


Figure 1: The radiation pressure normalized by the average energy p/ϵ as a function of the normalized current $j/c\epsilon$. The exact solution, given in formula (6), is plotted in continuous line and its second order approximation (formula (8)) in dashed line.

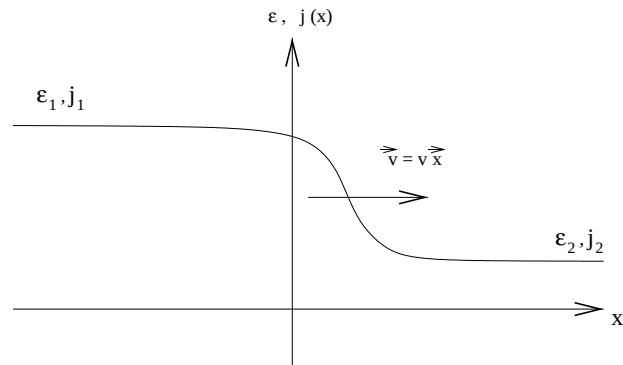


Figure 2: The profile of a shock wave. The profile is propagating at a constant velocity $\vec{v}$ in the x direction. The limiting value j_1, j_2 and ϵ_1, ϵ_2 of j and ϵ for $x \rightarrow \pm\infty$ are supposed constant.

Bibliographie

- [1] C.C. Ackerman, B. Bertman, H.A. Fairbank, and R.A. Guyer. Second sound in solid helium. *Phys. Rev. Lett.*, **16**(18):789–791, 1966.
- [2] R.R. Alfano and S.L. Shapiro. Emission in the region 4000 to 7000 Å via four-photon coupling in glass. *Phys. Rev. Lett.*, **24**(11):584–587, 1970.
- [3] R.K. Atkins and D.V. Osborne. The velocity of second sound below 1°K. *Phil. Mag.*, **41**:1078–1081, 1950.
- [4] N. Bloembergen. *Nonlinear Optics*. W. A. Benjamin, Inc, 1965.
- [5] J.P. Budin, B. Godard, and J. Ducuing. Noncollinear interactions in parametric luminescence. *I.E.E.E. Journal of Quant. Electronics*, **QE-4**(11):831–837, 1968.
- [6] P.N. Butcher and D. Cotter. *The Elements of Nonlinear Optics*. Cambridge University Press, 1990.
- [7] M. Chester. Second sound in solids. *Phys. Rev.*, **131**(5):2013–2015, 1963.
- [8] T.G. Giallorenzi and C.L. Tang. Quantum theory of spontaneous parametric scattering of intense light. *Phys. Rev.*, **166**(2):225–233, 1968.
- [9] T.G. Giallorenzi and C.L. Tang. Effect of idler attenuation on the spontaneous parametric scattering of intense light in LiNbO₃ and NH₄H₂PO₄. *Phys. Rev.*, **184**(2):353–355, 1969.
- [10] J.P. Gordon, W.H. Louisell, and L.R. Walker. Quantum fluctuations and noise in parametric processes. II. *Phys. Rev.*, **129**(1):481–485, 1963.
- [11] V.L. Gurevich and A.K. Tagantsev. Second sound in ferroelectrics. *Sov.Phys. J.E.T.P.*, **67**(1):206–212, 1988.
- [12] R.N. Gurzhi. Thermal conductivity of dielectrics and ferroelectrics at low temperatures. *Soviet Phys. J.E.T.P.*, **19**(2):490–493, 1964.
- [13] R.A. Guyer and J.A. Krumhansl. Dispersion relation for second sound in solids. *Phys. Rev.*, **133**(5A):A1411–A1417, 1964.

- [14] R.A. Guyer and J.A. Krumhansl. Solution of the linearized phonon boltzmann equation. *Phys. Rev.*, **148**(2):766–778, 1966.
- [15] R.A. Guyer and J.A. Krumhansl. Thermal conductivity, second sound and phonon hydrodynamic phenomena in nonmetallic crystals. *Phys. Rev.*, **148**(2):778–788, 1966.
- [16] S.E. Harris, M.K. Oshman, and R.L. Byer. Observation of tunable optical parametric fluorescence. *Phys. Rev. Lett.*, **18**(18):732–734, 1967.
- [17] C. Herring. Role of low-energy phonons in thermal conduction. *Phys. Rev.*, **95**(4):954–965, 1954.
- [18] K. Huang. *Statistical mechanics*. J. Wiley & Sons, Inc, 1963.
- [19] H.E. Jackson and T.F. McNelly. Second sound in NaF. *Phys. Rev. Lett.*, **25**(1):26–28, 1970.
- [20] H.E. Jackson and C.T. Walker. Thermal conductivity, second sound, and phonon-phonon interaction in NaF. *Phys. Rev. B*, **3**(4):1428–1439, 1971.
- [21] D.A. Kleinman. Theory of optical parametric noise. *Phys. Rev.*, **174**(3):1027–1041, 1968.
- [22] D.N. Klyshko. Coherent photon decay in a nonlinear medium. *Soviet Phys. J.E.T.P Lett.*, **6**:23–25, 1967.
- [23] D.N. Klyshko. Scattering of light in a medium with nonlinear polarizability. *Soviet Phys. J.E.T.P*, **28**(3):522–526, 1969.
- [24] L. Landau. The Theory of Superfluidity of Heluim II. *J. Phys. U.S.S.R.*, **5**(1):71-90, 1941.
- [25] L. Landau and E. Lifchitz. *Physique théorique - Tome 10 - Cinétique physique*. Edition Mir, 1990.
- [26] L. Landau and E. Lifchitz. *Physique théorique - Tome 6 - Mécanique des fluides*. Edition Mir, 1990.
- [27] W.H. Louisell and A. Yariv. Quantum fluctuations and noise in parametric processes. I. *Phys. Rev.*, **124**(6):1646–1654, 1961.
- [28] D. Magde and H. Mahr. Study in ammonium dihydrogen phosphate of spontaneous parametric interaction tunable from 4400 to 16000 Å. *Phys. Rev. Lett.*, **18**(21):905–907, 1967.
- [29] T.F. McNelly, S.J. Rogers, D.J. Channin, R.J. Rollefson, W.M. Goubau, and G.E. Schmidt. Heat pulses in NaF: Onset of second sound. *Phys. Rev. Lett.*, **24**(3):100–102, 1970.

- [30] R. Maynard. *Le deuxième son dans les solides*. PhD thesis, Université Joseph Fourier - Grenoble I, 1967.
- [31] V. Narayanamurti and R.C. Dynes. Observation of second sound in bismuth. *Phys. Rev. Lett.*, **28**(22):1461–1465, 1972.
- [32] V. Peshkov. “Second sound” in helium II. *J. Phys. U.S.S.R.*, **8**:131, 1944.
- [33] D.W. Pohl and V. Irniger. Observation of second sound in NaF by means of light scattering. *Phys. Rev. Lett.*, **36**(9):480–483, 1976.
- [34] J.J. Sakurai. *Advanced Quantum Mechanics*. Addison Wesley Publishing Company, 1967.
- [35] A. Smontara, J.C. Lasjaunias, and R. Maynard. Phonon poiseuille flow in quasi-one-dimensional single crystals. *Phys. Rev. Lett.*, **77**(27):5397–5400, 1996.
- [36] J.A. Sussmann and A. Thellung. *Proc. Phys. Soc. (London)*, **81**:1122, 1963.
- [37] C.L. Tang. Spontaneous and stimulated parametric processes. In H. Rabin and C.L. Tang, editors, *Quantum Electronics*, volume 1A, chapter 6. Academic Press New York, 1975.
- [38] D.J. Tritton. *Physical Fluid Dynamics*. Oxford University Press, New York, 1988.
- [39] J.C. Ward and J. Wilks. The velocity of second sound in liquid helium near the absolute zero. *Phil. Mag.*, **42**:314–316, 1951.
- [40] J.C. Ward and J. Wilks. Second sound and the thermo-mechanical effect at very low temperatures. *Phil. Mag.*, **43**:48–50, 1952.
- [41] B.Ya. Zel’Dovich. Theory of spontaneous parametric scattering of light. *Soviet Phys. J.E.T.P.*, **31**(4):723–728, 1970.

Deuxième partie

Les corrélations en milieu aléatoire et
non linéaire.

Introduction.

Les premières études de la propagation de la lumière dans les milieux désordonnés et linéaires datent du début du siècle. Elles sont dues aux astrophysiciens et notamment à Chandrasekar qui a établi l'équation de transfert radiatif. Cette équation qui décrit l'évolution de la lumière dans un milieu désordonné est l'analogue pour la lumière de l'équation de Boltzmann de la théorie cinétique des gaz [7]. Elle permet notamment de montrer que sur des échelles macroscopiques, l'intensité lumineuse moyennée sur toutes les réalisations du désordre obéit à une équation de diffusion. Cette équation ne tient pas compte de la phase des champs puisqu'il semble naturel que les effets d'interférence liés à la phase des ondes soient détruits au cours des chemins de diffusion multiple. Cette idée a été remise en cause après la découverte des fluctuations universelles de conductance [11], [22] et des effets de localisation [4] sur le transport des électrons dans les milieux conducteurs désordonnés, à basses températures. En optique, ces effets d'interférence se retrouvent dans le cône de rétrodiffusion de la lumière. Lorsque l'on éclaire un milieu diffus, l'intensité lumineuse moyenne réfléchie dans la direction exacte de rétrodiffusion est deux fois plus intense que ce qui est prédit par le transfert radiatif. Ce facteur 2 provient de l'interférence constructive entre le champ électrique qui a parcouru un certain chemin de diffusion multiple et le champ électrique qui s'est propagé le long du même chemin mais dans la direction inverse. Ce phénomène a été observé simultanément par van Albada *et al* [23] et par Wolf *et al* [27] et l'explication théorique en a été donnée par Akkermans *et al* [2]. Les effets d'interférence se retrouvent également dans la figure de tavelures - speckle en anglais - que l'on peut voir lorsque l'on éclaire un milieu diffusant pour une réalisation figée du désordre. Selon la direction d'observation ou le lieu d'observation, l'interférence entre tous les chemins de diffusion multiple peut être constructive ou destructive et l'image observée présente un aspect tacheté.

Lorsque l'on éclaire ce genre de milieux hétérogènes avec des faisceaux lumineux intenses, de nouveaux phénomènes vont apparaître par effet des non linéarités optiques. Si on considère par exemple un milieu hétérogène dont au moins une des composantes possède un indice de réfraction non linéaire, les propriétés de diffusion du milieu vont dépendre de l'intensité lumineuse incidente. Un tel milieu peut même être rendu transparent si on arrive à compenser la diffé-

rence entre les indices de réfraction linéaires par un changement de l'indice de la composante non linéaire du milieu [3]. Cet effet d'auto-transparence induite peut par exemple être utilisé en limitation optique afin de diminuer l'intensité transmise par un milieu en le faisant passer de l'état transparent, lorsqu'il est éclairé par de faibles intensités lumineuses, à l'état diffus pour des intensités plus fortes [15]. Mais à cause de la faiblesse des non linéarités optiques, une préadaptation des indices entre les différentes composantes du milieu est nécessaire pour pouvoir atteindre le régime de transparence. Une modification de l'intensité lumineuse incidente permet alors seulement de passer d'un régime transparent à un régime de diffusion simple. Peu d'études ont combinées le régime de diffusion multiple et les non linéarités. Une équation de Dyson pour la propagation du champ électrique dans un milieu désordonné dont les particules diffusantes présentent un effet non linéaire Kerr a été établie par A.J. van Wonderen [25], [26]. Cette équation permet de décrire des phénomènes de bistabilité pour des milieux désordonnés et non linéaires [21]. En ce qui concerne l'intensité diffusée, quelques études ont été réalisées dans le cas non dégénéré, lorsque les fréquences des ondes incidentes et des ondes générées par les non linéarités sont différentes. Par exemple des études théoriques [16] et expérimentales [9] ont concerné la génération et les corrélations des ondes de seconde harmonique dans un milieu aléatoire et non linéaire. Kravtsov *et al* ont également étudié la théorie de la conjugaison de phase en milieu désordonné [17]. Par contre dans le cas dégénéré, malgré la simplicité expérimentale puisqu'une seule onde lumineuse très intense est nécessaire pour éclairer le milieu et puisque l'on s'intéresse à l'intensité lumineuse émise à la même fréquence, il semble que seule l'étude du cône de rétrodiffusion en régime faiblement non linéaire ait été réalisée [1], [14].

Dans ce travail, nous allons également considérer la situation dégénérée. Dans un premier chapitre, nous utiliserons la théorie des diagrammes pour calculer la première correction non linéaire à l'intensité diffusée dans le milieu désordonné et non linéaire. Dans un second chapitre, nous établirons, à l'aide des diagrammes introduits, les fonctions de corrélation pour l'intensité transmise et l'intensité réfléchie dans la géométrie de la tranche. Dans le cas d'un milieu Kerr, nous introduirons une longueur caractéristique qui regroupera à la fois les caractéristiques du désordre et du milieu non linéaire. Cette longueur nous permettra d'interpréter l'effet des non linéarités comme un déphasage supplémentaire introduit le long des chemins de diffusion multiple. Enfin, nous proposerons une nouvelle expression pour le cône de rétrodiffusion de la lumière.

Chapitre 1

Transport radiatif en milieu aléatoire et non linéaire.

Dans un milieu aléatoire et linéaire, l'évolution de l'intensité lumineuse, en moyenne sur toutes les réalisations du désordre, est décrite par l'équation de Bethe Salpeter. Cette équation peut s'obtenir par une résolution diagrammatique des équations de Maxwell [12].

Dans ce chapitre, nous allons considérer un milieu aléatoire et non linéaire. Nous allons chercher une solution perturbative des équations de Maxwell, solution dont nous ne retiendrons que les termes non linéaires dégénérés qui oscillent à la même fréquence que l'onde incidente. Cette première correction perturbative à l'expression de l'intensité lumineuse moyenne peut également être obtenue par une méthode diagrammatique. Ce travail a été effectué par Agranovitch et al [1] puis par Heiderich et al [14] dans le cas d'un milieu Kerr (milieu dont la susceptibilité non linéaire est de type χ_3). Dans une première section, nous redonnerons les principales étapes de leur travail puis nous considérerons le cas d'un milieu non centrosymétrique dont la susceptibilité non linéaire est de type χ_2 . Les diagrammes obtenus seront ensuite utilisés dans le deuxième chapitre pour calculer les fonctions de corrélations en régime non linéaire.

1.1 Milieu aléatoire de type Kerr.

1.1.1 Description du modèle.

Nous allons considérer des ondes électromagnétiques monochromatiques de fréquence ω , se propageant dans un milieu aléatoire et non linéaire de type Kerr. Pour simplifier le problème, nous nous plaçons dans l'approximation scalaire. L'amplitude complexe $E(\vec{r})$ du champ électrique est alors solution de l'équation:

$$\vec{\nabla}^2 E(\vec{r}) + \frac{\omega^2}{c^2} \{ \epsilon(\vec{r}) + \chi_3 E E^*(\vec{r}) \} E(\vec{r}) = J(\vec{r}), \quad (1.1)$$

où $J(\vec{r})$ est la source de champ électrique, $\epsilon(\vec{r})$ la constante diélectrique du milieu et χ_3 la susceptibilité non linéaire de troisième ordre. La constante diélectrique du milieu $\epsilon(\vec{r})$ peut se

décomposer en une partie moyenne et homogène ϵ et une partie fluctuante $\delta\epsilon(\vec{r})$ qui décrit le désordre du système: $\epsilon(\vec{r}) = \epsilon + \delta\epsilon(\vec{r})$. La statistique du milieu aléatoire est entièrement définie par les propriétés statistiques de la fonction aléatoire $\delta\epsilon(\vec{r})$. Nous supposons que $\delta\epsilon(\vec{r})$ obéit à une statistique de bruit blanc Gaussien:

$$\langle \delta\epsilon(\vec{r}) \rangle = 0 \quad ; \quad \langle \delta\epsilon(\vec{r})\delta\epsilon(\vec{r}') \rangle = u \delta(\vec{r} - \vec{r}'). \quad (1.2)$$

Les symboles $\langle \dots \rangle$ représentent la moyenne d'ensemble sur l'ensemble des réalisations possibles du milieu aléatoire et la constante u décrit la force du désordre.

Dans l'équation (1.1), nous n'avons considéré que le terme non linéaire dégénéré, $\chi_3 E^2 E^*(\vec{r})$, dont la composante temporelle oscille à la même fréquence ω que l'onde initiale et nous avons négligé les termes qui sont à l'origine de la génération des ondes de troisième harmonique. Ce terme non linéaire dégénéré pourra donc interférer avec l'onde initiale et il en résultera des effets non linéaires, par exemple sur l'intensité lumineuse dans le milieu, qui seront proportionnels à χ_3 à l'ordre le plus bas des non linéarités. Dans une situation non dégénérée, aucune interférence n'est possible et l'intensité de l'onde lumineuse non linéaire créée est alors proportionnelle au carré de la constante non linéaire.

Pour résoudre l'équation (1.1) nous allons utiliser une méthode perturbative. En cherchant une solution sous la forme:

$$E(\vec{r}) = E^{(0)}(\vec{r}) + E^{(1)}(\vec{r}) + \dots \quad (1.3)$$

où $E^{(0)}$ et $E^{(1)}$ sont respectivement la partie linéaire de la solution et sa première correction, nous obtenons les deux équations:

$$\begin{cases} \vec{\nabla}^2 E^{(0)}(\vec{r}) + k_0^2 \epsilon(\vec{r}) E^{(0)}(\vec{r}) = J(\vec{r}). \\ \vec{\nabla}^2 E^{(1)}(\vec{r}) + k_0^2 \epsilon(\vec{r}) E^{(1)}(\vec{r}) = -k_0^2 \chi_3 |E^{(0)}(\vec{r})|^2 E^{(0)}(\vec{r}). \end{cases} \quad (1.4)$$

Nous avons posé $k_0 = \omega/c$. Le terme non linéaire de la seconde équation $-k_0^2 \chi_3 |E^{(0)}(\vec{r})|^2 E^{(0)}(\vec{r})$ peut s'interpréter comme un terme de sources non linéaires réparties dans tout le volume du milieu. La solution de cette équation sera donc facilement exprimable à l'aide de la fonction de Green de l'équation linéaire.

1.1.2 La fonction de Green moyenne.

Notons $\mathcal{G}_\omega(\vec{r}, \vec{r}')$ la fonction de Green solution de l'équation linéaire de propagation dans un milieu aléatoire:

$$\vec{\nabla}^2 \mathcal{G}_\omega(\vec{r}, \vec{r}') + k_0^2 \epsilon(\vec{r}) \mathcal{G}_\omega(\vec{r}, \vec{r}') = \delta(\vec{r} - \vec{r}'), \quad (1.5)$$

et $G_\omega(\vec{r}, \vec{r}') = \langle \mathcal{G}_\omega(\vec{r}, \vec{r}') \rangle$ sa valeur moyenne sur le désordre. L'expression de $G_\omega(\vec{r}, \vec{r}')$ s'obtient par une méthode diagrammatique classique [12]. Pour un milieu infini à trois dimensions, on montre que la fonction de Green moyenne est égale à:

$$G_\omega(\vec{r}, \vec{r}') = \frac{e^{(ik_0 - \frac{1}{2l})|\vec{r} - \vec{r}'|}}{4\pi|\vec{r} - \vec{r}'|} \quad (1.6)$$

où $l = 4\pi/uk_0^4$ est le libre parcours moyen de la lumière dans le milieu désordonné. La fonction de Green moyenne G_ω est atténuée exponentiellement sur une distance l . Le libre parcours moyen l représente donc la distance sur laquelle peut se propager un faisceau lumineux cohérent arrivant sur un milieu diffus. Il faut noter que l'expression (1.6) a été obtenue dans la limite de faible désordre où on a $1/k_0l \ll 1$.

1.1.3 Le corrélateur linéaire des champs.

L'intensité lumineuse moyenne qui se propage dans un milieu aléatoire est la moyenne du module carré du champ électrique. Elle diffère donc du module carré de la moyenne du champ qui, d'après le paragraphe précédent, décroît exponentiellement sur une distance l . Cette intensité lumineuse moyenne ou de façon plus générale le corrélateur moyen des champs peut également s'obtenir par une méthode diagrammatique [12]. Notons $C_E^{(0)}$ le corrélateur linéaire des champs :

$$C_E^{(0)}(\vec{r}, \vec{r}') = \langle E^{(0)}(\vec{r}) E^{(0)*}(\vec{r}') \rangle. \quad (1.7)$$

Ce corrélateur s'exprime facilement à l'aide des fonctions de Green $\mathcal{G}_\omega$ du problème selon la relation :

$$C_E^{(0)}(\vec{r}, \vec{r}') = \iint J(\vec{r}_1) J^*(\vec{r}_2) \langle \mathcal{G}_\omega(\vec{r}, \vec{r}_1) \mathcal{G}_\omega^*(\vec{r}', \vec{r}_2) \rangle d^3r_1 d^3r_2. \quad (1.8)$$

Lorsque l'on calcule le corrélateur $\langle \mathcal{G}_\omega(\vec{r}, \vec{r}_1) \mathcal{G}_\omega^*(\vec{r}', \vec{r}_2) \rangle$ par la méthode diagrammatique, on ne retient que les diagrammes tel que celui représenté dans la figure 1.1. Sur ce diagramme,

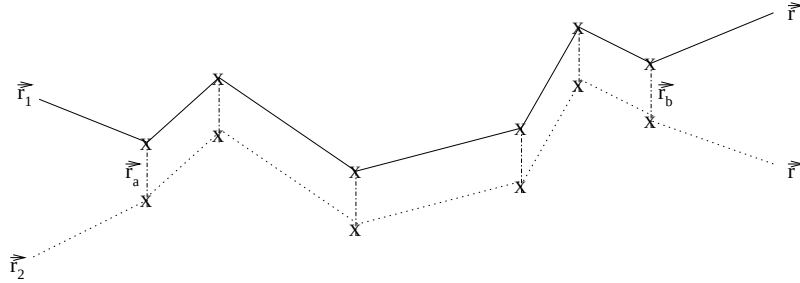


FIG. 1.1 - Un des diagrammes, dans l'espace réel, qui permet de calculer le corrélateur des champs. Une onde partielle (traits pleins) se propage de $\vec{r}_1$ à $\vec{r}$ et une onde partielle conjuguée (traits pointillés) de $\vec{r}_2$ à $\vec{r}'$. Les croix X représentent les événements de diffusion. Les traits semi-pointillés indiquent que les deux ondes ont été diffusées au même endroit par le même diffuseur.

une onde partielle se propage de $\vec{r}_1$ à $\vec{r}$ en subissant de nombreuses diffusions et une onde partielle conjuguée se propage de $\vec{r}_2$ à $\vec{r}'$ en subissant exactement les mêmes diffusions. Ainsi, les phases des deux ondes se compensent exactement le long de ce chemin de diffusion multiple et, après moyenne sur le désordre, ce diagramme conserve une contribution non nulle dans l'établissement de l'expression de $\langle \mathcal{G}_\omega(\vec{r}, \vec{r}_1) \mathcal{G}_\omega^*(\vec{r}', \vec{r}_2) \rangle$. Dans cette théorie, on définit

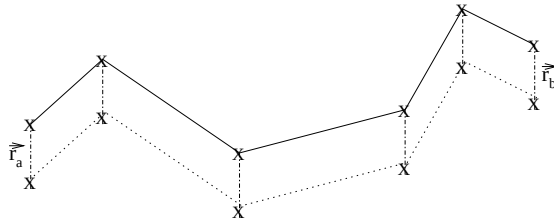


FIG. 1.2 - Le diagramme en échelle ou "ladder".

également le diagramme en échelle ou "ladder", noté L, qui est représenté figure 1.2. Ce diagramme commence et se termine sur une diffusion. Par rapport au diagramme précédent, on a simplement ôté les fonctions de Green incidentes et émergentes qui servent à le connecter aux points sources $\vec{r}_1$ et $\vec{r}_2$ et aux points d'observation $\vec{r}$ et $\vec{r}'$. Ce diagramme donne donc l'intensité lumineuse au point $\vec{r}_b$ pour une source delta localisée en $\vec{r}_a$. On peut montrer que ce ladder est solution de l'équation de diffusion:

$$-\vec{\nabla}^2 L(\vec{r}_b - \vec{r}_a) = \frac{12\pi}{l^3} \delta(\vec{r}_b - \vec{r}_a). \quad (1.9)$$

L'intensité lumineuse incohérente se propage ainsi d'un point source $\vec{r}_a$ à un point d'observation $\vec{r}_b$ sur des distances beaucoup plus grandes que l grâce à un processus de diffusion.

Par la suite, nous utiliserons également le propagateur linéaire de diffusion $D(\vec{r}_b - \vec{r}_a)$ solution de l'équation de Green:

$$-\vec{\nabla}^2 D(\vec{r}_b - \vec{r}_a) = \delta(\vec{r}_b - \vec{r}_a). \quad (1.10)$$

1.1.4 Le corrélateur non linéaire des champs.

Dans ce paragraphe, nous allons présenter le diagramme qui permet de calculer la première correction non linéaire du propagateur d'intensité. Introduisons le corrélateur non linéaire des champs:

$$C_E^{(1)}(\vec{r}, \vec{r}') = \langle E^{(1)}(\vec{r}) E^{(0)*}(\vec{r}') \rangle, \quad (1.11)$$

qui est le corrélateur entre la première correction non linéaire du champ électrique $E^{(1)}(\vec{r})$ et sa composante linéaire $E^{(0)*}(\vec{r}')$. En utilisant les expressions de $E^{(1)}(\vec{r})$ et $E^{(0)*}(\vec{r}')$ en fonction des solutions de Green $\mathcal{G}_\omega(\vec{r}, \vec{r}')$ du problème linéaire:

$$\left\{ \begin{array}{l} E^{(1)}(\vec{r}) = -k_0^2 \chi_3 \int \mathcal{G}_\omega(\vec{r}, \vec{R}) \mathcal{G}_\omega(\vec{R}, \vec{r}_1) \mathcal{G}_\omega(\vec{R}, \vec{r}_2) \mathcal{G}_\omega^*(\vec{R}, \vec{r}_3) \times \\ \quad J(\vec{r}_1) J(\vec{r}_2) J^*(\vec{r}_3) d^3 r_1 d^3 r_2 d^3 r_3 d^3 R \\ E^{(0)*}(\vec{r}') = \int \mathcal{G}_\omega^*(\vec{r}', \vec{r}_4) J^*(\vec{r}_4) d^3 r_4 \end{array} \right. \quad (1.12)$$

où la variable $\vec{R}$ est le lieu de l'interaction non linéaire, source pour le champ $E^{(1)}(\vec{r})$ et où $\vec{r}_1$, $\vec{r}_2$, $\vec{r}_3$ et $\vec{r}_4$ sont les positions des sources du champ électromagnétique, nous obtenons:

$$C_E^{(1)}(\vec{r}, \vec{r}') = -k_0^2 \chi_3 \int J(\vec{r}_1) J(\vec{r}_2) J^*(\vec{r}_3) J^*(\vec{r}_4) < \mathcal{G}_\omega(\vec{r}, \vec{R}) \mathcal{G}_\omega(\vec{R}, \vec{r}_1) \mathcal{G}_\omega(\vec{R}, \vec{r}_2) \mathcal{G}_\omega^*(\vec{R}, \vec{r}_3) \mathcal{G}_\omega^*(\vec{r}', \vec{r}_4) > d^3 r_1 d^3 r_2 d^3 r_3 d^3 r_4 d^3 R. \quad (1.13)$$

Il nous faut donc calculer la valeur moyenne du produit de cinq fonctions de Green par la méthode diagrammatique. Comme précédemment les seuls diagrammes qui auront une contribution non nulle après moyenne sur le désordre sont ceux, tels que celui représenté figure 1.3, pour lesquels chaque fonction de Green est couplée à une fonction de Green conjuguée. À l'ordre le

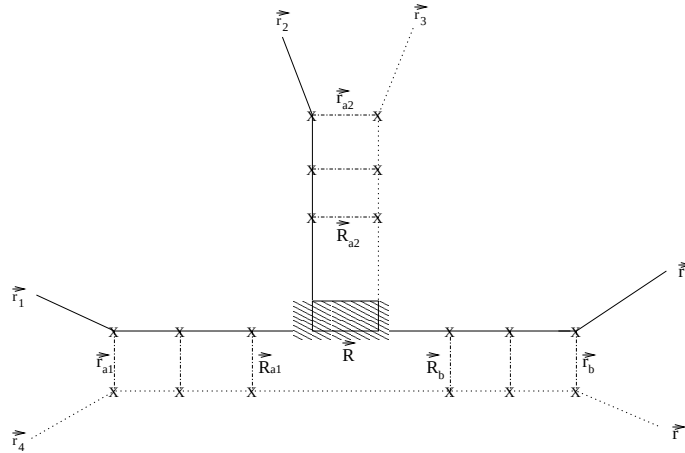
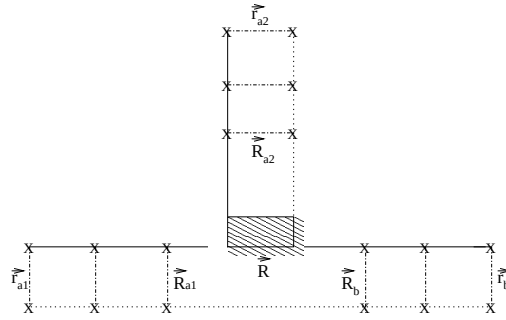


FIG. 1.3 - Le diagramme perturbatif, dans l'espace réel, utilisé pour calculer le corrélateur non linéaire des champs. L'interaction non linéaire, localisée au point $\vec{R}$, est représentée par le carré hachuré. Ce diagramme est constitué de trois propagateurs de diffusion connectés entre eux à l'aide de cinq fonctions de Green qui forment le vertex non linéaire K_3 . La fonction de Green qui va de $\vec{r}_4$ à $\vec{r}'$, sur la partie inférieure du diagramme, intervient dans l'expression de $E^{(0)*}$. Toutes les autres fonctions de Green interviennent dans l'expression de $E^{(1)}$.

plus bas de la théorie en $1/k_0 l$, le diagramme perturbatif est donc constitué de trois propagateurs de diffusion qui vont respectivement de $\vec{r}_{a1}$ à $\vec{R}_{a1}, \vec{r}_{a2}$ à $\vec{R}_{a2}$ et de $\vec{R}_b$ à $\vec{r}_b$, connectés entre eux à l'aide d'un vertex non linéaire que nous appellerons K_3 . Ce vertex non linéaire est constitué de cinq fonctions de Green G_ω et il contient également l'interaction non linéaire localisée au point $\vec{R}$. Notons $H(\vec{r}_{a1}, \vec{r}_{a2}; \vec{r}_b)$ le diagramme non attaché, représenté figure 1.4. Ce diagramme donne la première correction non linéaire à l'intensité diffusée au point $\vec{r}_b$ pour des sources delta localisées en $\vec{r}_{a1}$ et $\vec{r}_{a2}$. On peut alors montrer (voir annexe A pour les détails de calcul) que son expression mathématique est:

$$H(\vec{r}_{a1}, \vec{r}_{a2}; \vec{r}_b) = K_3 \int L(\vec{r}_{a1}, \vec{R}) L(\vec{r}_{a2}, \vec{R}) D(\vec{R}, \vec{r}_b) d^3 R \quad (1.14)$$

FIG. 1.4 - *Le diagramme perturbatif non attaché.*

où la constante K_3 est égale à:

$$K_3 = \chi_3 \frac{ik_0 l^3}{32\pi^2}. \quad (1.15)$$

Dans cette formule, l est le libre parcours moyen apparaissant dans l'expression de la fonction de Green (1.6).

1.2 Milieu aléatoire de type “ χ_2 ”.

1.2.1 Le développement perturbatif.

Nous allons maintenant considérer le cas d'un milieu non linéaire non centro-symétrique pour lequel la susceptibilité non linéaire de deuxième ordre χ_2 est non nulle. Afin de conserver les effets d'interférence décrits au premier paragraphe, nous allons devoir chercher les corrections non linéaires du champ électrique au deuxième ordre en χ_2 .

Nous restons dans le cadre de l'approximation scalaire, mais nous allons revenir provisoirement à l'équation de propagation dépendante du temps afin de pouvoir expliciter clairement les dépendances temporelles des ondes considérées. Le champ électrique $E(\vec{r}, t)$ est donc solution de:

$$\vec{\nabla}^2 E(\vec{r}, t) - \frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2}(\vec{r}, t) = J(\vec{r}) + \mu_0 \chi_2 \frac{\partial^2 E^2}{\partial t^2}(\vec{r}, t). \quad (1.16)$$

À l'ordre 0 en χ_2 , on cherche la solution sous la forme d'une onde monochromatique de fréquence ω :

$$E(\vec{r}, t) = E_{\omega}^{(0)}(\vec{r}) e^{i\omega t} + cc. \quad (1.17)$$

Le champ $E_{\omega}^{(0)}(\vec{r})$ est bien sûr solution de l'équation d'onde linéaire:

$$\vec{\nabla}^2 E_{\omega}^{(0)}(\vec{r}) + k_0^2 \epsilon E_{\omega}^{(0)}(\vec{r}) = J(\vec{r}). \quad (1.18)$$

Au premier ordre en χ_2 , le couplage non linéaire quadratique des ondes va générer une composante de deuxième harmonique et une composante continue. Si on ne tient compte que de la composante radiative à 2ω , on peut chercher la solution sous la forme:

$$E(\vec{r}, t) = E_{\omega}^{(0)}(\vec{r}) e^{i\omega t} + E_{2\omega}^{(1)}(\vec{r}) e^{i2\omega t} + cc. \quad (1.19)$$

où $E_\omega^{(0)}(\vec{r})$ et $E_{2\omega}^{(1)}(\vec{r})$ sont solutions des équations:

$$\begin{cases} \vec{\nabla}^2 E_\omega^{(0)}(\vec{r}) + k_0^2 \epsilon E_\omega^{(0)}(\vec{r}) = J(\vec{r}). \\ \vec{\nabla}^2 E_{2\omega}^{(1)}(\vec{r}) + 4k_0^2 \epsilon E_{2\omega}^{(1)}(\vec{r}) = -4k_0^2 \chi_2 (E_\omega^{(0)}(\vec{r}))^2. \end{cases} \quad (1.20)$$

On pourra enfin retrouver un terme dégénéré à l'ordre suivant du développement en χ_2 . En effet, le couplage des champs $E_{2\omega}^{(1)}$ et de $E_\omega^{(0)}$ produira une onde de troisième harmonique ainsi qu'une onde de fréquence ω par l'intermédiaire du terme $E_{2\omega}^{(1)} E_\omega^{(0)*}$. À cet ordre du développement, le champ peut donc se développer sous la forme:

$$E(\vec{r}, t) = E_\omega^{(0)}(\vec{r}) e^{i\omega t} + E_{2\omega}^{(1)}(\vec{r}) e^{i2\omega t} + E_\omega^{(2)}(\vec{r}) e^{i\omega t} + E_{3\omega}^{(2)}(\vec{r}) e^{i3\omega t} + cc. \quad (1.21)$$

où $E_\omega^{(0)}(\vec{r})$ et $E_\omega^{(2)}(\vec{r})$ sont solutions de:

$$\begin{cases} \vec{\nabla}^2 E_\omega^{(0)}(\vec{r}) + k_0^2 \epsilon E_\omega^{(0)}(\vec{r}) = J(\vec{r}). \\ \vec{\nabla}^2 E_\omega^{(2)}(\vec{r}) + 4k_0^2 \epsilon E_\omega^{(2)}(\vec{r}) = -4k_0^2 \chi_2 E_{2\omega}^{(1)}(\vec{r}) E_\omega^{(0)*}(\vec{r}). \end{cases} \quad (1.22)$$

Le terme $E_\omega^{(2)}(\vec{r})$ est le premier terme du développement perturbatif qui oscille à la même fréquence que l'onde initiale et c'est le seule que nous considérerons par la suite.

1.2.2 Le diagramme non linéaire.

Selon la méthode utilisée pour les milieux Kerr, nous pouvons exprimer le corrélateur non linéaire des champs $C_E^{(1)}(\vec{r}, \vec{r}') = \langle E_\omega^{(2)}(\vec{r}) E_\omega^{(0)*}(\vec{r}') \rangle$ en fonction des solutions de Green de l'équation de propagation linéaire. Notons $\vec{R}$ le lieu de la première interaction non linéaire où est générée l'onde de deuxième harmonique $E_{2\omega}^{(1)}(\vec{r})$. Son amplitude est donnée par la formule:

$$E_{2\omega}^{(1)}(\vec{r}) = -4k_0^2 \chi_2 \int \mathcal{G}_{2\omega}(\vec{r}, \vec{R}) \mathcal{G}_\omega(\vec{R}, \vec{r}_1) \mathcal{G}_\omega(\vec{R}, \vec{r}_2) J(\vec{r}_1) J(\vec{r}_2) d^3 r_1 d^3 r_2 d^3 R. \quad (1.23)$$

À noter dans la formule précédente, la présence de la fonction de Green $\mathcal{G}_{2\omega}$ qui propage l'onde de deuxième harmonique du point $\vec{R}$ au point $\vec{r}$. En appelant $\vec{R}'$ le lieu de la seconde interaction non linéaire, on a alors:

$$E_\omega^{(2)}(\vec{r}) = -4k_0^2 \chi_2 \int \mathcal{G}_\omega(\vec{r}, \vec{R}') E_{2\omega}^{(1)}(\vec{R}') \mathcal{G}_\omega^*(\vec{R}', \vec{r}_3) J^*(\vec{r}_3) d^3 r_3 d^3 R'. \quad (1.24)$$

Pour ce qui est de la solution linéaire, elle est toujours donnée par la formule:

$$E^{(0)*}(\vec{r}') = \int \mathcal{G}_\omega^*(\vec{r}', \vec{r}_4) J^*(\vec{r}_4) d^3 r_4. \quad (1.25)$$

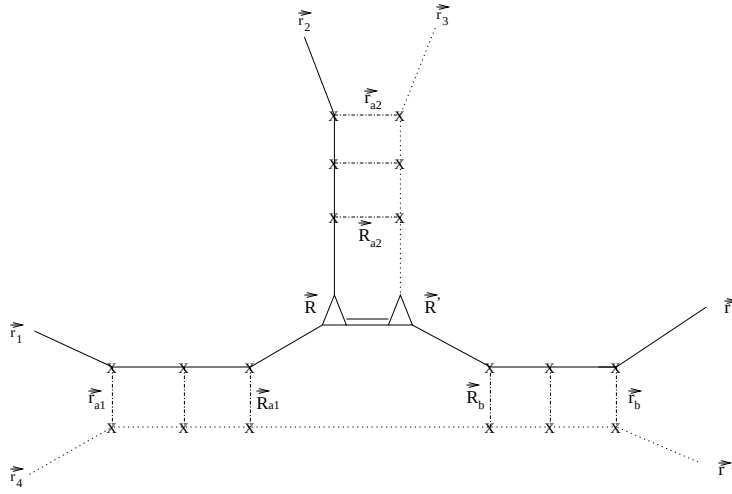


FIG. 1.5 - Le diagramme perturbatif pour un milieu non linéaire de type χ_2 . Le double trait représente la fonction de Green à 2ω qui propage l'onde de seconde harmonique de $\vec{R}$ à $\vec{R}'$. Les triangles représentent les lieux des interactions non linéaires. Les autres notations sont identiques à celles du diagramme de la section précédente.

Nous pouvons maintenant regrouper ces deux expressions pour former le corrélateur non linéaire des champs et effectuer la moyenne sur le désordre. Les seuls diagrammes qui ont alors une contribution non nulle sont représentés figure 1.5. De manière tout à fait analogue à la situation précédente, ce diagramme est constitué de trois propagateurs connectés entre eux par un vertex non linéaire que nous noterons K_2 et l'expression mathématique du diagramme non attaché peut de nouveau s'écrire (voir annexe A):

$$H(\vec{r}_{a1}, \vec{r}_{a2}; \vec{r}_b) = K_2 \int L(\vec{r}_{a1}, \vec{R}) L(\vec{r}_{a2}, \vec{R}) D(\vec{R}, \vec{r}_b) d^3 R \quad (1.26)$$

où la constante K_2 est égale à:

$$K_2 = -\chi_2^2 \frac{ik_0 l^3}{32\pi^2} (\Gamma + i\frac{\pi}{2}). \quad (1.27)$$

où Γ est la constante Gamma d'Euler.

1.3 Résumé.

Dans les deux situations étudiées, l'expression mathématique du terme non linéaire correctif du corrélateur est donnée par la formule:

$$H(\vec{r}_{a1}, \vec{r}_{a2}; \vec{r}_b) = K \int L(\vec{r}_{a1}, \vec{R}) L(\vec{r}_{a2}, \vec{R}) D(\vec{R}, \vec{r}_b) d^3 R \quad (1.28)$$

où K est une constante complexe que l'on peut remplacer au choix par K_3 ou K_2 . La seule différence notable entre les deux situations vient de l'expression des constantes K_3 et K_2 : alors

que K_3 est imaginaire pure, la constante K_2 est complexe. La raison de cette différence n'est pas très claire mais si on regarde attentivement le détail des calculs des vertex non linéaires, on constate qu'elle est liée à la présence de la fonction de Green à 2ω dans le vertex non linéaire K_2 . Nous verrons dans le chapitre suivant que la partie imaginaire de K est reliée à un effet de déphasage non linéaire introduit entre les deux champs du corrélateur le long du chemin de diffusion multiple. Par contre sa partie réelle est reliée à un effet d'absorption non linéaire dans le milieu.

Chapitre 2

Corrélations et rétrodiffusion cohérente en régime non linéaire.

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser aux corrélations de la figure de speckle en transmission ou en réflexion sur un milieu désordonné et non linéaire. En régime linéaire, les fonctions de corrélations sont définies en fonction des directions des faisceaux lasers incidents et des directions d'observation. Ces fonctions mesurent donc la corrélation, c'est à dire la "ressemblance" de la figure de speckle pour des angles différents. En régime non linéaire, on peut s'attendre à ce que la figure de speckle évolue également en fonction de l'amplitude du faisceau laser incident et une fonction de corrélation non linéaire doit donc mesurer la corrélation entre deux figures de speckle enregistrées pour des intensités incidentes différentes mais pour une même réalisation du désordre. Nous allons tout d'abord calculer ces fonctions de corrélations en transmission et en réflexion dans la géométrie de la tranche, à l'ordre le plus bas des non linéarités. Puis par comparaison avec les corrélations de speckle en fonction de la fréquence du faisceau incident, nous proposerons une solution plus complète qui contient le résultat perturbatif. Enfin nous utiliserons ces résultats pour obtenir une nouvelle expression du cône de rétrodiffusion en régime non linéaire.

2.1 Les corrélations en transmission.

2.1.1 Le système.

Dans cette première partie, nous allons considérer les corrélations en transmission sur une tranche de longueur L et de section transverse d'aire $S = W^2$, contenant le milieu aléatoire et non linéaire (voir figure 2.1). Pour ce système, la fonction de corrélation des champs

$$C_E(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \langle E_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}'_a}^*(\vec{k}'_b) \rangle \quad (2.1)$$

sera paramétrisée par les vecteurs d'onde incidents $\vec{k}_a$ et $\vec{k}'_a$, les vecteurs d'onde émergents $\vec{k}_b$ et $\vec{k}'_b$ ainsi que par les amplitudes A et A' des deux faisceaux lumineux incidents. Cette

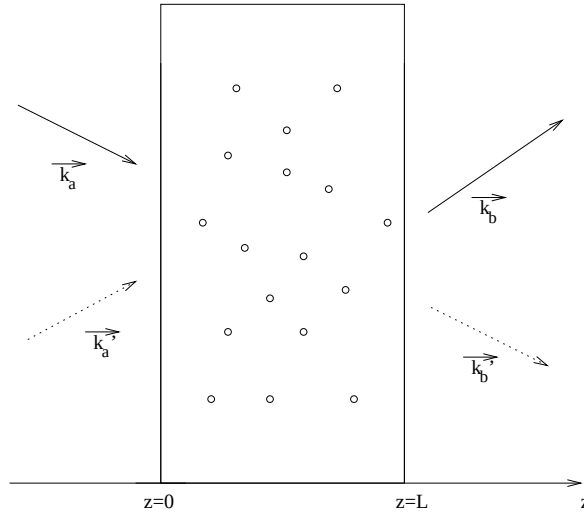


FIG. 2.1 - *La tranche non linéaire. Le milieu aléatoire et non linéaire est contenu entre les plans $z = 0$ et $z = L$. La tranche sera éclairée par des faisceaux de vecteurs d'onde notés $\vec{k}_a$ et $\vec{k}_a'$. La détection sera effectuée dans les directions $\vec{k}_b$ et $\vec{k}_b'$. On notera L la longueur de la tranche et W la taille transverse (dans les directions x et y) du système. On supposera $W \gg L$.*

fonction est égale à la valeur moyenne de deux champs enregistrés pour des intensités incidentes et des angles différents mais pour une même réalisation du désordre. Elle représente donc la corrélation des champs en fonction des angles et des intensités. En utilisant le développement perturbatif introduit au chapitre précédent, on obtient à l'ordre le plus bas des non linéarités:

$$C_E(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}_a', \vec{k}_b, \vec{k}_b') = \langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a'}^{(0)*}(\vec{k}_b') \rangle + \langle E_{\vec{k}_a}^{(1)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a'}^{(0)*}(\vec{k}_b') \rangle + \langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a'}^{(1)*}(\vec{k}_b') \rangle. \quad (2.2)$$

À cet ordre d'approximation, il nous faut donc calculer deux types de corrélateurs par la théorie des diagrammes: un corrélateur linéaire $\langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a'}^{(0)*}(\vec{k}_b') \rangle$ et deux corrélateurs non linéaires $\langle E_{\vec{k}_a}^{(1)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a'}^{(0)*}(\vec{k}_b') \rangle$ et $\langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a'}^{(1)*}(\vec{k}_b') \rangle$.

2.1.2 Le propagateur de diffusion.

Avant de calculer ces corrélateurs, nous allons établir l'expression du propagateur de diffusion dans le cas d'une tranche de longueur L et de section transverse infinie. On rappelle que le propagateur est solution de l'équation de diffusion:

$$-\vec{\nabla}^2 D(\vec{r}_b, \vec{r}_a) = \delta(\vec{r}_b - \vec{r}_a). \quad (2.3)$$

Le système étant invariant en moyenne sur le désordre, par translation dans les directions transverses, on a $D(\vec{r}_b, \vec{r}_a) = D(z_b, z_a, \vec{\rho}_b - \vec{\rho}_a)$ où $\vec{\rho}_a$ et $\vec{\rho}_b$ sont respectivement les composantes

transverses de $\vec{r}_a$ et de $\vec{r}_b$. Sa transformée de Fourier transverse:

$$D(z_b, z_a, \vec{q}) = \frac{1}{(\sqrt{2\pi})^2} \iint D(z_b, z_a, \delta\vec{\rho}) e^{i\vec{q} \cdot \delta\vec{\rho}} d^2\delta\rho \quad (2.4)$$

est alors solution de:

$$(q^2 - \frac{\partial^2}{\partial z_b^2}) D(z_b, z_a, \vec{q}) = \frac{1}{2\pi} \delta(z_b - z_a). \quad (2.5)$$

Les conditions limites.

Pour résoudre cette équation, il nous faut préciser les conditions limites sur les deux plans $z = 0$ et $z = L$. Ces conditions limites s'obtiennent en revenant à une description microscopique du système en considérant par exemple un gaz de photons dont l'évolution dans le milieu désordonné est donné par l'équation de Boltzmann de la théorie cinétique des gaz. Le milieu désordonné étant compris entre les plans $z = 0$ et $z = L$, tout photon qui traversera un de ces plans ne pourra plus être diffusé par aucune impureté. Ainsi, le flux transverse de photons entrant dans le tranche doit être nul et cette condition se traduit par les deux conditions macroscopiques:

$$\begin{cases} D(0, z_a, \vec{q}) - \tau l \frac{\partial D}{\partial z_b}(0, z_a, \vec{q}) = 0 & \text{en } z_b = 0. \\ D(L, z_a, \vec{q}) + \tau l \frac{\partial D}{\partial z_b}(L, z_a, \vec{q}) = 0 & \text{en } z_b = L. \end{cases} \quad (2.6)$$

où $\tau = 2/3$ dans ce modèle. Dans le cadre de la théorie du transfert radiatif, ce problème est connu sous le nom de problème de Milne. On montre alors que la valeur de τ dépend également du rapport des indices de réfraction des milieux intérieur et extérieur, de l'absorption, de l'anisotropie de la diffusion [20].

Le propagateur d'intensité.

En résolvant l'équation de transport (2.5) avec les conditions limites de Milne, soit par la méthode des images [24], soit par la méthode générale de résolution d'une équation différentielle du second ordre, on obtient l'expression du propagateur de diffusion:

$$D(z_b, z_a, \vec{q}) = \frac{1}{4\pi q} \left\{ e^{-q|z_b - z_a|} + \alpha(1 + \tau l q) \cosh q(z_a + z_b - L) - \alpha(1 - \tau l q) e^{-qL} \cosh q(z_b - z_a) \right\} \quad (2.7)$$

où α est une constante qui est égale à:

$$\alpha = \frac{2(1 - \tau l q)}{(1 - \tau l q)^2 e^{-qL} - (1 + \tau l q)^2 e^{qL}}. \quad (2.8)$$

Dans la limite où $ql \ll 1$ que l'on considérera lorsque l'on utilisera des faisceaux incidents proches de la direction normale à la tranche, on peut utiliser la formule approchée:

$$D(z_b, z_a, \vec{q}) \approx \frac{1}{2\pi} \frac{\sinh q(L - z_>) \sinh qz_<}{q \sinh qL} \quad (2.9)$$

où $z_> = \max(z_a, z_b)$ et $z_< = \min(z_a, z_b)$. On remarque que l'on aurait pu obtenir directement cette fonction en utilisant les conditions limites de Dirichlet: $D(0, z_a, \vec{q}) = D(L, z_a, \vec{q}) = 0$.

2.1.3 Calcul du corrélateur linéaire des champs.

Le corrélateur linéaire des champs s'obtient en attachant le ladder aux vecteurs d'onde incidents et émergents (voir figure 2.2). Lorsque l'on se place pour des incidences proches de

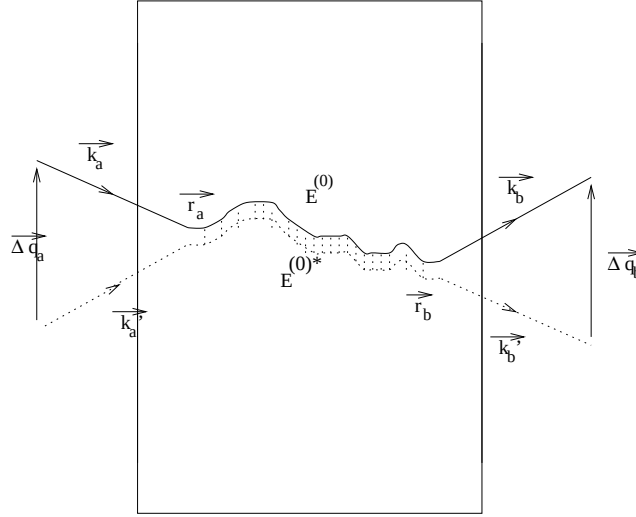


FIG. 2.2 - Le diagramme, dans l'espace réel, permettant de calculer le corrélateur linéaire des champs. Le premier événement de diffusion a lieu en $\vec{r}_a$ et le dernier en $\vec{r}_b$. Les deux champs se propageant le long des mêmes chemins, aucun déphasage, n'est introduit le long de la propagation et seuls les termes de phase incident $e^{-i\vec{k}_a \cdot \vec{r}_a}$ et émergent $e^{i\vec{k}_b \cdot \vec{r}_b}$ contribuent à la dépendance de la fonction de corrélation en $\vec{k}_a$, $\vec{k}'_a$, $\vec{k}_b$ et $\vec{k}'_b$.

la direction normale de la tranche et en notant $\vec{q}_a$, $\vec{q}'_a$, $\vec{q}_b$ et $\vec{q}'_b$ les composantes transverses des vecteurs d'onde $\vec{k}_a$, $\vec{k}'_a$, $\vec{k}_b$ et $\vec{k}'_b$, l'expression du corrélateur est [5]:

$$C_E^{(0)}(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \left(\frac{2\pi}{k_0}\right)^2 \left(\frac{l}{4\pi}\right)^2 \frac{AA'}{S^2} \times \iint e^{-i\Delta\vec{q}_a \cdot \vec{\rho}_a} \frac{12\pi}{l^3} D(l, L-l, \vec{\rho}_b - \vec{\rho}_a) e^{i\Delta\vec{q}_b \cdot \vec{\rho}_b} d^2\rho_a d^2\rho_b. \quad (2.10)$$

où $\Delta\vec{q}_a = \vec{q}'_a - \vec{q}_a$ et $\Delta\vec{q}_b = \vec{q}'_b - \vec{q}_b$. Dans l'expression précédente, les deux termes de phase $e^{-i\Delta\vec{q}_a \cdot \vec{\rho}_a}$ et $e^{i\Delta\vec{q}_b \cdot \vec{\rho}_b}$ sont des termes d'interférence entre les deux faisceaux incidents en $\vec{r}_a$ et les deux faisceaux émergents de $\vec{r}_b$. Nous avons de plus supposé que les ondes subissaient leur première et leur dernière diffusion à une distance l des surfaces d'entrée et de sortie. L'influence des conditions limites n'est importante que sur une couche d'épaisseur l . À l'ordre principal en l/L , il est donc suffisant d'utiliser le propagateur obtenu avec les conditions limites de Dirichlet.

(Pour un traitement plus complet et plus rigoureux de l'influence des conditions limites voir [2]). Après intégration sur $\vec{\rho}_a$ et $\vec{\rho}_b$, on obtient l'expression de la fonction de corrélation:

$$C_E^{(0)}(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \frac{(2\pi)^3}{k_0^2} \frac{1}{(4\pi)^2} \frac{AA'}{S} \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} D(L-l, l, \Delta\vec{q}_a) \quad (2.11)$$

et pour $\Delta q_a l \ll 1$, lorsque les faisceaux incidents sont peu inclinés par rapport à la direction normale à la tranche, on obtient:

$$C_E^{(0)}(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) \approx \frac{3\pi AA'}{k_0^2 S} \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{l}{L} F_T(\Delta q_a L) \quad (2.12)$$

où la fonction $F_T(x) = x / \sinh x$, représentée figure 2.3, est appelée fonction de corrélation réduite. La décorrélation angulaire a donc lieu sur des échelles de l'ordre de $1/L$.

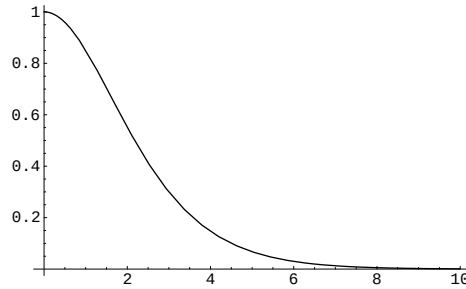


FIG. 2.3 - La fonction de corrélation réduite $F_T(x) = x / \sinh x$.

2.1.4 Calcul du corrélateur non linéaire des champs

De la même façon, on peut obtenir le corrélateur non linéaire des champs représenté figure 2.4. On peut montrer à l'aide de la formule (1.14) du chapitre 1 que son expression mathématique est:

$$C_E^{(1)}(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \frac{3\pi A^3 A'}{k_0^2 S} \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \times \\ K \int_0^L \left(\frac{12\pi}{l^3} \right)^2 D(l, Z, \Delta\vec{q}_a) D(l, Z, \vec{0}) D(L-l, Z, \Delta\vec{q}_a) dZ. \quad (2.13)$$

Dans l'expression précédente, nous avons de nouveau supposé que les sources étaient situées à une distance l des surfaces de la tranche. Après intégration sur Z , on obtient:

$$C_E^{(1)}(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \frac{3\pi AA'}{k_0^2 S} \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{l}{L} i\gamma^2 A^2 L^2 \frac{-F'_T(\Delta q_a L)}{4\Delta q_a L} \quad (2.14)$$

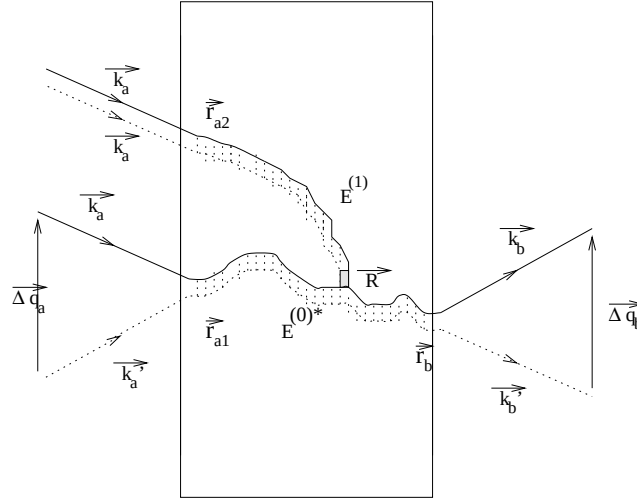


FIG. 2.4 - Le diagramme, dans l'espace réel, qui donne la première correction non linéaire pour la fonction de corrélation des champs, en transmission sur la tranche de longueur L . Ce diagramme est constitué de deux propagateurs incidents qui transportent respectivement les impulsion $\Delta \vec{q}_a$ et 0 de $\vec{r}_{a1}$ et $\vec{r}_{a2}$ jusqu'au point $\vec{R}$, lieu de l'interaction non linéaire. Un dernier propagateur relie le point $\vec{R}$ au point de sortie $\vec{r}_b$.

où $F'_T(x)$ est la fonction dérivée de $F_T(x)$ et où le coefficient γ^2 est défini par :

$$\gamma^2 = \frac{(12\pi)^2 K}{il^2}. \quad (2.15)$$

Pour un milieu aléatoire Kerr caractérisé par une constante K_3 , ce coefficient est égal à : $\gamma^2 = 9/2 \chi_3 k_0 / l$. La quantité $\gamma^2 A^2$ est donc homogène à l'inverse du carré d'une longueur. Cette longueur est caractéristique du système et dépend à la fois des propriétés du désordre par l et des propriétés du milieu non linéaire par χ_3 . Nous en donnerons une interprétation lors de la comparaison avec les corrélations en fréquence. Avant de passer à la suite, nous pouvons remarquer que pour $\Delta q_a = 0$, ce terme perturbatif est divergent avec la taille L de la tranche. Ceci n'est pas très surprenant si on se souvient que les sources non linéaires utilisées pour calculer $E^{(1)}(\vec{r})$ sont réparties dans tout le volume de la tranche. $E^{(1)}(\vec{r})$ est donc un terme séculaire¹ et la méthode perturbative ne sera valide que tant que $E^{(1)}(\vec{r}) \ll E^{(0)}(\vec{r})$.

1. On rappelle que dans le cas de l'oscillateur anharmonique $\ddot{x} - \omega^2 \dot{x} = \alpha x^3$, si on cherche une solution perturbative sous la forme $x = x^{(0)} e^{i\omega t} + \alpha x^{(1)}(t) e^{i\omega t} + \dots + c.c.$, le terme résonnant $\alpha x^{(1)}(t) e^{i\omega t}$ est un terme perturbatif à l'ordre de α qui diverge avec le paramètre t . Par définition, ce terme est dit séculaire. (cf [19]).

2.1.5 La fonction de corrélation des champs.

En regroupant les résultats précédents, on peut enfin obtenir l'expression de la fonction de corrélation des champs à l'ordre le plus bas des non linéarités:

$$C_E(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \frac{3\pi AA'}{k_0^2 S} \delta_{\Delta\vec{q}_b, \Delta\vec{q}_a} \frac{l}{L} \times \left\{ F_T(\Delta q_a L) - i \frac{\gamma^2 A^2 L^2}{2} \frac{F'_T(\Delta q_a L)}{2\Delta q_a L} + i \frac{\overline{\gamma}^2 A'^2 L^2}{2} \frac{F'_T(\Delta q_a L)}{2\Delta q_a L} \right\}. \quad (2.16)$$

Dans le cas de l'oscillateur harmonique, le problème de la divergence du terme séculaire peut être éliminé en utilisant la méthode des échelles multiples. Dans cette méthode, le terme séculaire apparaît comme le premier terme du développement en série de Taylor de la solution "échelles multiples". Dans le cas qui nous intéresse, nous allons nous contenter de reconnaître dans l'expression (2.16) le début d'un développement en série de Taylor et nous allons supposer qu'une solution plus complète du problème est:

$$C_E(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \frac{3\pi A^3 A'}{k_0^2 S} \delta_{\Delta\vec{q}_b, \Delta\vec{q}_a} \frac{l}{L} F_T \left(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 - i \frac{\gamma^2 A^2 - \overline{\gamma}^2 A'^2}{2} L^2} \right). \quad (2.17)$$

Cette façon de faire n'est pas unique mais nous donnerons un petit modèle dans le cas d'un milieu avec indice de réfraction non linéaire qui permettra de justifier l'expression proposée.

2.1.6 La fonction de corrélation des intensités.

L'approximation C_1 .

Dans le cadre de l'approximation C_1 [5], la fonction de corrélation des intensités $C(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \langle I_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b) I_{\vec{k}'_a}^*(\vec{k}'_b) \rangle$ est donnée par le module carré du corrélateur des champs:

$$C_1(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \left| C_E(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) \right|^2. \quad (2.18)$$

Dans cette approximation, les chemins de diffusion multiples sont supposés indépendants. Ici, comme nous nous plaçons dans un régime faiblement non linéaire, nous supposons que les non linéarités n'affectent pas les propriétés des particules diffusantes et donc ne modifient pas la répartition des chemins de diffusion multiple. Dans cette hypothèse, nous obtenons:

$$C_1(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \delta_{\Delta\vec{q}_b, \Delta\vec{q}_a} \langle I_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b) \rangle \langle I_{\vec{k}'_a}(\vec{k}'_b) \rangle \times \left| F_T \left(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 - i \frac{\gamma^2 A^2 - \overline{\gamma}^2 A'^2}{2} L^2} \right) \right|^2. \quad (2.19)$$

Les milieux à indice de réfraction non linéaire.

Considérons maintenant le cas particulier d'un milieu Kerr dont la susceptibilité diélectrique χ_3 est réelle. Le coefficient K du vertex non linéaire est alors imaginaire pur et le coefficient γ^2 est réel. La fonction de corrélation peut être réécrite:

$$C_1(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \delta_{\Delta\vec{q}_b, \Delta\vec{q}_a} \langle I_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b) \rangle \langle I_{\vec{k}'_a}(\vec{k}'_b) \rangle \times \left| F_T \left(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 - i \frac{\gamma^2 (A^2 - A'^2) L^2}{2}} \right) \right|^2. \quad (2.20)$$

Ces milieux non linéaires sont caractérisés par un indice de réfraction optique qui dépend de l'amplitude de l'onde électromagnétique incidente selon la formule:

$$n = n_0 + n_2 A^2 \quad (2.21)$$

avec $n_2 = 3\chi_3/2n_0$ où n_0 est l'indice optique linéaire [19]. Dans le système qui nous intéresse, les deux champs qui composent le corrélateur et qui se propagent le long du chemin de diffusion multiple vont donc “voir” deux indices optiques différents puisque les deux faisceaux incidents ont des amplitudes A et A' différentes. Les deux champs vont donc parcourir un chemin optique différent et un déphasage va s'accumuler le long du chemin de diffusion multiple. En moyenne, ce déphasage sera égal à $\Delta\Phi = \mathcal{L} \Delta k$ où $\mathcal{L}$ est la longueur moyenne des chemins de diffusion et où $\Delta k = k_0 \Delta n = k_0 n_2 (A^2 - A'^2)$ est la différence de vecteur d'onde introduite par les non linéarités. (Dans ce modèle, on suppose que l'indice de réfraction non linéaire est égal à $n_2 A^2$ dans tout le milieu. Si on voulait être plus précis, on devrait tenir compte des fluctuations de l'intensité et de l'indice non linéaire à l'intérieur du milieu aléatoire). Si on suppose que la lumière se propage selon une marche aléatoire de pas l , on a $\mathcal{L} = 3L^2/l$ et on obtient finalement:

$$\Delta\Phi = \frac{3k_0 \Delta n}{l} L^2 = \frac{3\omega_0 \Delta n}{cl} L^2. \quad (2.22)$$

Cette situation est analogue à l'étude des corrélations de la figure de speckle en fonction de la fréquence de l'onde lumineuse incidente. Dans l'approximation C_1 , la fonction de corrélation en fréquence est définie par:

$$C_1(\Delta\omega, \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = | \langle E_{\vec{k}_a}^\omega(\vec{k}_b) E_{\vec{k}'_a}^{\omega'}(\vec{k}'_b) \rangle |^2 \quad (2.23)$$

où $\Delta\omega = \omega - \omega'$ est la différence de fréquence entre les deux faisceaux incidents considérés. Là aussi, en plus des déphasages extérieurs liés à $\Delta\vec{q}_a$ et $\Delta\vec{q}_b$, un déphasage supplémentaire $\Delta\Phi_{\Delta\omega}$ s'accumule le long des chemins de diffusion multiple et de la même façon que précédemment, on peut l'évaluer par la formule:

$$\Delta\Phi_{\Delta\omega} = \mathcal{L} \Delta k = \frac{3n_0 \Delta\omega}{cl} L^2. \quad (2.24)$$

Or la fonction de corrélation en fréquence est égale à [10]:

$$C_1(\Delta\omega, \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \delta_{\Delta\vec{q}_b, \Delta\vec{q}_a} \langle I_{\vec{k}_a}^\omega(\vec{k}_b) \rangle \langle I_{\vec{k}'_a}^{\omega'}(\vec{k}'_b) \rangle \left| F_T \left(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 - 2i\alpha_{\Delta\omega}^2 L^2} \right) \right|^2 \quad (2.25)$$

où le paramètre $\alpha_{\Delta\omega}$ est relié à $\Delta\Phi_{\Delta\omega}$ par la formule $\Delta\Phi_{\Delta\omega} = 2\alpha_{\Delta\omega}^2 L^2$. Par analogie, le paramètre qui doit apparaître dans l'expression de la fonction de corrélation non linéaire est :

$$\alpha_{NL}^2 = \frac{3k_0\Delta n}{2l} \propto \gamma^2(A^2 - A'^2). \quad (2.26)$$

À un facteur numérique près, on retrouve donc la formule (2.20). Dans ce petit modèle, α_{NL}^{-1} apparaît comme une longueur caractéristique du système qui dépend à la fois du désordre par l et des non linéarités par χ_3 . C'est la taille caractéristique que doit avoir la tranche pour que le déphasage moyen introduit le long du chemin de diffusion soit de l'ordre de 2π et donc pour que les deux figures de speckle enregistrées pour les deux amplitudes A et A' soient complètement décorrelées. Sur la figure 2.5 nous avons représenté la fonction de corrélation

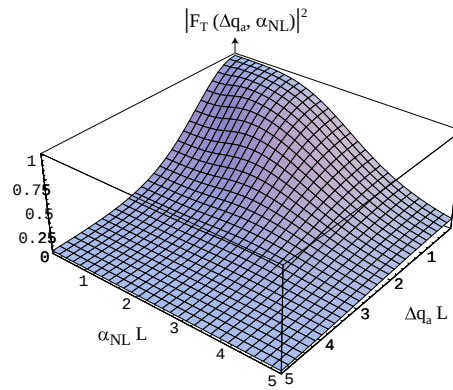


FIG. 2.5 - La fonction de corrélation de la figure de speckle en fonction de la variable angulaire Δq_a et des non linéarités par l'intermédiaire de α_{NL} .

réduite $|F_T(\Delta q_a, \alpha_{NL})|^2$ en fonction des deux variables Δq_a et α_{NL} . Dans le cas particulier où $\Delta q_a = 0$, elle est égale à :

$$|F_T(\Delta q_a, \alpha_{NL})|^2 = \frac{4\alpha_{NL}^2 L^2}{\cosh(2\alpha_{NL}L) - \cos(2\alpha_{NL}L)}. \quad (2.27)$$

Deux figures de speckle ne seront donc plus corrélées pour des valeurs de γ telles que l'on ait $\gamma L \sim 2$. Dans le cas d'une tranche de longueur $L = 10^{-2}m$ et pour un libre parcours moyen $l = 10^{-3}m$, cela correspond à une variation d'indice de l'ordre de $\Delta n = n_2(A^2 - A'^2) \sim 2 \times 10^{-5}$. Cette valeur est importante mais elle ne semble pas hors de portée d'une réalisation pratique.

Les absorbants non linéaires.

Considérons maintenant le cas particulier des milieux absorbants non linéaires pour lesquels χ_3 et donc γ^2 sont imaginaires purs. La fonction de corrélation peut alors se réécrire :

$$C_1(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}_a', \vec{k}_b, \vec{k}_b') = \delta_{\Delta\vec{q}_b, \Delta\vec{q}_a} \times$$

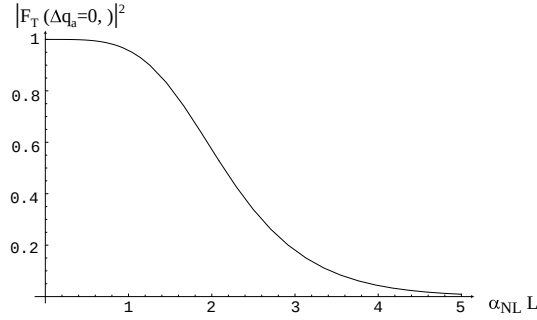


FIG. 2.6 - La fonction $|F_T(\Delta q_a = 0, \alpha_{NL})|^2$ en fonction de α_{NL} .

$$\langle I_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b) \rangle \langle I_{\vec{k}'_a}(\vec{k}'_b) \rangle = \left| F_T \left(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 + \frac{L^2}{L_a^2} - i\gamma^2 \frac{(A^2 + A'^2)}{2} L^2} \right) \right|^2. \quad (2.28)$$

Dans cette expression, l'effet de l'absorption linéaire a été ajoutée par l'intermédiaire de la longueur d'absorption linéaire $L_a = \sqrt{l_a/3} = L/\sqrt{3k_0 l \text{Im}\chi_1}$ [5]. Si on se place dans le cas particulier où les amplitudes des deux faisceaux sont égales $A = A'$, il est utile de définir une longueur d'absorption non linéaire par la relation:

$$\frac{1}{(L_a^{NL})^2} = \frac{1}{L_a^2} - i\gamma^2 A^2 = \frac{3k_0 l \text{Im}\chi_1 + 9/2 k_0 l \text{Im}\chi_3 A^2}{l^2} \quad (2.29)$$

et on obtient finalement:

$$C_1(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \delta_{\Delta \vec{q}_b, \Delta \vec{q}_a} \langle I_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b) \rangle \langle I_{\vec{k}'_a}(\vec{k}'_b) \rangle = \left| F_T \left(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 + \frac{L^2}{L_a^{NL2}}} \right) \right|^2. \quad (2.30)$$

Dans cette situation, les non linéarités ne modifient donc que la valeur du coefficient d'absorption mais ne modifient pas la forme de la fonction de corrélation.

Lien avec les vertex non linéaires.

L'exemple des milieux Kerr montre a posteriori donc que la partie imaginaire du coefficient K des vertex non linéaires est reliée à un effet de déphasage introduit le long des chemins de diffusion multiple alors que la partie réelle est liée à un effet d'absorption. Mais l'interprétation des vertex non linéaires K_3 et K_2 reste difficile.

2.2 Les corrélations en reflexion.

2.2.1 La tranche semie-infinie.

Dans cette section, nous allons considérer les corrélations en reflexion sur une tranche semie-infinie, représentée figure 2.7. En reflexion, le calcul se mène de la même façon que

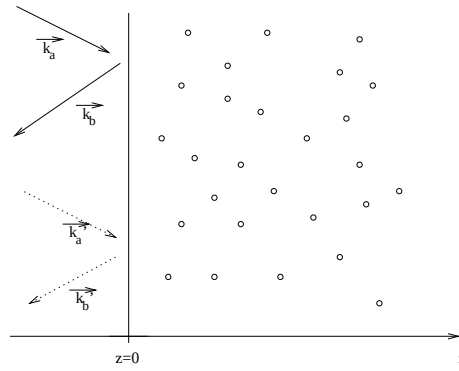


FIG. 2.7 - La tranche semi-infinie. Le milieu non linéaire est dans le demi espace $z > 0$.

précédemment mais nous devons également tenir compte des interférences entre un chemin de diffusion et son chemin de diffusion inverse[6]. En effet, dans les deux situations représentées

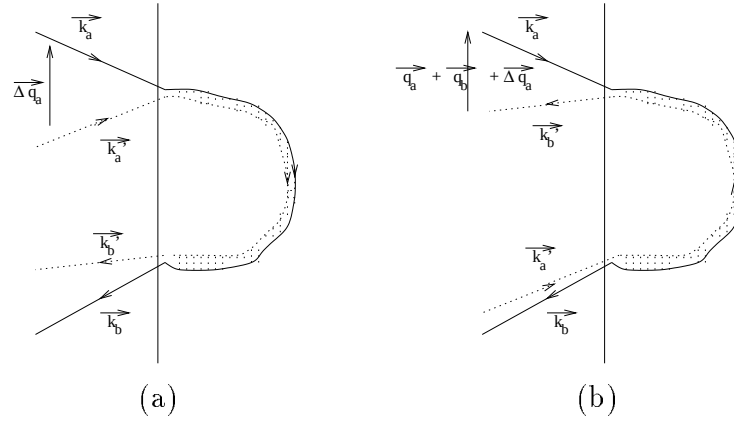


FIG. 2.8 - Les diagrammes permettant de calculer les fonctions de corrélation en réflexion sur la tranche semi-infinie. (a) diagramme direct. (b) diagramme inverse. Les flèches indiquent le sens de parcours des champs le long du chemin de diffusion. $\Delta \vec{q}_a = \vec{q}'_a - \vec{q}_a$, $\vec{q}_a + \vec{q}_b + \Delta \vec{q}_a = \vec{q}'_b + \vec{q}_a$ où $\vec{q}_a$, $\vec{q}_b$, $\vec{q}'_a$ et $\vec{q}'_b$ sont les composantes transverses des vecteurs $\vec{k}_a$, $\vec{k}_b$, $\vec{k}'_a$ et $\vec{k}'_b$.

figure 2.8, les champs passent exactement par les mêmes diffuseurs et les phases des deux champs vont se compenser aussi bien pour le diagramme direct que pour le diagramme croisé. Dans le régime linéaire le corrélateur des champs est donc donné par la formule:

$$\begin{aligned} \langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}'_a}^{(0)*}(\vec{k}'_b) \rangle &= \delta_{\Delta \vec{q}_a, \Delta \vec{q}_b} \frac{3\pi A A'}{k_0^2 S} \frac{1}{l^2} \int_0^\infty \int_0^\infty e^{-z'/l} \times \\ &\quad \left\{ D(z, z', \Delta \vec{q}_a) + D(z, z', \vec{q}_a + \vec{q}_b + \Delta \vec{q}_a) \right\} e^{-z/l} dz dz' \end{aligned} \quad (2.31)$$

En réflexion, l'effet de la surface et des conditions limites est important et nous n'avons donc pas considéré que les sources étaient à une distance l de la surface de la tranche mais nous avons

explicitement introduit le facteur d'atténuation du faisceau cohérent en $e^{-z/l}$ et en $e^{-z'/l}$. En utilisant l'expression (2.7) du propagateur de diffusion pour $L = +\infty$, on obtient après avoir effectué les deux intégrations sur z et sur z' :

$$\langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a'}^{(0)*}(\vec{k}_b') \rangle = \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3\pi AA'}{k_0^2 S} \frac{l}{2} \{F_R(\Delta q_a l) + F_R(|\vec{q}_a + \vec{q}_b + \Delta\vec{q}_a|l)\}, \quad (2.32)$$

où

$$F_R(ql) \sim (1 + 2\tau) - 2(1 + \tau)^3 ql + \dots \text{ pour } ql \ll 1. \quad (2.33)$$

De la même façon, on peut obtenir l'expression du corrélateur non linéaire des champs à l'aide des deux diagrammes représentés figure 2.9. Dans la limite $\Delta q_a l \ll 1$, on obtient:

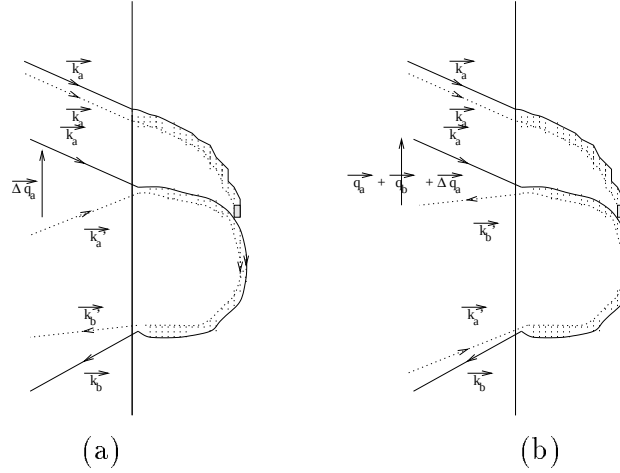


FIG. 2.9 - Les diagrammes permettant de calculer les fonctions de corrélation en réflexion sur la tranche semi-infinie. (a) diagramme direct. (b) diagramme inverse.

$$\langle E_{\vec{k}_a}^{(1)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a'}^{(0)*}(\vec{k}_b') \rangle = \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3\pi AA'}{k_0^2 S} i\gamma^2 A^2 l^4 (1 + \tau)^3 \times \left\{ \frac{1}{\Delta q_a} + \frac{1}{|\vec{q}_a + \vec{q}_b + \Delta\vec{q}_a|} \right\} + \dots \quad (2.34)$$

où γ^2 est définie par la formule (2.15). Comme dans le cas des corrélations en transmission, lorsque l'on regroupe les deux expressions des corrélateurs des champs, on reconnaît le début d'un développement en série de Taylor. On obtient alors:

$$C_R^{(1)} = \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \langle I_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b) \rangle \langle I_{\vec{k}_a'}(\vec{k}_b') \rangle \left| F_R(\sqrt{\Delta q_a^2 l^2 - 2i(1+\tau)(\gamma^2 A^2 - \overline{\gamma^2} A'^2)l^2}) \times \right. \\ \left. + F_R(\sqrt{|\vec{q}_a + \vec{q}_b + \Delta\vec{q}_a|^2 l^2 - 2i(1+\tau)(\gamma^2 A^2 - \overline{\gamma^2} A'^2)l^2}) \right|^2. \quad (2.35)$$

Nous avons représenté la fonction de corrélation $C_R^{(1)}$ sur la figure 2.10 dans le cas d'un milieu aléatoire Kerr caractérisé par un coefficient γ^2 réel. Pour $\gamma^2 = 0$, elle présente deux pics qui

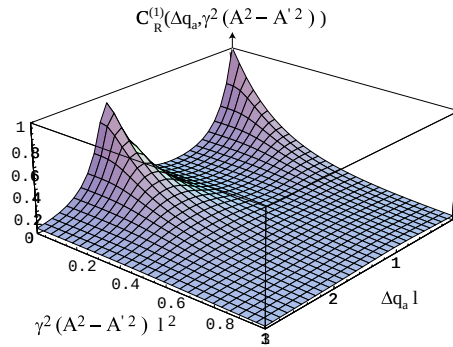


FIG. 2.10 - La fonction de corrélation de la figure de speckle en réflexion sur une tranche semie-infinie contenant un milieu Kerr, en fonction de la variable angulaire Δq_a et des non linéarités par l'intermédiaire de γ^2 . Pour $\gamma^2=0$, elle présente deux pics pour $\Delta \vec{q}_a = \vec{0}$ ($\vec{q}'_a = \vec{q}_a$ et $\vec{q}'_b = \vec{q}_b$) et pour $\vec{q}_a + \vec{q}_b + \Delta \vec{q}_a = \vec{0}$ ($\vec{q}'_a = -\vec{q}_b$ et $\vec{q}'_b = -\vec{q}_a$).

correspondent aux deux conditions $\Delta \vec{q}_a = \vec{0}$ ($\vec{q}'_a = \vec{q}_a$ et $\vec{q}'_b = \vec{q}_b$) et $\vec{q}_a + \vec{q}_b + \Delta \vec{q}_a = \vec{0}$ ($\vec{q}'_a = -\vec{q}_b$ et $\vec{q}'_b = -\vec{q}_a$). Le premier pic provient du terme de corrélation introduit par le diagramme direct et correspond à la direction exacte de rétrodiffusion. Le second pic est associé au diagramme inverse et correspond à la direction croisée. De même que dans la situation de la transmission la décorrélation non linéaire se produit par l'intermédiaire du coefficient γ^2 .

2.3 Le cône de rétrodiffusion.

Le cône de rétrodiffusion de la lumière par un milieu aléatoire et non linéaire a été étudié par Agranovitch *et al* [1] puis par Heiderich *et al* [14]. Dans leur étude, ils ont utilisé la méthode perturbative que nous avons reprise dans ce travail et ils ont obtenu une expression pour le cône de rétrodiffusion à l'ordre perturbatif. Si on va au delà de cet ordre perturbatif et que l'on suppose qu'il n'est que le début d'un développement en série de Taylor de la solution exacte, on peut en proposer une forme plus complète. À l'aide des calculs et des diagrammes de la section 2.2.1, on trouve pour l'intensité diffusée $\langle I(\vec{q}) \rangle = \langle E_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a}^*(\vec{k}_b) \rangle$ en fonction du vecteur de diffusion $\vec{q} = \vec{q}_a + \vec{q}_b$:

$$\frac{\langle I(\vec{q}) \rangle}{\langle I \rangle_{inc}} = \frac{F_R\left(\frac{1}{L_a^{NL}}\right) + F_R\left(\sqrt{q^2 + \left(\frac{1}{L_a^{NL}}\right)^2}\right)}{F_R\left(\frac{1}{L_a^{NL}}\right)}. \quad (2.36)$$

Comme les deux champs qui composent l'intensité diffusée $\langle I(\vec{q}) \rangle$ correspondent au même faisceau incident et donc à la même amplitude incidente, il ne peut pas y avoir d'effet de déphasage lié à un changement de l'indice de réfraction non linéaire. Il ne reste donc qu'un effet d'absorption non linéaire qui est de nouveau inclus dans la longueur d'absorption non linéaire. On retrouve ainsi la forme usuelle du cône de rétrodiffusion en présence d'absorption

(voir figure 2.11) sans le creux prédit dans les deux références citées ci dessus (voir figure 2.12). Le creux apparaît donc comme un artefact qui disparaît lorsque l'on rajoute les ordres supérieurs du développement perturbatif.

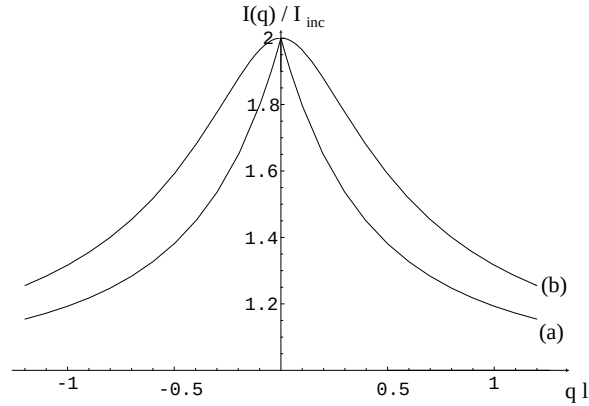


FIG. 2.11 - Le cône de rétrodiffusion de la lumière pour diverses valeurs du coefficient d'absorption non linéaire. (a) Pas d'absorption: $L_a^{NL} = +\infty$. (b) $L_a^{NL} = 10l$.

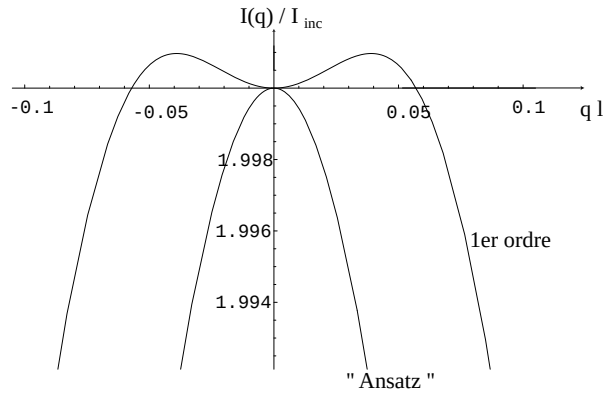


FIG. 2.12 - La forme angulaire du cône de rétrodiffusion obtenue à l'aide de l'"Ansatz" (formule (2.36)) d'une part et de son développement au premier ordre des non linéarités d'autre part. Les deux courbes ont été obtenues pour $L_a^2 i \gamma^2 A^2 = 6$ et $L_a = 10l$.

Conclusion.

En régime non linéaire, la figure de speckle et donc les fonctions de corrélations de l'intensité lumineuse transmise ou réfléchiée par un milieu désordonné, dépendent de l'amplitude des faisceaux incidents. Dans ce travail, nous avons utilisé une méthode diagrammatique pour calculer la première correction à l'ordre le plus bas des non linéarités des fonctions de corrélation. Dans la géométrie de la tranche, le terme correctif obtenu diverge avec la longueur L de la tranche et la validité de ce développement perturbatif est donc relativement limitée. Nous avons alors reconnu dans le développement perturbatif, le début d'une série de Taylor et nous avons proposé une fonction de corrélation non linéaire compatible avec ce développement. Cette fonction a été justifiée à l'aide d'un petit modèle dans le cas des milieux non linéaires Kerr. Dans ce modèle, l'effet des non linéarités se traduit par un déphasage non linéaire introduit le long des chemins de diffusion multiple. Ce déphasage est dû à la dépendance de l'indice de réfraction non linéaire avec l'amplitude des faisceaux incidents et à la modification du chemin optique parcouru par la lumière. Il est à l'origine de la décorrélation de la figure de speckle en parfaite analogie avec la décorrélation en fonction de la fréquence de l'onde incidente. Nous avons également considéré le cas des absorbants non linéaires. Dans cette situation les non linéarités ne font que modifier la valeur du coefficient d'absorption et leur effet a été introduit dans une longueur d'absorption non linéaire. Cette étude nous a aussi permis de proposer une nouvelle expression pour le cône de rétrodiffusion de la lumière en milieu aléatoire et non linéaire. Le principal point faible de cette étude réside dans la non-unicité des solutions compatibles avec les premiers termes du développement perturbatif. Une méthode ou une théorie non perturbative serait utile pour pouvoir inclure les effets des non linéarités sur le transport radiatif de l'intensité lumineuse en milieu désordonné. De plus, nous nous sommes limités à la géométrie de la tranche et il pourrait être intéressant de considérer d'autres géométries.

Annexe A

Les vertex non linéaires.

Le calcul des vertex non linéaires K_3 et K_2 , pour des systèmes à 3 ou à 2 dimensions, est présenté dans cette annexe. Ces deux vertex permettent d'attacher les trois propagateurs du diagramme perturbatif utilisé pour calculer le corrélateur des champs (voir figures A.1, A.2). K_3 et K_2 correspondent respectivement aux cas où la susceptibilité non linéaire du milieu est du troisième ordre (χ_3) ou du deuxième ordre (χ_2). Le diagramme K_3 a été introduit par Agranovitch et *al* [1] puis par Heiderich et *al* [14] lors de leur étude du cône de rétrodiffusion de la lumière dans un milieu Kerr. Toutes les formules mathématiques correspondant aux principaux diagrammes rencontrés sont regroupées à la fin de l'annexe.

A.1 Le vertex K_3 .

Le diagramme du corrélateur non linéaire des champs pour un milieu Kerr est redessiné figure A.1. Avec les notations introduites au chapitre 1, son expression mathématique est:

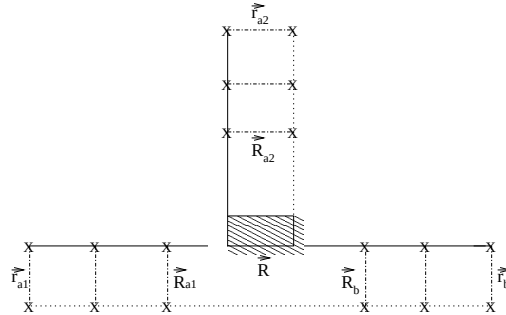


FIG. A.1 - *Le diagramme perturbatif pour un milieu Kerr.*

$$H(\vec{r}_{a1}, \vec{r}_{a2}; \vec{r}_b) = \int L(\vec{r}_{a1}, \vec{R}_{a1}) L(\vec{r}_{a2}, \vec{R}_{a2}) K_3(\vec{R}_{a1}, \vec{R}_{a2}; \vec{R}_b) D^{(0)}(\vec{R}_b, \vec{r}_b) d^3 R_{a1} d^3 R_{a2} d^3 R_b. \quad (\text{A.1})$$

Le vertex non linéaire K_3 contient toutes les fonctions de Green moyennes qui permettent d'attacher les trois propagateurs de la figure précédente. Il contient aussi l'interaction non linéaire qui est représentée par un carré hachuré figure (A.1). On a ainsi:

$$K_3(\vec{R}_{a1}, \vec{R}_{a2}; \vec{R}_b) = -\chi_3 k_0^2 \int G_\omega(\vec{R} - \vec{R}_{a1}) G_\omega(\vec{R} - \vec{R}_{a2}) G_\omega^*(\vec{R} - \vec{R}_{a2}) G_\omega(\vec{R}_b - \vec{R}) G_\omega^*(\vec{R}_b - \vec{R}_{a1}) d^3 R \quad (\text{A.2})$$

où l'intégration est faite sur le lieu $\vec{R}$ des sources non linéaires. Il est plus simple d'obtenir les expressions de H et de K_3 dans l'espace conjugué. En posant:

$$\begin{cases} L(\vec{r}_{a1}, \vec{R}_{a1}) = \frac{1}{(\sqrt{2\pi})^3} \int L(\vec{r}_{a1}, \vec{p}_1) e^{-i\vec{p}_1 \cdot \vec{R}_{a1}} d^3 p_1 \\ D^{(0)}(\vec{R}_b, \vec{r}_b) = \frac{1}{(\sqrt{2\pi})^3} \int D^{(0)}(\vec{p}_3, \vec{r}_b) e^{i\vec{p}_3 \cdot \vec{R}_b} d^3 p_3 \\ K_3(\vec{R}_{a1}, \vec{R}_{a2}; \vec{R}_b) = \frac{1}{(\sqrt{2\pi})^9} \int K_3(\vec{p}_1, \vec{p}_2; \vec{p}_3) e^{i(\vec{p}_1 \cdot \vec{R}_{a1} + \vec{p}_2 \cdot \vec{R}_{a2} - \vec{p}_3 \cdot \vec{R}_b)} d^3 p_1 d^3 p_2 d^3 p_3 \end{cases} \quad (\text{A.3})$$

nous obtenons:

$$H(\vec{r}_{a1}, \vec{r}_{a2}, \vec{r}_b) = \int L(\vec{r}_{a1}, \vec{p}_1) D^{(0)}(\vec{r}_{a2}, \vec{p}_2) K_3(\vec{p}_1, \vec{p}_2; \vec{p}_3) L(\vec{p}_3, \vec{r}_b) d^3 p_1 d^3 p_2 d^3 p_3. \quad (\text{A.4})$$

L'expression du vertex non linéaire K_3 dans la représentation de Fourier est:

$$K_3(\vec{p}_1, \vec{p}_2; \vec{p}_3) = -\chi_3 k_0^2 \frac{1}{(2\pi)^{12}} \int G_\omega(\vec{q}_1) G_\omega(\vec{q}_2) G_\omega^*(\vec{q}_3) G_\omega(\vec{q}_4) G_\omega^*(\vec{q}_5) d^3 q_1 d^3 q_2 d^3 q_3 d^3 q_4 d^3 q_5 \times \\ \int e^{i\vec{r}_1 \cdot (-\vec{p}_1 - \vec{q}_1 + \vec{q}_5)} e^{i\vec{r}_2 \cdot (-\vec{p}_2 - \vec{q}_2 + \vec{q}_3)} e^{i\vec{r}_3 \cdot (\vec{p}_3 + \vec{q}_4 - \vec{q}_5)} e^{i\vec{R} \cdot (\vec{q}_1 + \vec{q}_2 - \vec{q}_3 - \vec{q}_4)} d^3 R_{a1} d^3 R_{a2} d^3 R_b d^3 R. \quad (\text{A.5})$$

Les intégrations sur $\vec{R}_{a1}$, $\vec{R}_{a2}$, $\vec{R}_b$ et $\vec{R}$ font apparaître des facteurs $(2\pi)^3 \delta(\vec{p}_1 + \vec{q}_1 - \vec{q}_5)$, $(2\pi)^3 \delta(\vec{p}_2 + \vec{q}_2 - \vec{q}_3)$, $(2\pi)^3 \delta(\vec{p}_3 + \vec{q}_4 - \vec{q}_5)$ et $(2\pi)^3 \delta(\vec{q}_1 + \vec{q}_2 - \vec{q}_3 - \vec{q}_4)$ et après avoir également intégré sur $\vec{q}_3$, $\vec{q}_4$ et $\vec{q}_5$, on obtient:

$$K_3(\vec{p}_1, \vec{p}_2; \vec{p}_3) = -\chi_3 k_0^2 \delta(\vec{p}_1 + \vec{p}_2 - \vec{p}_3) \int G_\omega(\vec{q}_1) G_\omega(\vec{q}_2) G_\omega^*(\vec{q}_1 + \vec{p}_2) G_\omega(\vec{q}_1 - \vec{p}_1 - \vec{p}_4) G_\omega^*(\vec{q}_1 + \vec{p}_1) d^3 q_1 d^3 q_2. \quad (\text{A.6})$$

Le terme en $\delta(\vec{p}_1 + \vec{p}_2 - \vec{p}_3)$ traduit la conservation des impulsions transportées par les propagateurs puisque le vertex non linéaire ne brise pas l'invariance par translation en moyenne sur le désordre. Dans la limite où les impulsions transportées sont petites ($\vec{p}_i \rightarrow 0$), on obtient:

$$K_3(\vec{p}_1, \vec{p}_2; \vec{p}_3) = -\chi_3 k_0^2 \delta(\vec{p}_1 + \vec{p}_2 - \vec{p}_3) \int G_\omega^2(\vec{q}_1) G_\omega^*(\vec{q}_1) d^3 q_1 \int G_\omega(\vec{q}_2) G_\omega^*(\vec{q}_2) d^3 q_2. \quad (\text{A.7})$$

Finalement, après avoir effectué les deux dernières intégrations (voir formulaire), nous avons à l'ordre principal en $1/k_0 l$:

$$\begin{cases} K_3(\vec{p}_1, \vec{p}_2; \vec{p}_3) = \frac{1}{(\sqrt{2\pi})^3} \chi_3 \frac{ik_0 l^3}{32\pi^2} \delta(\vec{p}_1 + \vec{p}_2 - \vec{p}_3). \\ K_3(\vec{R}_{a1}, \vec{R}_{a2}; \vec{R}_b) = \chi_3 \frac{ik_0 l^3}{32\pi^2} \delta(\vec{R}_{a2} - \vec{R}_{a1}) \delta(\vec{R}_{a1} - \vec{R}_b). \end{cases} \quad (\text{A.8})$$

Pour un système à deux dimensions, on obtient de même:

$$\begin{cases} K_3(\vec{p}_1, \vec{p}_2; \vec{p}_3) = \frac{1}{2\pi} \chi_3 \frac{il^3}{64k_0} \delta(\vec{p}_1 + \vec{p}_2 - \vec{p}_3). \\ K_3(\vec{R}_{a1}, \vec{R}_{a2}; \vec{R}_b) = \chi_3 \frac{il^3}{64k_0} \delta(\vec{R}_{a2} - \vec{R}_{a1}) \delta(\vec{R}_{a1} - \vec{R}_b). \end{cases} \quad (\text{A.9})$$

A.2 Le vertex K_2 .

Pour des milieux qui ont une susceptibilité non linéaire de type χ_2 , un nouveau vertex d'interaction non linéaire K_2 doit être calculé (cf figure A.2). En conservant toujours les mêmes

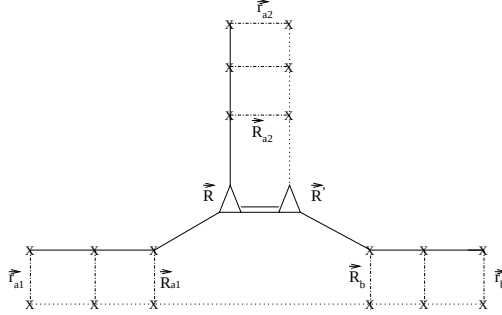


FIG. A.2 - Le diagramme perturbatif pour un milieu de type χ_2 .

notations, nous pouvons encore écrire:

$$H(\vec{r}_{a1}, \vec{r}_{a2}; \vec{r}_b) = \int L(\vec{r}_{a1}, \vec{R}_{a1}) L(\vec{r}_{a2}, \vec{R}_{a2}) K_2(\vec{R}_{a1}, \vec{R}_{a2}; \vec{R}_b) \times D^{(0)}(\vec{R}_b, \vec{r}_b) d^3 R_{a1} d^3 R_{a2} d^3 R_b. \quad (\text{A.10})$$

Cette fois, nous ferons seulement un calcul approché dans l'espace réel. Comme les fonctions de Green qui composent le vertex non linéaire décroissent exponentiellement sur une distance l , on peut supposer que les trois ladders sont attachés au point $\vec{R}$ et on peut donc réécrire la formule précédente:

$$H(\vec{r}_{a1}, \vec{r}_{a2}; \vec{r}_b) \approx \int L(\vec{r}_{a1}, \vec{R}) L(\vec{r}_{a2}, \vec{R}) D^{(0)}(\vec{R}, \vec{r}_b) K_2(\vec{R}) d^3 R, \quad (\text{A.11})$$

avec:

$$K_2(\vec{R}) = \chi_2^2 k_0^4 \int d^3 R_b d^3 R' G_{2\omega}(\vec{R}' - \vec{R}) \int G_\omega(\vec{R}_1 - \vec{R}_{a1}) G_\omega^*(\vec{R}_b - \vec{R}_{a1}) d^3 R_{a1} \times \\ \int G_\omega(\vec{R} - \vec{R}_{a2}) G_\omega^*(\vec{R}' - \vec{R}_{a2}) G_\omega(\vec{R}_b - \vec{R}') d^3 R_{a2}. \quad (\text{A.12})$$

Après intégration sur $\vec{R}_{a1}$, $\vec{R}_{a2}$ et $\vec{R}_b$ (voir formulaire) et en posant $\vec{x} = k_0(\vec{R}' - \vec{R})$, on obtient à l'ordre principal en $1/k_0 l$:

$$K_2(\vec{R}) = -\chi_2^2 \frac{ik_0 l^3}{32\pi^2} \int \frac{\sin^2 |\vec{x}|}{|\vec{x}|^2} e^{-|\vec{x}|/k_0 l} G_{2\omega}(\vec{x}) d^3 x \approx -\chi_2^2 \frac{ik_0 l^3}{32\pi^2} \left(\Gamma + i\frac{\pi}{2} \right) \quad (\text{A.13})$$

où Γ est la constante Gamma d'Euler.

De la même façon, nous obtenons à deux dimensions:

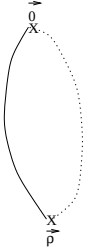
$$K_2(\vec{R}) = -\chi_2^2 \frac{l^3}{64k_0} \int_0^\infty 2i\pi \left(H_0^{(1)}(ix) - H_0^{(1)}(-ix) \right)^2 H_0^{(1)}(x) x dx. \quad (\text{A.14})$$

A.3 Quelques formules utiles.

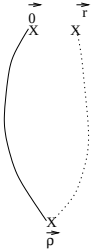
Dans les formules suivantes, $H_0^{(1)}$ est la fonction de Hankel d'ordre 1 et I_1 et K_1 sont les fonctions de Bessel modifiées d'ordre 1. On a posé $\mu = -ik_0 + \frac{1}{2l}$ et $\bar{\mu}$ est son complexe conjugué. On rappelle tout d'abord les expressions des fonctions de Green G_ω à 2 et à 3 dimensions pour un milieu infini:

$$G_\omega(\vec{\rho}) = \begin{cases} \frac{e^{-\mu|\vec{\rho}|}}{4\pi|\vec{\rho}|} & \text{à 3D,} \\ \frac{i}{4}H_0^{(1)}(\mu|\vec{\rho}|) & \text{à 2D.} \end{cases}$$

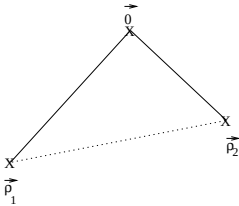
Dans les diagrammes suivants, les fonctions de Green sont représentées en traits pleins et les fonctions de Green conjuguées en traits pointillés. Les variables $\vec{\rho}$, $\vec{\rho}_1$ et $\vec{\rho}_2$ sont des variables muettes d'intégration sur l'espace. Les formules de cette page ont été obtenues sans approximation.



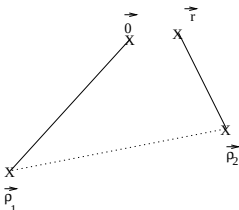
$$\int G_\omega(\vec{\rho})G_\omega^*(\vec{\rho})d^3\rho = \begin{cases} \frac{1}{4\pi(\mu + \bar{\mu})} & \text{à 3D,} \\ \frac{1}{2\pi} \frac{\ln \mu - \ln \bar{\mu}}{(\mu^2 - \bar{\mu}^2)} & \text{à 2D.} \end{cases}$$



$$\int G_\omega(\vec{\rho})G_\omega^*(\vec{\rho} - \Delta\vec{r})d^3\rho = \begin{cases} \frac{1}{4\pi} \frac{e^{-\bar{\mu}\Delta r} - e^{-\mu\Delta r}}{(\mu^2 - \bar{\mu}^2)\Delta r} & \text{à 3D,} \\ \frac{i}{4} \frac{H_0^{(1)}(i\bar{\mu}\Delta r) - H_0^{(1)}(i\mu\Delta r)}{(\mu^2 - \bar{\mu}^2)} & \text{à 2D.} \end{cases}$$

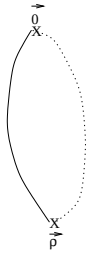


$$\int G_\omega(\vec{\rho}_1)G_\omega(\vec{\rho}_2)G_\omega^*(\vec{\rho}_2 - \vec{\rho}_1)d^3\rho_1d^3\rho_2 = \begin{cases} \frac{1}{8\pi\mu(\mu + \bar{\mu})^2} & \text{à 3D,} \\ \frac{1}{2\pi} \frac{(\bar{\mu}^2 - \mu^2) + 2\mu^2(\ln \mu - \ln \bar{\mu})}{2\mu^2(\mu^2 - \bar{\mu}^2)} & \text{à 2D.} \end{cases}$$

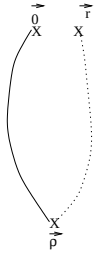


$$\int G_\omega(\vec{\rho}_1)G_\omega(\vec{\rho}_2 - \Delta\vec{r})G_\omega^*(\vec{\rho}_2 - \vec{\rho}_1)d^3\rho_1d^3\rho_2 = \begin{cases} -\frac{1}{8\pi\mu} \frac{(\mu^2 - \bar{\mu}^2)\Delta r e^{-\mu\Delta r} + 2\mu(e^{-\mu\Delta r} - e^{-\bar{\mu}\Delta r})}{(\mu^2 - \bar{\mu}^2)^2\Delta r} & \text{à 3D,} \\ \frac{1}{2\pi} \left\{ i\frac{\pi}{2} \frac{H_0^{(1)}(i\bar{\mu}\Delta r) - H_0^{(1)}(i\mu\Delta r)}{(\mu^2 - \bar{\mu}^2)^2} - \Delta r \frac{K_1(\mu\Delta r) + i\pi I_1(\mu\Delta r)}{2\mu(\mu^2 - \bar{\mu}^2)} \right\} & \text{à 2D.} \end{cases}$$

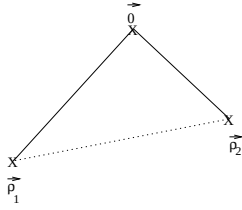
À l'ordre le plus bas en $1/k_0 l$, nous obtenons les formules approchées:



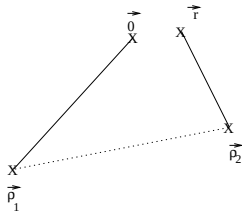
$$\int G_\omega(\vec{\rho}) G_\omega^*(\vec{\rho}) d^3 \rho = \begin{cases} \frac{l}{4\pi} & \text{à 3D,} \\ \frac{l}{4k_0} & \text{à 2D.} \end{cases}$$



$$\int G_\omega(\vec{\rho}) G_\omega^*(\vec{\rho} - \Delta \vec{r}) d^3 \rho = \begin{cases} \frac{l}{4\pi} \frac{\sin k_0 \Delta r}{k_0 \Delta r} e^{-\frac{\Delta r}{2l}} & \text{à 3D,} \\ \frac{l}{8k_0} \left\{ H_0^{(1)}(ik_0 \Delta r - \frac{\Delta r}{2l}) - H_0^{(1)}(-ik_0 \Delta r - \frac{\Delta r}{2l}) \right\} & \text{à 2D.} \end{cases}$$



$$\int G_\omega(\vec{\rho}_1) G_\omega(\vec{\rho}_2) G_\omega^*(\vec{\rho}_2 - \vec{\rho}_1) d^3 \rho_1 d^3 \rho_2 = \begin{cases} -\frac{il^2}{8\pi k_0} & \text{à 3D,} \\ -\frac{il^4}{8k_0^2 l^2} & \text{à 2D.} \end{cases}$$



$$\int G_\omega(\vec{\rho}_1) G_\omega(\vec{\rho}_2 - \Delta \vec{r}) G_\omega^*(\vec{\rho}_2 - \vec{\rho}_1) d^3 \rho_1 d^3 \rho_2 = \begin{cases} -\frac{il^2}{8\pi k_0} \frac{\sin k_0 \Delta r}{k_0 \Delta r} e^{-\frac{\Delta r}{2l}} & \text{à 3D,} \\ -\frac{il^4}{16k_0^2 l^2} \left\{ H_0^{(1)}(ik_0 \Delta r - \frac{\Delta r}{2l}) - H_0^{(1)}(-ik_0 \Delta r - \frac{\Delta r}{2l}) \right\} & \text{à 2D.} \end{cases}$$

Annexe B

Speckle Correlations and Coherent Backscattering in Non Linear Random Media

À paraître dans Wave Propagation and Imaging in Complex Media, éditeur Sebbah P., Kluwer Academic Publisher, 2000.

Chapter 1

SPECKLE CORRELATIONS AND COHERENT BACKSCATTERING IN NON LINEAR RANDOM MEDIA.

Richard Bressoux and Roger Maynard

LPM2C - Université Joseph Fourier / CNRS

Maison des maîtres - BP 166

38000 Grenoble France.

bressoux@belledonne.polycnrs-gre.fr

maynard@polycnrs-gre.fr

Abstract We calculate field-field and intensity-intensity correlation functions for light transmitted and reflected by a weakly non linear random medium containing randomly distributed scatterers. In a non linear Kerr medium, these correlation functions involve a characteristic length for phase decorrelation due to a change of the refractive index along the diffusive path of light. A new approximate expression for the non linear backscattering cone is obtained.

Keywords: Multiple scattering, non linearities, correlations.

When high laser intensity pulses of very short duration illuminate a sample, the non linear response of the system must be considered. Multiple scattering of waves in such media offers a new field of research. Very few studies in the regime of non linear multiple scattering have been carried out. The speckle correlation function of the second harmonic (generated by 90 ps pulses on LiNbO₃ particles in quartz window) has been measured and analysed [1]; An anomalous linewidth shape of the backscattering cone is predicted for a random and Kerr medium in a frame of perturbed multiple scattering by non linear interactions [2], [3]. Several predictions have been made also in the general context of weak non-linearities and modest beam intensity [4] [5]. Here, we calculate the intensity speckle correlation function in the weakly non linear regime for a random Kerr medium with a non linear susceptibility of the third order (χ_3). We will start from a perturbation scheme where the non linearity

2

produces a correction to the ladder diagrams for the average intensity. We propose a new expression of the short range correlation function of the speckle pattern, as a function of angle and intensity, by extending its linear functional dependence to the non linear regime. The main output of this approach is a new characteristic length that collects both non linearity and randomness. An extension to long range correlation function is also proposed.

The non linear correlation function. We consider a slab of scatterers imbedded in a homogeneous non linear medium (see Figure 1.1) and we are interested in the field-field and the intensity-intensity correlation function of the light emerging from this slab.

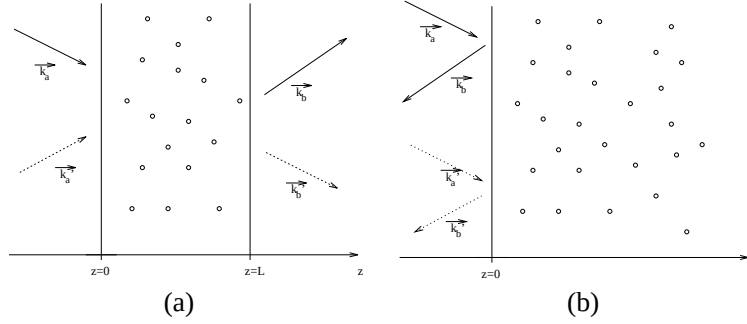


Figure 1.1 Illumination of a slab by two beams of wave vectors $\vec{k}_a$ or $\vec{k}_a'$: the scattered light is detected in either the direction $\vec{k}_b$ or $\vec{k}_b'$. The speckle correlation function is parameterized by all four wave vectors as well as the input amplitudes A and A' . (a) Transmission of a slab of length L . (b) Reflection on a semi-infinite slab.

First we will calculate the field-field correlation function, which depends on the incident directions $\vec{k}_a, \vec{k}_a'$, the emerging directions $\vec{k}_b, \vec{k}_b'$ and the amplitudes A and A' of the two incident beams :

$$C^E(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}_a', \vec{k}_b, \vec{k}_b') = \langle E_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a'}^*(\vec{k}_b') \rangle. \quad (1.1)$$

It describes the correlation between two outgoing fields for two incident beams with different amplitudes. In the following, we will assume that A' is small. In order to simplify the calculation, we use the scalar approximation for the electromagnetic field. This simplification is justified in the regime of strong multiple scattering where the light is totally depolarized. The wave equation is,

$$\vec{\nabla}^2 E(\vec{r}) + \frac{\omega^2}{c^2} \{ \epsilon(\vec{r}) + \alpha |E(\vec{r})|^2 \} E(\vec{r}) = J(\vec{r}), \quad (1.2)$$

Correlation and backscattering in non linear random media. 3

where $J(\vec{r})$ is the external source of radiation, $\epsilon(\vec{r}) = \epsilon_0 + \delta\epsilon(\vec{r})$ is the homogeneous linear dielectric constant ϵ_0 plus its random part $\delta\epsilon(\vec{r})$. Finally $\alpha = 4\pi\chi^{(3)}$ is the non linear susceptibility contributing to the dielectric constant. We suppose that there is no absorption in the linear regime and that $\epsilon(\vec{r})$ is real. In order to solve Eq. (1.2), we use a perturbational approach and expand the electric field as $E(\vec{r}) = E^{(0)}(\vec{r}) + E^{(1)}(\vec{r}) + \dots$, where $E^{(0)}(\vec{r})$ and $E^{(1)}(\vec{r})$ are solutions of, respectively,

$$\begin{cases} \vec{\nabla}^2 E^{(0)}(\vec{r}) + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\vec{r}) E^{(0)}(\vec{r}) = J(\vec{r}). \\ \vec{\nabla}^2 E^{(1)}(\vec{r}) + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\vec{r}) E^{(1)}(\vec{r}) = -\frac{\omega^2}{c^2} \alpha |E^{(0)}(\vec{r})|^2 E^{(0)}(\vec{r}). \end{cases} \quad (1.3)$$

In the second equation, the non linear term $-\alpha \omega^2 / c^2 |E^{(0)}(\vec{r})|^2 E^{(0)}(\vec{r})$ acts as a non linear source inside the volume of the slab. For the field-field correlator, we have to lowest order in α :

$$C^E = \langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a}^{(0)*}(\vec{k}_b) \rangle + \langle E_{\vec{k}_a}^{(1)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a}^{(0)*}(\vec{k}_b) \rangle. \quad (1.4)$$

Non linear correlations in transmission. In transmission through a slab of length L , the expression of the linear part of the field correlator is given by (see formula (20) of ref [6]),

$$\langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a}^{(0)*}(\vec{k}_b) \rangle = \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA'}{4k^2 S} \frac{l}{L} F_T(\Delta q_a L), \quad (1.5)$$

where $F_T(x) = x / \sinh(x)$.

The expression of the non linear field correlator $\langle E_{\vec{k}_a}^{(1)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a}^{(0)*}(\vec{k}_b) \rangle$ can be obtained by diagramatic expansion. In Figure 1.2, we have represented the corresponding diagram in real space, which contributes to lowest order in $1/kl$. Its mathematical expression is [2], [3]:

$$\begin{aligned} \langle E_{\vec{k}_a}^{(1)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a}^{(0)*}(\vec{k}_b) \rangle &= \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA'}{4k^2 S} \frac{27i\alpha A^2}{2n_0^2} \frac{kl}{l^4} \times \\ &\int_0^L D(L-l, z, \Delta\vec{q}_b) D(z, l, \Delta\vec{q}_a) D(z, l, \vec{0}) dz. \end{aligned} \quad (1.6)$$

where $D(z, z', \vec{q})$ is the intensity propagator from plane z' to plane z solution of: $(q^2 - \frac{\partial}{\partial z^2})D(z, z', \vec{q}) = \frac{1}{2\pi} \delta(z - z')$. We use the solution with the Dirichlet boundary conditions $D(\vec{r} - \vec{r}') = 0$ on the plane $z = 0$ and $z = L$. (In this transmission geometry, the results obtained using the Dirichlet boundary conditions are equivalent, in the leading order of l/L to those obtained using

4

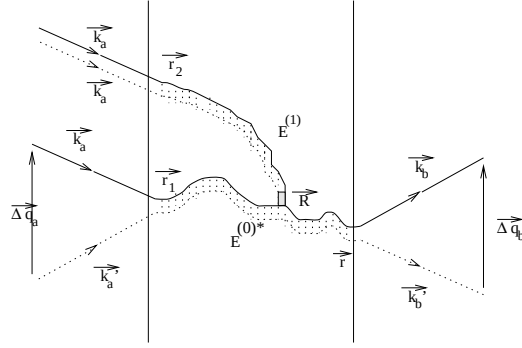


Figure 1.2 The diagram, in real space, used to calculate the first non linear correction to the correlation function. The non linear vertex is represented by a square that connects three different propagators of intensity.

the radiative boundary conditions). Upon doing the integral over z in Eq. (1.6), we obtain:

$$\langle E_{\vec{k}_a}^{(1)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a'}^{(0)*}(\vec{k}_b') \rangle = \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA'}{4k^2 S} \frac{l}{L} (-i\gamma_{NL}^2 L^2 \frac{F_T'(\Delta q_a L)}{4\Delta q_a L}) \quad (1.7)$$

where $F_T'(x)$ is the derivative of $F_T(x)$ with respect to x and γ_{NL}^{-1} is the characteristic length defined by:

$$\gamma_{NL}^{-1} = \left(\frac{27}{4\pi} \frac{\alpha A^2}{n_0} \frac{\omega}{c_0 l} \right)^{-1/2}. \quad (1.8)$$

The presence of $\delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b}$ in Eq. (1.7) means that the “memory effect” [6] still exists since the non linear vertex doesn’t break the average transverse translational invariance of the slab. By collecting the expressions (1.5) and (1.7), we obtain:

$$C^E = \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA'}{4k^2 S} \frac{l}{L} \left\{ F_T(\Delta q_a L) - i \frac{\gamma_{NL}^2 L^2}{\Delta q_a L} F_T'(\Delta q_a L) + \dots \right\} \quad (1.9)$$

Expression (1.9) results from a perturbational expansion valid when $\gamma_{NL}^2 L \ll \Delta q_a$. We recognise the first term of the Taylor serie of the function F_T if we would replace the variable $\Delta q_a L$ by $\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 - 2i\gamma_{NL}^2 L^2}$. This suggests to extrapolate Eq. (1.9) to:

$$C^E = \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA'}{4k^2 S} \frac{l}{L} F_T(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 - 2i\gamma_{NL}^2 L^2}). \quad (1.10)$$

This “ansatz” can be justified, in the case of a non linear Kerr medium with a real coefficient α [7]; γ_{NL}^{-1} is the characteristic length for phase decorrelation along the diffusive paths, due to the dependence of the index of refraction on the amplitudes A and A' of the incident beams.

We turn now to the calculation of the intensity-intensity correlation function. In the so-called $C^{(1)}$ approximation [6], this function is given by the simple formula: $C_T^{(1)}(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}_a', \vec{k}_b, \vec{k}_b') = \left| C^E(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}_a', \vec{k}_b, \vec{k}_b') \right|^2$. This approximation, valid when $kl \gg 1$, ignores possible crossings of multiple scattering paths. Here, we will also consider the weakly non linear regime where non linearities do not affect the scattering properties of the particles (e.g. the mean free path). Within this approximation we have:

$$C_T^{(1)} = \delta_{\Delta \vec{q}_a, \Delta \vec{q}_b} < I_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b) > < I_{\vec{k}_a'}(\vec{k}_b') > \left| F_T(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 - 2i\gamma_{NL}^2 L^2}) \right|^2. \quad (1.11)$$

The function $|F_T(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 - 2i\gamma_{NL}^2 L^2})|^2$ is plotted as a function of $\Delta q_a L$ and $\gamma_{NL} L$ in Figure 1.3. We note that a successful experimental observation of the

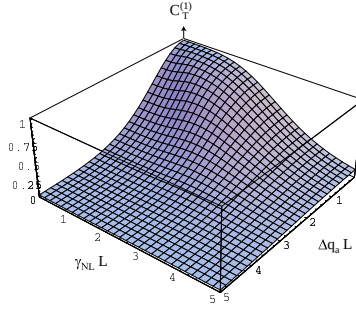


Figure 1.3 The speckle correlation function in a non linear random Kerr medium. The decrease of the correlation function is presented as a function of: angle (Δq_a) and intensity (γ_{NL}).

present non linear effect should reach values of $\gamma_{NL} L \sim 2$, which corresponds, for a slab of length $L = 10^{-2}m$ and a mean free path of $l = 10^{-3}m$, to a change of the refractive index equal to $\Delta n = n_2 A^2 \sim 2 \times 10^{-5}$. This value is not beyond the short pulse regime in usual non-linear materials.

Beyond this short range “ $C^{(1)}$ ” contribution, long range correlations [6] may be expected, particularly in confined geometries. These contributions arise from the crossing of diffusive paths in the random medium. The expression for the long range “ $C^{(2)}$ ” correlations in the frequency domain, found using a Langevin method [10], can be translated to our non linear problem by substituting $\gamma_{\Delta\omega} = \sqrt{3n_0\Delta\omega/2c_0l}$ (called α in [10]) by γ_{NL} .

Non linear correlations in reflection. Let us calculate the correlation function for the light reflected from a slab of infinite length. Taking into account the role of the time reversal symmetry, the linear field correlator is given by:

$$\begin{aligned} \langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a}^{(0)*}(\vec{k}_b') \rangle &= \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA'}{4k^2 S} \frac{1}{l^2} \int_0^\infty \int_0^\infty e^{-z'/l} \times \\ &\quad \left\{ D(z, z', \Delta\vec{q}_a) + D(z, z', \vec{k}_a + \vec{k}_b + \Delta\vec{q}_a) \right\} e^{-z/l} dz dz' \quad (1.12) \end{aligned}$$

Using the intensity propagator $\tilde{D}(z, z', \Delta\vec{q}_a)$ obtained with the radiative boundary condition: $\tilde{D}(0, z', \Delta\vec{q}_a) - z_0 \frac{d}{dz} \tilde{D}(0, z', \Delta\vec{q}_a) = 0$, where $z_0 = \tau_0 l$ is the extrapolation length and $\tau_0 = 2/3$ in the diffusion approximation (see [8]), we have:

$$\begin{aligned} \langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a}^{(0)*}(\vec{k}_b') \rangle &= \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA'}{4k^2 S} \frac{l}{2} \times \\ &\quad \left\{ F_R(\Delta\vec{q}_a) + F_R(\vec{k}_a + \vec{k}_b + \Delta\vec{q}_a) \right\}, \quad (1.13) \end{aligned}$$

where:

$$F_R(\vec{q}) \sim (1 + 2\tau) - 2(1 + \tau)^3 ql + \dots \text{ for } ql \ll 1. \quad (1.14)$$

Berkovits *et al* [9], [6] have obtained an equivalent function, for a vanishing boundary conditions ($\tau = 0$) and for a slab of finite thickness. They considered sources located at a distance l from the boundary. For an infinite slab, their formula gives $F_R(\vec{q}) \sim 1 - ql$ which differs by a factor of 2 from Eq. (1.14).

The non linear part of the field correlator is obtained in the limit $\Delta q_a l \ll 1$:

$$\begin{aligned} \langle E_{\vec{k}_a}^{(1)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a}^{(0)*}(\vec{k}_b') \rangle &= \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA'}{4k^2 S} \frac{27i\alpha A^2}{n_0^2} l^4 (1 + \tau)^3 \times \\ &\quad \left\{ \frac{1}{\Delta q_a} + \frac{1}{|\vec{k}_a + \vec{k}_b + \Delta\vec{q}_a|} \right\} + \dots \quad (1.15) \end{aligned}$$

With the same “ansatz” as was proposed in the previous section, one can collect the two expressions (1.13) and (1.15) to get the $C^{(1)}$ correlation function:

$$\begin{aligned} C_R^{(1)} &= \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \langle I_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b) \rangle \langle I_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b') \rangle \times \\ &\quad \left| F_R(\sqrt{\Delta q_a^2 - 2i(1 + \tau)\gamma_{NL}^2}) + F_R(\sqrt{|\vec{k}_a + \vec{k}_b + \Delta\vec{q}_a|^2 - 2i(1 + \tau)\gamma_{NL}^2}) \right|^2, \end{aligned}$$

with γ_{NL} given by the formula (1.8). We have represented the $C_R^{(1)}$ function in Figure 1.4. For $\gamma_{NL} = 0$, it exhibits two peaks which correspond to the two conditions $\Delta\vec{q}_a = \vec{0}$ ($\vec{k}_a = \vec{k}_a$ and $\vec{k}_b' = \vec{k}_b$) like in the correlation in transmission and for $\vec{k}_a + \vec{k}_b + \Delta\vec{q}_a = \vec{0}$ ($\vec{k}_a = -\vec{k}_b$ and $\vec{k}_b' = -\vec{k}_a$) which corresponds to the time reversed directions. As for the correlation in transmission, a non linear decorrelation occurs through the coefficient γ_{NL} .

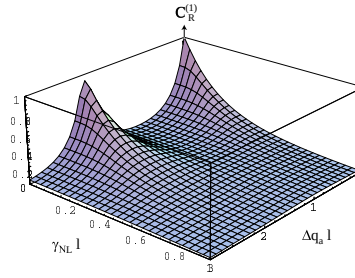


Figure 1.4 The reflection correlation function in a non linear medium as a function of two variables: the backscattering angle through Δq_a and the intensity through γ_{NL} . The two peaks occur respectively for $\Delta \vec{q}_a = \vec{0}$ and $\vec{k}_a + \vec{k}_b + \Delta \vec{q}_a = \vec{0}$.

Non linear coherent backscattering. The non linear backscattering from a random and non linear absorbing medium has been studied by Agranovitch *et al* [2] and Heiderich *et al* [3]. They used the same perturbational approach and

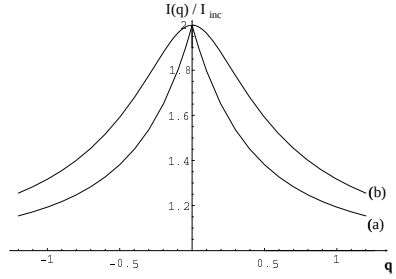


Figure 1.5 The enhanced backscattering cone for two values of the non linear absorbing coefficient. (a) No absorption: $L_a^{NL} = \infty$. (b) $L_a^{NL} = 10l$. L_a^{NL} has been defined in Eq.(1.17).

obtained an expression for the coherent backscattering cone to first order in α . Beyond this first order of perturbation, one can use the “ansatz” described previously. It gives, for $\vec{q} = \vec{k}_a + \vec{k}_b$,

$$\begin{aligned} \langle I_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b) \rangle &= \delta_{\Delta \vec{q}_a, \Delta \vec{q}_b} \frac{3A^2 l}{4k^2 S} \frac{1}{2} \left\{ F_R \left(\sqrt{\frac{1}{L_a^2} - 2(1+\tau)Re(i\gamma_{NL}^2)} \right) + \right. \\ &\quad \left. F_R \left(\sqrt{q^2 + \frac{1}{L_a^2} - 2(1+\tau)Re(i\gamma_{NL}^2)} \right) \right\}. \end{aligned} \quad (1.16)$$

where $L_a = \sqrt{ll_a/3} = l/\sqrt{12\pi k_0 l Im \chi^{(1)}}$ is the linear absorption length of the medium. The backscattered intensity depends only on the non linear coefficient

of absorption through $Re(i\gamma_{NL}^2)$ and it is instructive to define a generalized absorption length L_a^{NL} by:

$$\left(\frac{1}{L_a^{NL}}\right)^2 = \frac{12\pi k_0 l \operatorname{Im}(\chi^{(1)}) + 27(1+\tau) k_0 l \operatorname{Im}(\chi^{(3)}) A^2}{l^2}. \quad (1.17)$$

A more complete expression of the backscattering cone is now obtained as:

$$\frac{\langle I(\vec{q}) \rangle}{\langle I \rangle_{inc}} = \frac{F_R\left(\frac{1}{L_a^{NL}}\right) + F_R\left(\sqrt{q^2 + \left(\frac{1}{L_a^{NL}}\right)^2}\right)}{F_R\left(\frac{1}{L_a^{NL}}\right)}. \quad (1.18)$$

All non linear characteristics of the medium are put into absorption length L_a^{NL} . The lineshape of the backscattering cone presents an usual angular dependance, without the dip predicted by Agranovitch [2] and Heiderich [3].

Conclusion. In conclusion, we have developed a perturbational approach for calculating the correlation function of the intensity in a weakly non linear random media. The short range as well as long range correlation functions of the speckle pattern have been obtained as function of the input intensity and the angles of scattering. The result was analyzed in a simple way by introducing a new characteristic length γ_{NL} which incorporates the ingredients of the non linear susceptibilities, the multiple scattering via the light mean free path and the incident beam intensity. By using this approach, a new expression for the non linear backscattering cone has been proposed.

References

- [1] J. de Boer, A. Lagendijk, and R. Sprik, Phys. Rev. Lett. **71**, 3947 (1993).
- [2] V. Agranovitch and V. Kravtsov, Phys. Rev. **B43**, 13691 (1991).
- [3] A. Heiderich, R. Maynard, and B.A. van Tiggelen, Opt. Comm. **115**, 392 (1995).
- [4] V. Kravtsov, V. Yudson, and V. Agranovitch, Phys. Rev. **B41**, 2794 (1990).
- [5] V. Kravtsov, V. Agranovitch, and K. Grigorishin, Phys. Rev. **B44**, 4931 (1991).
- [6] R. Berkovits and S. Feng, Phys. Rep. **238**, 135 (1994).
- [7] R. Bressoux and R. Maynard, Europhys. Lett. to be published.
- [8] A. Ishimaru, *Wave Propagation and Scattering in Random Media* (Academic press Inc., San Diego, 1978).
- [9] R. Berkovits and M. Kaveh, Phys. Rev. **B41**, 2635 (1990).
- [10] R. Pnini and B. Shapiro, Phys. Rev. **B39**, 6986 (1989).

Annexe C

On the Speckle Correlation in Nonlinear Random Media.

Publié dans Europhysics Letters **50**(4): 460-465 (2000)

On the speckle correlation in nonlinear random media

R. BRESSOUX and R. MAYNARD

*Laboratoire de Physique et de Modélisation de la Matière Condensée
Université Joseph Fourier-CNRS
BP 116, 38042 Grenoble cedex 9, France*

(received 16 August 1999; accepted in final form 17 March 2000)

PACS. 42.30.Ms – Speckle and moiré patterns.

PACS. 42.25.Dd – Wave propagation in random media .

Abstract. – We calculate the intensity-intensity correlation functions for the light transmitted through a slab made of a nonlinear and random medium at the lowest order of the nonlinear interaction. We obtain the short-range correlation function as a function of the intensity and angles: it depends on a characteristic length of the nonlinear system. This characteristic length describes the loss of correlation due to the phase shift through the change of the refractive index inside the nonlinear random medium.

The nonlinear response of an optical system is crucial in the regime of high laser intensity when pulses of very short duration illuminate a sample, or for some specific medium like the liquid crystals nearly the Frederikse transition. Combination of nonlinearities and multiple scattering offers a field of research where new phenomena can be expected and observed. For instance, the speckle correlation function of the second harmonic generated by 90 ps pulses on LiNbO_3 particles in quartz window has been measured and analysed [1]; anomalous linewidth shape of the backscattering cone is predicted for a random and Kerr medium in a frame of perturbed multiple scattering by nonlinear interactions [2]. Several predictions have been obtained also in the general context of weak nonlinearities and moderated intensity beam [3, 4]. In this article, we calculate the intensity speckle correlation function at the lowest order in the nonlinear coupling for a random and Kerr medium. We will use a perturbation scheme where the nonlinear vertex produces a correction to the ladder diagrams for the average intensity from which we obtain the short-range correlation of the speckle pattern as a function of angles and intensity. The main result of this perturbation approach is the output of a characteristic length which collects all the characteristics of the nonlinearity and randomness. The output of this characteristic length from this analysis gives the possibility for a generalization to the long-range correlation function (so-called $C^{(2)}$ and $C^{(3)}$) for weak nonlinear systems.

We are interested in the intensity-intensity light correlation function of the transmitted light through a slab of scatters imbedded in a nonlinear medium (see fig. 1). Using the notation $I_{\vec{k}_a}(\vec{k}_b)$ for the specific intensity transmitted in direction $\vec{k}_b$, when the slab is illuminated by a plane wave of wave vector $\vec{k}_a$, we can define two correlation functions depending on the

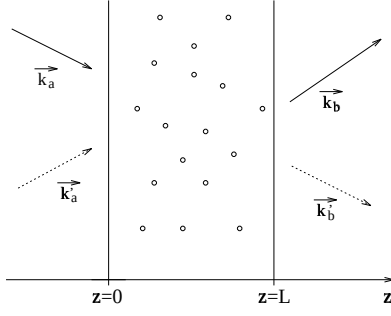


Fig. 1

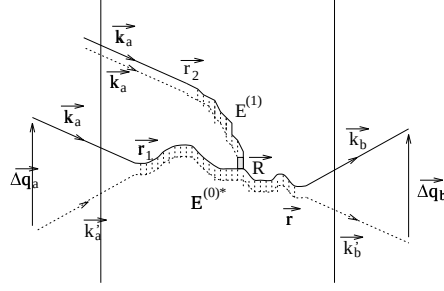


Fig. 2

Fig. 1 – The slab is illuminated by two beams of wave vectors $\vec{k}_a$ or $\vec{k}'_a$: the transmitted light is detected in either $\vec{k}_b$ or $\vec{k}'_b$ directions. The speckle correlation function is parametrized by these four wave vectors as well as the input amplitudes A and A' .

Fig. 2 – The nonlinear vertex is located at point $\vec{R}$. Three ladder diagrams converge at this point: the input intensity (modulated by Δq_a) diffusing from $\vec{r}_1$ to $\vec{R}$, the “pump” intensity diffusing from $\vec{r}_2$ to $\vec{R}$ and the transmitted averaging intensity (modulated by Δq_b) emerging in $\vec{r}$.

incident directions $\vec{k}_a, \vec{k}'_a$, the emerging directions $\vec{k}_b, \vec{k}'_b$ and the amplitude A and A' of the two incident beams:

$$C(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \langle I_{\vec{k}_a}^{\text{NL}}(\vec{k}_b) I_{\vec{k}'_a}^{\text{L}}(\vec{k}'_b) \rangle - \langle I_{\vec{k}_a}^{\text{NL}}(\vec{k}_b) \rangle \langle I_{\vec{k}'_a}^{\text{L}}(\vec{k}'_b) \rangle \quad (1)$$

and

$$C_{A=A'}(\vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \langle I_{\vec{k}_a}^{\text{NL}}(\vec{k}_b) I_{\vec{k}'_a}^{\text{L}}(\vec{k}'_b) \rangle - \langle I_{\vec{k}_a}^{\text{NL}}(\vec{k}_b) \rangle \langle I_{\vec{k}'_a}^{\text{NL}}(\vec{k}'_b) \rangle. \quad (2)$$

The superscript NL or L for the intensity indicates nonlinear and linear regime. These two correlation functions correspond to two distinct experimental situations:

- the first one, (1), describes the correlation between the transmitted intensity when the two incident beams have different amplitudes and consequently measures the correlation at fixed angle for varying intensities.
- the second one, (2), describes the evolution of the angular correlation of the speckle pattern in nonlinear regime and consequently measures the correlation for varying angles at fixed intensity.

In order to symplify the calculation, we use, as usual, the scalar approximation for the electromagnetic field. This simplification is justified in the regime of strong multiple scattering where the light is depolarized in average:

$$\vec{\nabla}^2 E(\vec{r}) + \frac{\omega^2}{c^2} \{ \epsilon(\vec{r}) + \alpha |E(\vec{r})|^2 \} E(\vec{r}) = J(\vec{r}), \quad (3)$$

where $J(\vec{r})$ is the external source of radiation, $\epsilon(\vec{r}) = \epsilon_0 + \delta\epsilon(\vec{r})$ is the homogeneous linear dielectric constant ϵ_0 and its fluctuating part $\delta\epsilon(\vec{r})$ due to disorder and $\alpha = 4\pi\chi^{(3)} = \alpha' + i\alpha''$ is the nonlinear susceptibility contributing to the dielectric constant. We suppose that there is no absorption in the linear regime and we take $\epsilon(\vec{r})$ as real. In order to solve (3), we use

a perturbative method and expand the electric field as $E(\vec{r}) = E^{(0)}(\vec{r}) + E^{(1)}(\vec{r}) + \dots$, where $E^{(0)}(\vec{r})$ and $E^{(1)}(\vec{r})$ are, respectively, solution of

$$\begin{cases} \vec{\nabla}^2 E^{(0)}(\vec{r}) + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\vec{r}) E^{(0)}(\vec{r}) = J(\vec{r}), \\ \vec{\nabla}^2 E^{(1)}(\vec{r}) + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\vec{r}) E^{(1)}(\vec{r}) = -\frac{\omega^2}{c^2} \alpha |E^{(0)}(\vec{r})|^2 E^{(0)}(\vec{r}). \end{cases} \quad (4)$$

In the second equation, the nonlinear term $-\alpha \omega^2 / c^2 |E^{(0)}(\vec{r})|^2 E^{(0)}(\vec{r})$ acts as sources inside the volume of the slab. Hence $E^{(1)}$ is at the order of α .

Let us start by the calculation of the field-field correlator:

$$C^E(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \langle E_{\vec{k}_a}^{\text{NL}}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}'_a}^{L*}(\vec{k}'_b) \rangle. \quad (5)$$

At the lowest order in α , we have

$$C^E(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}'_a}^{(0)*}(\vec{k}'_b) \rangle + \langle E_{\vec{k}_a}^{(1)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}'_a}^{(0)*}(\vec{k}'_b) \rangle. \quad (6)$$

The calculation of the linear field correlator $\langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}'_a}^{(0)*}(\vec{k}'_b) \rangle$ is well known [5, 6] and we have (see formula (20) of ref. [6]):

$$\begin{aligned} \langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}'_a}^{(0)*}(\vec{k}'_b) \rangle &= \frac{3AA'}{4k^2 S^2 l} \iint \exp[i\Delta\vec{q}_a \cdot \vec{\rho}_1] D^{(0)}(\{L-l, \vec{\rho}_2\}, \{l, \vec{\rho}_1\}) \times \\ &\times \exp[-i\Delta\vec{q}_b \cdot \vec{\rho}_2] d^2\vec{\rho}_1 d^2\vec{\rho}_2, \end{aligned} \quad (7)$$

where S is the area of the illuminated surface of the slab and l the mean free path of the light in the random medium. $D^{(0)}(\vec{r}_2, \vec{r}_1)$ is the linear propagator of the average intensity, solution of the diffusion equation for a point source situated at the point $\vec{r}_1$. Using the “null” boundary condition, its Fourier transform is given by

$$\tilde{D}^{(0)}(z_2, z_1, \vec{q}) = \frac{1}{q} \frac{\sinh\{q(L-z_>)\} \sinh\{qz_<\}}{\sinh\{qL\}}, \quad (8)$$

where $z_> = \max(z_2, z_1)$ and $z_< = \min(z_2, z_1)$. Then by integration of (7) on $\vec{\rho}_1$ and $\vec{\rho}_2$, we obtain the usual expression (see [6], formula (22)) of the linear correlator:

$$\langle E_{\vec{k}_a}^{(0)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}'_a}^{(0)*}(\vec{k}'_b) \rangle = \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA'}{4k^2 S} \frac{l}{L} F_1(\Delta q_a L), \quad (9)$$

where $F_1(x) = x / \sinh(x)$.

The expression of the nonlinear field correlator $\langle E_{\vec{k}_a}^{(1)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}'_a}^{(0)*}(\vec{k}'_b) \rangle$ is obtained by diagrammatic expansion: we have represented in fig. 2 the corresponding diagram in real space which contributes at the lowest order in $1/kl$ and its mathematical expression is

$$\begin{aligned} \langle E_{\vec{k}_a}^{(1)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}'_a}^{(0)*}(\vec{k}'_b) \rangle &= \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA'}{4k^2 S} \frac{27i\alpha A^2}{2n_0^2} \frac{kl}{l^4} \times \\ &\times \int_0^L \tilde{D}^{(0)}(L-l, z, \Delta\vec{q}_b) \tilde{D}^{(0)}(z, l, \Delta\vec{q}_a) \tilde{D}^{(0)}(z, l, \vec{0}) dz. \end{aligned} \quad (10)$$

The occurrence of the three average intensity Green functions in (10) represents, respectively, the emerging, incident and pump intensity on the nonlinear vertex located at z . Summing over z , we obtain

$$\langle E_{\vec{k}_a}^{(1)}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a}^{(0)*}(\vec{k}_b') \rangle = \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA' l}{4k^2 S L} \frac{-27i\alpha A^2 k}{4\pi n_0^2 l} L^2 \frac{F_1'(\Delta q_a L)}{4\Delta q_a L}, \quad (11)$$

where $F_1'(x)$ is the derivative of $F_1(x)$ with respect to x . We see from $\delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b}$ that the “memory effect” is still present since the nonlinear vertex does not break the transverse translation invariance of the slab in average. By collecting the expressions (9) and (11), we obtain

$$\langle E_{\vec{k}_a}^{\text{NL}}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a}^{L*}(\vec{k}_b') \rangle = \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA' l}{4k^2 S L} \left\{ F_1(\Delta q_a L) - i \frac{\gamma_{\text{NL}}^2 L^2}{\Delta q_a L} F_1'(\Delta q_a L) + \dots \right\}, \quad (12)$$

where γ_{NL} stands for the inverse characteristic length for this nonlinear regime:

$$\gamma_{\text{NL}} = \sqrt{\frac{27}{4\pi} \frac{\alpha A^2}{n_0} \frac{\omega}{c_0 l}}. \quad (13)$$

The expression (12) results from a perturbation expansion the validity of which is $\gamma_{\text{NL}}^2 L \ll \Delta q_a$. We recognise the first term of a Taylor serie and we assume a better solution of the problem by the following “ansatz”:

$$\langle E_{\vec{k}_a}^{\text{NL}}(\vec{k}_b) E_{\vec{k}_a}^{L*}(\vec{k}_b') \rangle = \delta_{\Delta\vec{q}_a, \Delta\vec{q}_b} \frac{3AA' l}{4k^2 S L} F_1 \left(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 - 2i\gamma_{\text{NL}}^2 L^2} \right). \quad (14)$$

Let us justify this “ansatz” by a simple argument. First let us recall the result of the frequency dependence of the correlation function. In the situation where two incident beams with two different frequencies ω_1 and ω_2 illuminate the slab, the frequency correlation function has the same expression as (14), but γ_{NL} is replaced by the parameter $\gamma_{\Delta\omega}$ (see [6]):

$$\gamma_{\Delta\omega} = \sqrt{\frac{3}{2} n_0 \frac{\Delta\omega}{c_0 l}}. \quad (15)$$

This parameter $\Delta\omega$ is related to the average dephasing $\Delta\Phi$, introduced by the frequency difference $\Delta\omega = \omega_1 - \omega_2$ along a typical diffusive path, by the formula $\Delta\Phi = 2\gamma_{\Delta\omega}^2 L^2$. By analogy with the previous analysis, we can build up a similar expression for γ_{NL} . Since the index of refraction of the medium depends on the incident amplitude A : $n = n_0 + n_2 A^2$, where $n_2 = 3\chi^{(3)}/2n_0 = 3\alpha/8\pi n_0$ (see [7]), a nonlinear dephasing $\Delta\Phi_{\text{NL}}$ occurs along a diffusive path of the correlator: $\Delta\Phi_{\text{NL}} = \Delta k \cdot \mathcal{L}$, where $\mathcal{L}$ is the length of the path and $\Delta k = \Delta n \omega/c_0 = n_2 A^2 \omega/c_0$ is the difference between the wave vectors. In the diffusion regime, the light performs a random walk of unit step l which leads to $\mathcal{L} = 3L^2/l$ and $\Delta\Phi_{\text{NL}} = 9\alpha A^2 \omega L^2 / 8\pi n_0 c_0 l$. Writing $\Delta\Phi_{\text{NL}} = 2\gamma_{\text{NL}}^2 L^2$, we obtain a value of the parameter γ_{NL} which differs only from (13) by a numerical factor.

The intensity-intensity correlation function is obtained at the so-called $C^{(1)}$ approximation [6] by the simple formula

$$C^{(1)}(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}_a', \vec{k}_b, \vec{k}_b') = |C^E(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}_a', \vec{k}_b, \vec{k}_b')|^2. \quad (16)$$

In this approximation, which is valid for $kl \gg 1$, the multiple scattering paths are supposed not to cross. For weak nonlinear system, the scattering properties of the particles (the mean

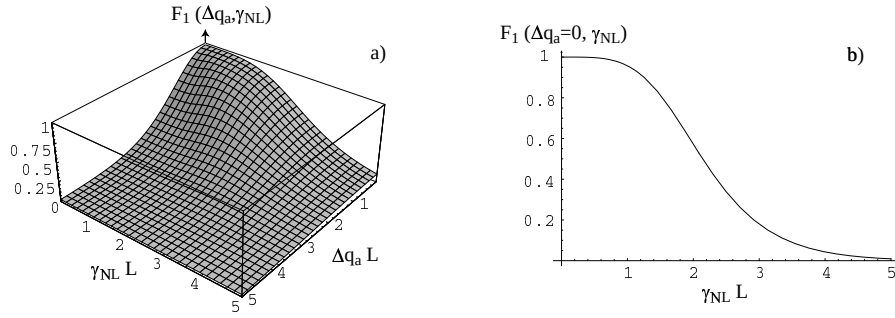


Fig. 3 – The speckle correlation function in nonlinear medium. a) The damping of the correlation function is exhibited for the two variables: angular through Δq_a and intensity through γ_{NL} . b) For $\Delta q_a = 0$, a plateau occurs in the curve for $\gamma_{NL} \leq 1$.

free path) are supposed to be not affected by the nonlinearities and in the same approximation of independent paths, we have

$$C^{(1)}(A, A', \vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \delta_{\Delta \vec{q}_a, \Delta \vec{q}_b} \langle I_{\vec{k}_a}^{NL}(\vec{k}_b) \rangle \langle I_{\vec{k}'_a}^L(\vec{k}'_b) \rangle \left| F_1 \left(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 - 2i\gamma_{NL}^2 L^2} \right) \right|^2, \quad (17)$$

where the function $\left| F_1 \left(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 - 2i\gamma_{NL}^2 L^2} \right) \right|^2$ is plotted as a function of $\Delta q_a L$ and $\gamma_{NL} L$ in fig. 3.

For $\Delta q_a = 0$, one finds

$$\left| F_1(\gamma_{NL}) \right|^2 = \frac{4\gamma_{NL}^2 L^2}{\cosh(2\gamma_{NL} L) - \cos(2\gamma_{NL} L)} \quad (18)$$

in complete analogy with the frequency correlation function [8]. It must be noticed that a sizeable experimental observation of the nonlinear effect must reach values of $\gamma_{NL} L \sim 2$, which corresponds, for a slab of length $L = 10^{-2}$ m and a mean free path of $l = 10^{-3}$ m, to a change of the refractive index equal to $\Delta n = n_2 A^2 \sim 2 \times 10^{-5}$. This value is not beyond the short pulse regime in usual nonlinear substance or in nematic phase of liquid crystals.

For the correlation $C_{A=A'}^{(1)}(\vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b)$, the calculations can be performed in the same way:

$$C_{A=A'}^{(1)}(\vec{k}_a, \vec{k}'_a, \vec{k}_b, \vec{k}'_b) = \delta_{\Delta \vec{q}_a, \Delta \vec{q}_b} \langle I_{\vec{k}_a}^{NL}(\vec{k}_b) \rangle \langle I_{\vec{k}'_a}^{NL}(\vec{k}'_b) \rangle \times \left| F_1 \left(\sqrt{\Delta q_a^2 L^2 - 2\text{Re}(i\gamma_{NL}^2) L^2} \right) \right|^2. \quad (19)$$

In this case, the variable in (19) is now real and proportional to the nonlinear coefficient of absorption α'' . A generalization of formula (19) could include the linear attenuation by adding $1/L_a^2$ into the argument of the square root.

Beyond this short-range (in space or angular variables) contribution, long-range correlations [6] are expected, particularly in confined geometry. These contributions arise from the crossings of the diffusive paths in random medium. A simple transposition of these long-range

correlation functions can be obtained by using the Langevin method described in [9] for the frequency shift and by substituting $\gamma_{\Delta\omega}$ by γ_{NL} .

As a conclusion, we have developed a perturbative approach for calculating the correlation function for the fluctuating intensity in a nonlinear random media. The short-range as well as long-range correlation functions of the speckle pattern are obtained as a function of the input intensity and angles. The result can be analyzed in a simple way by considering the occurrence of a characteristic length which incorporates the ingredients of the nonlinear susceptibilities, the multiple scattering through the light mean free path and the incident beam intensity.

REFERENCES

- [1] DE BOER J. F., LAGENDIJK A. and SPIRIK S., *Phys. Rev. Lett.*, **71** (1993) 3947.
- [2] HEIDERICH A., MAYNERD R. and VAN TIGGELEN B. A., *Opt. Commun.*, **115** (1995) 392; AGRANOVITCH V. M. and KRAVTSOV, *Phys. Rev. B*, **43** (1991) 13691.
- [3] KRAVTSOV V. E., YUDSON V. I. and AGRANOVITCH V. M., *Phys. Rev. B*, **41** (1990) 2794.
- [4] KRAVTSOV V. E., AGRANOVITCH V. M. and GRIGORISHIN K. I., *Phys. Rev. B*, **44** (1991) 4931.
- [5] FENG S., KANE C., LEE P. A. and STONE A. D., *Phys. Rev. Lett.*, **61** (1988) 834.
- [6] BERKOVITS R. and FENG S., *Phys. Rep.*, **238** (1994) 135.
- [7] NEWELL A. C. and MOLONEY J. V., *Nonlinear Optics* (Addison-Wesley Publishing Company) 1992.
- [8] VAN ALBADA M. P., DE BOER J. F. and LAGENDIJK A., *Phys. Rev. Lett.*, **64** (1990) 2787.
- [9] PNINI R. and SHAPIRO B., *Phys. Rev. B*, **39** (1989) 6986.

Bibliographie

- [1] V.M. Agranovitch and V.E. Kravtsov. Nonlinear backscattering from opaque media. *Phys. Rev. B*, **43**(16):13691, 1991.
- [2] E. Akkermans, P.E. Wolf, R. Maynerd, and G. Maret. Theoretical study of the coherent backscattering of light by disordered media. *J. Phys. France*, **49**:77, 1988.
- [3] G.B. Al'tshuler, V.S. Ermolaev, K.I. Krylov, A.A. Manenkov, and A.M. Prokhorov. Self-transparency effects in heterogeneous nonlinear scattering media and their possible use in lasers. *J. Opt. Soc. Am. B*, **3**(5):660, 1986.
- [4] P.W. Anderson. Absence of diffusion in certain random lattices. *Phys. Rev.*, **109**:1492, 1958.
- [5] R. Berkovits and S. Feng. Correlations in coherent multiple scattering. *Physics Reports*, **238**(3):135, 1994.
- [6] R. Berkovits and M. Kaveh. Time-reversed memory effects. *Phys. Rev. B*, **41**(4):2635, 1990.
- [7] S. Chandrasekar. *Radiative Transfer*. Dover Publications, Inc, New York, 1960.
- [8] J.F. de Boer. *Optical fluctuations on the transmission and reflection of mesoscopic systems*. PhD thesis, Universiteit van Amsterdam, 1995.
- [9] J.F. de Boer, A. Lagendijk, and R. Sprik. Transmission and reflection correlations of second harmonic waves in nonlinear random media. *Phys. Rev. Lett.*, **71**(24):3947, 1993.
- [10] J.F. de Boer and M.P. van Albada. Transmission and intensity correlations in wave propagation through random media. *Phys. Rev. B*, **45**(2):658, 1992.
- [11] A.B. Fowler, A. Harstein, and R.A. Webb. Conductance in restricted-dimensionality accumulation layers. *Phys. Rev. Lett.*, **48**:196, 1982.
- [12] U. Frish. *Probabilistic Methods in Applied Mathematics.*, volume 1, p. 75. Academic, New York, 1968.

- [13] A. Heiderich. *Diffusion multiple en milieu non linéaire ou anisotrope*. PhD thesis, Université Joseph Fourier - Grenoble I, 1995.
- [14] A. Heiderich, R. Maynard, and B.A. van Tiggelen. Coherent backscattering in nonlinear media. *Optics communication*, **115**:392, 1995.
- [15] V. Joudrier, P. Bourdon, F. Hache, and C. Flytzanis. Nonlinear scattering in a two-component medium: Optical limiting application. *Appl. Phys. B*, **67**:627, 1998.
- [16] V.E. Kravtsov, V.M. Agranovitch, and K.I. Grigorishin. Theory of second-harmonic generation in strongly scattering media. *Phys. Rev. B*, **44**(10):4931, 1991.
- [17] V.E. Kravtsov, V.I. Yudson, and V.M. Agranovitch. Theory of phase conjugation of light in disordered nonlinear media. *Phys. Rev. B*, **41**(5):2794, 1990.
- [18] A.G. Mal'shukov and G.D. Mahan. Nonlinear forward scattering of light in opaque media. *Phys. Rev. B*, **57**(13):7701, 1998.
- [19] A.C. Newell and Moloney J.V. *Nonlinear Optics*. Addison-Wesley Publishing Company, 1992.
- [20] T.M. Nieuwenhuizen and J.M. Luck. The skin layer of diffusive media. *Phys. Rev. E*, **48**:569, 1993.
- [21] S.M. Rinaldi, A.J. Van Wonderen, and C. Flytzanis. Theoretical study of light scattering in nonlinear random media. *Nonlinear Optics*, **5**:25, 1993.
- [22] C.P. Umbach, S. Washburn, R.B. Laibowitz, and R.A. Webb. Magnetoresistance os small, quasi-one-dimensional, normal-metal rings and lines. *Phys. Rev. B*, **30**:4048, 1984.
- [23] M.P. van Albada and A. Lagendijk. Observation of weak localization of light in a random medium. *Phys. Rev. Lett.*, **55**:2692, 1985.
- [24] M.B. van der Mark, M.P. van Albada, and A. Lagendijk. Light scattering in strongly scattering media: Multiple scattering and weak localization. *Phys. Rev. B*, **37**(11):375, 1988.
- [25] A.J. Van Wonderen. Theoretical description of light scattering by a collection of nonlinear particles. *J. Phys. I France*, **2**:545, 1992.
- [26] A.J. Van Wonderen. Diagrammatic treatment of light scattering by a collection of kerr particles. *Phys. Rev. B*, **50**:2921, 1994.
- [27] P.E. Wolf and G. Maret. Weak localization and coherent backscattering of photons in disordered media. *Phys. Rev. Lett.*, **55**:2696, 1985.
- [28] P.E. Wolf, G. Maret, E. Akkermans, and R. Maynard. Optical coherent backscattering by random media: an experimental study. *J. Phys. France*, **49**:63, 1985.