



**HAL**  
open science

# Optique non-linéaire en régimes continu et femtoseconde

Manuel Joffre

► **To cite this version:**

Manuel Joffre. Optique non-linéaire en régimes continu et femtoseconde. Master. Ce cours a été enseigné au master Concepts fondamentaux de la Physique (ENS - Ecole Polytechnique - Paris VI - Paris XI) entre 2000 et 2012, 2010, pp.229. cel-00092964v4

**HAL Id: cel-00092964**

**<https://cel.hal.science/cel-00092964v4>**

Submitted on 21 Feb 2014

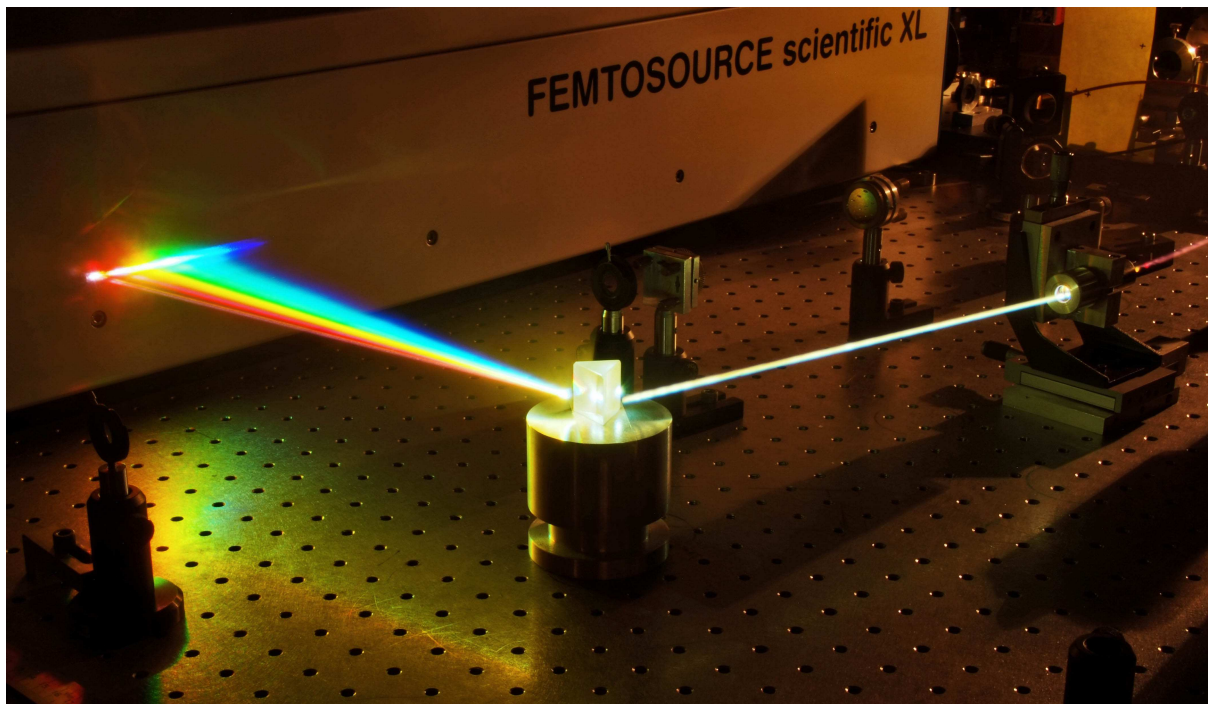
**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

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

## Master Physique et Applications - seconde année (M2)

Spécialité :

### Concepts Fondamentaux de la Physique



## Optique non-linéaire en régimes continu et femtoseconde

**Manuel Joffre**

Département de Physique de l'Ecole Polytechnique

et

Laboratoire d'Optique et Biosciences  
Ecole Polytechnique, CNRS, INSERM  
91128 Palaiseau Cedex

Février 2014

La photographie de couverture illustre le phénomène de génération de continuum spectral obtenu à l'aide d'impulsions femtosecondes produites par un oscillateur à dérive de fréquence (Femtosource scientific XL500, Femtolasers, Autriche). Photographie effectuée au Laboratoire d'Optique et Biosciences par Manuel Joffre, Guillaume Labroille et Philippe Lavalie (Ecole Polytechnique).

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Rappels d'optique linéaire</b>	<b>9</b>
1.1	Notations . . . . .	9
1.2	Réponse linéaire . . . . .	12
1.3	Equation de propagation . . . . .	14
1.4	Propagation linéaire d'une impulsion brève . . . . .	16
1.5	Approximation paraxiale . . . . .	19
1.5.1	Equation de propagation dans le cadre de l'approximation paraxiale . . . . .	19
1.5.2	Diffractions de Fresnel et de Fraunhofer . . . . .	20
1.5.3	Evolution des valeurs moyennes . . . . .	22
1.5.4	Propagation d'un faisceau gaussien . . . . .	24
1.5.5	Faisceaux gaussiens d'ordre multiple . . . . .	25
1.5.6	Propagation d'un faisceau de forme arbitraire . . . . .	26
1.6	Optique dans les milieux anisotropes . . . . .	27
<b>2</b>	<b>Modèle semi-classique de la réponse non-linéaire</b>	<b>31</b>
2.1	Développement non-linéaire de la polarisation induite . . . . .	31
2.2	Principe du calcul de la polarisation non-linéaire . . . . .	33
2.2.1	Equation de Bloch . . . . .	33
2.2.2	Développement perturbatif . . . . .	35
2.2.3	Expression de la polarisation . . . . .	36
2.3	Détermination des susceptibilités linéaire et non-linéaire . . . . .	36
2.3.1	Résolution au premier ordre . . . . .	36
2.3.2	Résolution au deuxième ordre . . . . .	39
2.3.3	Susceptibilités d'ordre supérieur . . . . .	44
2.4	Modèle à deux niveaux en continu . . . . .	45
<b>3</b>	<b>Quelques phénomènes d'optique non-linéaire</b>	<b>49</b>
3.1	Equation de propagation . . . . .	49

3.2	Optique non-linéaire du second ordre . . . . .	51
3.2.1	Importance de la symétrie . . . . .	51
3.2.2	Inventaire des effets non-linéaires du deuxième ordre . . . . .	51
3.2.3	Doublage de fréquence . . . . .	52
3.2.4	Différence de fréquences et amplification paramétrique . . . . .	55
3.3	Optique non-linéaire du troisième ordre . . . . .	59
3.3.1	Un faisceau incident - effet Kerr optique et absorption à deux photons . . . . .	59
3.3.2	Deux faisceaux incidents - effet Kerr croisé . . . . .	61
3.3.3	Trois faisceaux incidents - conjugaison de phase . . . . .	62
3.3.4	Absorption à deux photons . . . . .	63
<b>4</b>	<b>Des lasers continus aux lasers femtosecondes</b>	<b>65</b>
4.1	Cavité optique . . . . .	65
4.1.1	Modes longitudinaux . . . . .	65
4.1.2	Interprétation impulsionnelle des modes longitudinaux d'une cavité . . . . .	68
4.1.3	Modes transverses . . . . .	69
4.2	Amplification optique . . . . .	70
4.2.1	Equation de Bloch en présence de pompage . . . . .	70
4.2.2	Propagation en régime de faible signal . . . . .	72
4.2.3	Propagation en régime saturé . . . . .	72
4.3	Laser en régime stationnaire . . . . .	73
4.3.1	Condition d'oscillation . . . . .	73
4.3.2	Condition sur l'amplitude . . . . .	74
4.3.3	Condition sur la phase . . . . .	75
4.4	Génération d'impulsions femtosecondes . . . . .	76
4.4.1	Oscillateur . . . . .	76
4.4.2	Amplification . . . . .	78
4.4.3	Génération de nouvelles longueurs d'onde . . . . .	79
<b>5</b>	<b>Caractérisation spatio-temporelle</b>	<b>81</b>
5.1	Détection aux fréquences optiques . . . . .	81
5.1.1	Détection linéaire . . . . .	82
5.1.2	Détection quadratique . . . . .	83
5.2	Mesure de l'intensité . . . . .	87
5.2.1	Mesure de l'intensité spatiale . . . . .	87
5.2.2	Mesure de l'intensité spectrale . . . . .	87

5.3	Mesure de la phase spatiale . . . . .	92
5.3.1	Interférométrie . . . . .	92
5.3.2	Méthode de Shack - Hartmann . . . . .	96
5.3.3	Interférométrie à décalage . . . . .	97
5.4	Mesure de la phase spectrale . . . . .	97
5.4.1	Spécificités du domaine spectro-temporel . . . . .	97
5.4.2	Interférométrie . . . . .	99
5.4.3	Autocorrélation . . . . .	101
5.4.4	Autocorrélation résolue spectralement . . . . .	104
5.4.5	Interférométrie à décalage spectral . . . . .	104
5.5	Mesure de la phase spatio-temporelle . . . . .	105
<b>6</b>	<b>Applications des impulsions femtosecondes</b>	<b>107</b>
6.1	Spectroscopie femtoseconde . . . . .	108
6.2	Spectroscopie multidimensionnelle . . . . .	112
6.3	Contrôle cohérent . . . . .	113
6.3.1	Population dans l'état excité . . . . .	113
6.3.2	Régimes incohérent et cohérent . . . . .	115
6.3.3	Régime fort . . . . .	118
<b>A</b>	<b>Transformation de Fourier</b>	<b>119</b>
A.1	Définition . . . . .	119
A.2	Propriétés utiles . . . . .	120
A.3	Transformées de Fourier de fonctions et distributions usuelles . . . . .	120
A.4	Valeurs moyennes . . . . .	122
A.5	Séries de Fourier . . . . .	126
A.6	Transformée de Fourier discrète . . . . .	128
<b>B</b>	<b>Représentations temps-fréquence</b>	<b>133</b>
B.1	Spectrogramme et sonogramme . . . . .	133
B.2	Représentation de Wigner . . . . .	134
B.2.1	Distributions marginales . . . . .	135
B.2.2	Effet d'une modulation temporelle . . . . .	135
B.2.3	Effet d'un filtrage spectral . . . . .	135
B.2.4	Lien entre spectrogramme et fonction de Wigner . . . . .	136
B.2.5	Effet d'une phase spectrale quadratique . . . . .	136

B.3 Conclusion . . . . . 137

## Introduction

Ce document est associé à un cours d'optique non-linéaire qui a été dispensé entre 2000 et 2012 dans le cadre du master "Concepts Fondamentaux de la Physique" (Ecole Normale Supérieure - Ecole Polytechnique - Université Pierre et Marie Curie - Université Paris Sud).

L'optique non-linéaire concerne les processus apparaissant lorsqu'un milieu matériel est soumis à un faisceau lumineux suffisamment intense pour modifier la réponse du milieu au champ électromagnétique. A l'inverse de l'optique linéaire, il sera donc impossible de caractériser la réponse du milieu par des coefficients indépendants de la puissance d'excitation comme l'indice de réfraction ou le coefficient d'absorption. De nouveaux processus vont intervenir, donnant lieu à une grande richesse de phénomènes comme par exemple la génération de nouvelles fréquences. Ces processus sont dans certains cas nuisibles, par exemple lorsqu'ils perturbent la propagation de faisceaux intenses, mais le plus souvent ils sont exploités pour mettre en oeuvre des expériences ou des dispositifs originaux, en optique classique comme en optique quantique.

L'optique visible correspond à des longueurs d'onde comprises entre  $0.4\mu\text{m}$  (violet) et  $0.8\mu\text{m}$  (rouge), qui sont directement détectables par l'oeil humain. Cependant, l'optique au sens large inclut en fait l'ensemble du spectre électromagnétique, de l'infrarouge lointain aux rayons X, et il en sera de même du domaine d'application de l'optique non-linéaire. L'un des principaux intérêts de l'optique non-linéaire est précisément de fournir des mécanismes physiques permettant d'accéder à ce vaste domaine de longueurs d'onde. C'est particulièrement vrai lorsque l'on utilise un laser femtoseconde, qui permet de disposer aisément d'impulsions de forte puissance rendant les processus non-linéaires remarquablement efficaces. Pour cette raison, l'objectif de ce cours est d'aborder l'optique non-linéaire du régime continu jusqu'au régime femtoseconde.

Les propriétés quantiques du champ électromagnétique ne seront pas abordées dans ce cours. Ce champ se propagera au sein de milieux matériels supposés homogènes. Il pourra s'agir d'une vapeur atomique, d'un matériau solide comme un cristal, ou d'un matériau amorphe comme un verre, éventuellement dopé. La réponse du milieu au faisceau lumineux sera traitée dans le cadre de l'approximation semi-classique (champ classique et matière quantique).

Le cours est divisé en six parties. La première partie, intitulée *rappels d'optique linéaire*, aborde la propagation d'un faisceau lumineux dans le cadre de l'optique linéaire, c'est à dire lorsque l'intensité du faisceau peut être supposée suffisamment faible pour ne pas modifier les propriétés du matériau traversé. On soulignera l'analogie entre l'étalement d'une impulsion brève dans un milieu dispersif et la diffraction d'un faisceau lumineux qui sera traitée dans le cadre de l'approximation paraxiale. On rappellera également quelques notions d'optique dans les milieux anisotropes. La deuxième partie, intitulée *réponse non-linéaire*, introduit un modèle semi-classique de la réponse non-linéaire d'un système à plusieurs niveaux. La troisième partie aborde plus en



détails la propagation de faisceaux lumineux dans le cas de non-linéarités optiques du deuxième et du troisième ordre. La quatrième partie couvre le LASER, ce qui comprendra ici la cavité optique, le phénomène d'amplification optique, le fonctionnement d'un laser en régime stationnaire, puis la génération d'impulsions femtosecondes. La cinquième partie concerne la caractérisation d'un faisceau laser, dans le domaine spatial comme dans le domaine temporel. Enfin, la sixième partie est une brève introduction aux applications des lasers femtosecondes.

*Je tiens à remercier les nombreux collègues avec lesquels j'ai eu la chance d'interagir ces dernières années dans le domaine de l'optique non-linéaire, notamment :*

- *Claude Fabre, dont le cours dispensé jusqu'en 1999 dans cette même option du DEA de physique quantique a largement inspiré certaines parties des chapitres 3 et 4 de ce document,*
- *François Hache, qui a assuré les travaux dirigés associés à ce cours avant de reprendre la responsabilité du cours en 2013,*
- *mes collègues du Laboratoire d'Optique et Biosciences, en particulier Antigoni Alexandrou, Laura Antonucci, Emmanuel Beaurepaire, Nadia Belabas, Adeline Bonvalet, Delphine Débarre, James Fraser, Kevin Lee, Kevin Kubarych, Guillaume Labroille, Jean-Louis Martin, Patrick Nürnberger, Jennifer Ogilvie et Cathie Ventalon, dont les travaux ont de plus souvent inspiré certaines parties de ce cours,*
- *Arnold Migus, qui fut le premier à m'initier à l'optique non-linéaire en régime femtoseconde,*
- *ainsi qu'Alain Aspect, Michel Brune et Philippe Grangier, pour les discussions fort instructives que nous avons eu dans le cadre de l'enseignement d'optique quantique à l'Ecole Polytechnique.*

*Je remercie également pour leurs nombreuses questions et remarques les élèves auxquels ce cours a été dispensé ces dernières années, ainsi que les autres lecteurs qui y ont eu accès via Internet. Je remercie notamment Rémi Blandino, Cédric Roux, Daniel Suchet et Gatien Verley pour m'avoir signalé des erreurs présentes dans des versions antérieures de ce document. Toute remarque sur le présent document sera naturellement vivement appréciée.*

Une version régulièrement mise à jour de ce cours, avec illustrations en couleur, est disponible à l'adresse ci-dessous :

<http://www.enseignement.polytechnique.fr/profs/physique/Manuel.Joffre/onl/>

# Chapitre 1

## Rappels d'optique linéaire

La propagation d'un faisceau lumineux dans un milieu matériel fait intervenir deux problèmes :

1. D'une part la réponse du milieu à l'onde. Dans le cas d'un matériau diélectrique, les charges liées du milieu se mettent en mouvement sous l'action du champ électrique oscillant associé au faisceau lumineux. Il s'agit donc d'un problème de mécanique, qui doit le plus souvent être traité dans le cadre de la mécanique quantique.
2. D'autre part, l'oscillation de ces charges rayonne un champ électromagnétique qui vient s'ajouter à l'onde incidente. C'est donc un problème de propagation d'onde électromagnétique, que l'on doit traiter à l'aide des équations de Maxwell.

Il faut en fait résoudre ces deux problèmes simultanément, le champ rayonné induisant lui-même une polarisation du milieu diélectrique, qui rayonne un nouveau champ et ainsi de suite. On aboutit alors à un système d'équations couplées.

Le domaine de l'optique linéaire, qui fait l'objet de ce chapitre, correspond au cas où la réponse du milieu peut être considérée comme linéaire, ce qui simplifie considérablement la résolution du problème. En particulier, on pourra s'intéresser dans un premier temps au cas d'ondes planes monochromatiques, puis obtenir la solution générale à l'aide du principe de superposition linéaire.

### 1.1 Notations

Une onde électromagnétique se propageant dans un milieu matériel est caractérisée par un champ électrique  $\vec{E}$ , un vecteur déplacement électrique  $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$  (où  $\vec{P}$  est la polarisation induite dans le matériau), un champ magnétique  $\vec{H}$  et une induction magnétique  $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$  (pour un matériau non magnétique)[1]. La densité de puissance transportée par l'onde s'exprime à l'aide du vecteur de Poynting,  $\vec{\Pi} = \vec{E} \times \vec{H}$ .

Considérons dans un premier temps une composante cartésienne du champ électrique en un point donné, grandeur réelle notée  $E(t)$ . A l'aide d'une transformation de Fourier (voir appendice A), on pourra exprimer ce champ comme une superposition d'ondes monochromatiques

$$E(t) = \mathcal{F}[E(\omega)](t) = \int E(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi} \quad (1.1)$$

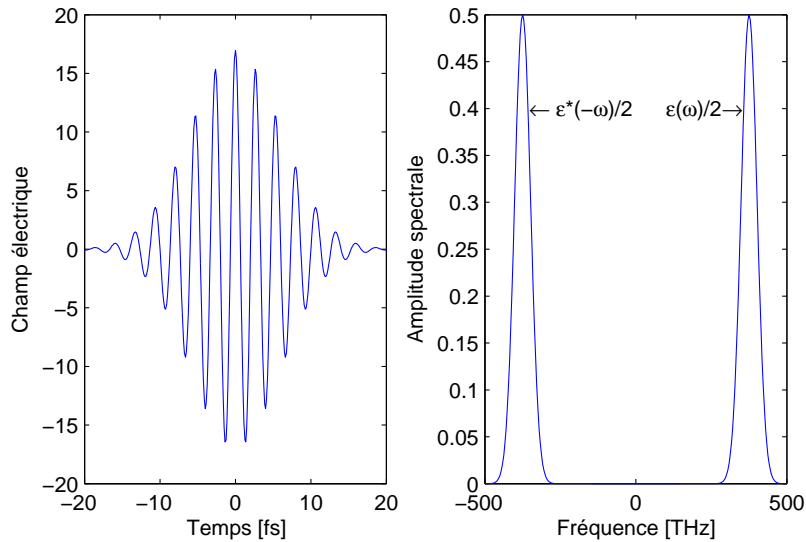
avec

$$E(\omega) = \mathcal{F}^{-1}[E(t)](\omega) = \int E(t) \exp(i\omega t) dt \quad (1.2)$$

$E(\omega)$  est une grandeur complexe. On introduira son module, ou amplitude spectrale,  $|E(\omega)|$ , et la phase spectrale,  $\varphi(\omega)$  :

$$E(\omega) = |E(\omega)| \exp(i\varphi(\omega)) \quad (1.3)$$

La Fig. 1.1 représente l'exemple d'un champ oscillant d'enveloppe gaussienne.



**Figure 1.1:** Profil temporel et spectral d'une impulsion gaussienne. La fréquence centrale est de 375 THz, ce qui correspond à une longueur d'onde de 800 nm. La largeur à mi-hauteur de l'intensité temporelle est de 10 fs.

Le champ  $E(t)$  étant une grandeur réelle, on déduit de l'éq. A.4 la relation  $E(\omega)^* = E(-\omega)$ . Il sera donc suffisant de connaître le champ pour des valeurs positives de la fréquence, puisque les valeurs du champ aux fréquences négative pourront se déduire par simple conjugaison complexe. Ceci nous conduit à introduire le champ complexe

$$\mathcal{E}(\omega) = 2 \Theta(\omega) E(\omega) \quad (1.4)$$

où  $\Theta(\omega)$  est la fonction de Heaviside. Le champ complexe ne comporte donc que des composantes spectrales de fréquences positives.

Inversement, le champ électrique se déduit du champ complexe par la relation

$$E(\omega) = \frac{1}{2} (\mathcal{E}(\omega) + \mathcal{E}^*(-\omega)) \quad (1.5)$$

Par transformée de Fourier, on en déduit

$$E(t) = \frac{1}{2} (\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}^*(t)) = \text{Re}\mathcal{E}(t) \quad (1.6)$$

où l'on retrouve la relation habituelle entre champ complexe et champ réel. Le champ complexe  $\mathcal{E}(t)$  est encore appelé *représentation analytique* du champ réel  $E(t)$ . Il se déduit du champ réel à l'aide de la transformation suivante

$$E(t) \xrightarrow{\mathcal{F}^{-1}} E(\omega) \xrightarrow{\times 2\Theta(\omega)} \mathcal{E}(\omega) \xrightarrow{\mathcal{F}} \mathcal{E}(t) \quad (1.7)$$

que l'on peut encore exprimer sous la forme

$$\mathcal{E}(t) = 2\mathcal{F} \left[ \Theta(\omega) \mathcal{F}^{-1}[E(t)](\omega) \right] \quad (1.8)$$

soit

$$\mathcal{E}(t) = 2 \int e^{-i\omega t} \frac{d\omega}{2\pi} \Theta(\omega) \int E(t') e^{i\omega t'} dt' \quad (1.9)$$

Le champ complexe  $\mathcal{E}(t)$  nous permet d'introduire l'amplitude temporelle  $|\mathcal{E}(t)|$  et la phase temporelle  $\phi(t)$  :

$$\mathcal{E}(t) = |\mathcal{E}(t)| \exp(i\phi(t)) \quad (1.10)$$

Remarquons que la transformation permettant d'exprimer le champ complexe à partir du champ réel (eq. 1.7) est liée à la transformée de Hilbert  $\mathcal{H}$ , définie par

$$[\mathcal{H}E](\omega) = -i \text{sgn}(\omega) E(\omega) \quad (1.11)$$

où  $\text{sgn}(\omega) = 2\Theta(\omega) - 1$  est la fonction signe. On a alors

$$\mathcal{E}(t) = E(t) + i\mathcal{H}E(t) \quad (1.12)$$

Dans le cas général, le champ électrique  $\vec{E}(\vec{r}, t)$  est une grandeur vectorielle dépendant de l'espace et du temps. On écrira alors

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \int \vec{E}(\vec{r}, \omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi} \quad (1.13)$$

Il sera également possible de décomposer le champ électrique en ondes planes en faisant une transformée de Fourier par rapport aux variables spatiales. On obtient ainsi

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \int \vec{E}(\vec{k}, \omega) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r} - i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi} \frac{d^3k}{(2\pi)^3} \quad (1.14)$$

## 1.2 Réponse linéaire

Nous supposons ici que la polarisation induite dépend de façon linéaire du champ électrique appliqué. De plus la réponse est supposée locale, ce qui signifie que la polarisation en un point  $\vec{r}$  ne dépend que de la valeur du champ en ce même point  $\vec{r}$ . Cependant, la réponse n'est *a priori* pas instantanée, ce qui implique que  $\vec{P}(\vec{r}, t)$  dépend de la fonction du temps  $\{\vec{E}(\vec{r}, t)\}$ . La réponse étant linéaire, cela signifie que  $\vec{P}(\vec{r}, t)$  est une combinaison linéaire des  $\{\vec{E}(\vec{r}, t')\}$ , pour toutes les valeurs de  $t'$  :

$$P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} R_{ij}(t, t') E_j(\vec{r}, t') dt' \quad (1.15)$$

où  $R_{ij}(t, t')$  est, par définition, la fonction réponse. Par convention, on sommerá sur les indices répétés lorsqu'ils se réfèrent à des coordonnées spatiales. Dans l'équation ci-dessus, la somme sur l'indice  $j$  est donc sous-entendue. L'éq. 1.15 est l'expression la plus générale possible de la polarisation avec les seules hypothèses de *linéarité*, de *localité* et d'*homogénéité*.

Nous pouvons de plus effectuer l'hypothèse d'*invariance par translation dans le temps*. Cela signifie que la réponse du matériau à un champ électrique est la même à un instant donné ou après un intervalle de temps  $T$ . En d'autres termes, quel que soit  $T$ , si le champ  $\vec{E}(\vec{r}, t)$  induit la polarisation  $\vec{P}(\vec{r}, t)$ , alors le champ  $\vec{E}(\vec{r}, t - T)$  induira la polarisation  $\vec{P}(\vec{r}, t - T)$ , *i.e.* la même polarisation mais décalée dans le temps d'un intervalle  $T$ .

$$P_i(\vec{r}, t - T) = \epsilon_0 \int R_{ij}(t, t') E_j(\vec{r}, t' - T) dt' \quad (1.16)$$

soit

$$P_i(\vec{r}, t - T) = \epsilon_0 \int R_{ij}(t, t' + T) E_j(\vec{r}, t') dt' \quad (1.17)$$

On peut naturellement remplacer  $t$  par  $t + T$  dans l'éq. 1.17, ce qui donne

$$P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int R_{ij}(t + T, t' + T) E_j(\vec{r}, t') dt' \quad (1.18)$$

Les équations 1.15 et 1.18 étant vérifiées quelle que soit la fonction du temps  $E_j(\vec{r}, t')$ , on en déduit

immédiatement la relation  $R_{ij}(t, t') = R_{ij}(t+T, t'+T)$ . Enfin, en choisissant  $T = -t'$ , on en déduit

$$R_{ij}(t, t') = R_{ij}(t - t', 0) = R_{ij}(t - t')$$

La fonction réponse ne dépend donc que de l'intervalle de temps entre l'excitation ( $t'$ ) et la mesure ( $t$ ). La polarisation s'exprime alors comme un produit de convolution entre la fonction réponse et le champ électrique :

$$P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int R_{ij}(t - t') E_j(t') dt' = \epsilon_0 R_{ij}(t) \otimes E_j(t) \quad (1.19)$$

Nous terminons en invoquant le *principe de causalité* : celui-ci implique que la polarisation à un instant  $t$  ne peut dépendre que du champ électrique aux instants précédents. La fonction réponse  $R_{ij}(t)$  est donc strictement nulle quand son argument est négatif. L'éq. 1.19 devient donc

$$P_i(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int_0^{+\infty} R_{ij}(\tau) E_j(t - \tau) d\tau \quad (1.20)$$

L'expression de la polarisation faisant intervenir un produit de convolution (eq. 1.19), il est naturel de passer dans l'espace des fréquences. Introduisons la grandeur  $\chi_{ij}(\omega)$ , transformée de Fourier inverse de la fonction réponse  $R_{ij}(\tau)$  :

$$R_{ij}(\tau) = \int \chi_{ij}(\omega) e^{-i\omega\tau} \frac{d\omega}{2\pi} \quad (1.21)$$

D'après l'éq. A.9, l'éq. 1.19 devient

$$P_i(\vec{r}, \omega) = \epsilon_0 \chi_{ij}(\omega) E_j(\vec{r}, \omega) \quad (1.22)$$

Par définition,  $\chi_{ij}(\omega)$  est appelé *susceptibilité linéaire* du matériau. On démontre qu'il s'agit là d'un tenseur symétrique. Remarquons enfin que la fonction réponse  $R_{ij}(t)$  étant nécessairement une grandeur réelle (puisque la polarisation induite est elle-même réelle), on peut à l'aide de l'éq. A.4 en déduire la relation

$$\chi_{ij}(-\omega) = \chi_{ij}^*(\omega) \quad (1.23)$$

### 1.3 Equation de propagation

Rappelons l'expression des équations de Maxwell pour un champ électromagnétique régnant au sein d'un milieu matériel :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0 \quad (1.24)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (1.25)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad (1.26)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (1.27)$$

En prenant le rotationnel de l'éq. 1.25 on obtient, à l'aide de l'éq. 1.27, l'équation de propagation des ondes électromagnétiques :

$$\Delta \vec{E} - \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (1.28)$$

Cette équation aux dérivées partielles s'exprime simplement si l'on effectue une transformée de Fourier par rapport aux variables spatiales et temporelle :

$$-k^2 \vec{E}(\vec{k}, \omega) + \vec{k} \cdot (\vec{k} \cdot \vec{E}(\vec{k}, \omega)) + \frac{\omega^2}{c^2} \vec{E}(\vec{k}, \omega) = -\mu_0 \omega^2 \vec{P}(\vec{k}, \omega) \quad (1.29)$$

Si l'on exprime dans l'équation ci-dessus la polarisation à partir du champ électrique à l'aide de l'éq. 2.34, on obtient :

$$\left( -k^2 \delta_{ij} + k_i k_j + \frac{\omega^2}{c^2} (\delta_{ij} + \chi_{ij}(\omega)) \right) E_j(\vec{k}, \omega) = 0 \quad (1.30)$$

Une propriété remarquable de l'équation ci-dessus est le découplage total entre les différentes fréquences constituant le champ électrique, qui est une conséquence directe des hypothèses de linéarité et d'invariance par translation dans le temps. Le problème s'en trouvera grandement simplifié puisqu'il sera possible de ne considérer qu'une seule composante spectrale  $E_j(\vec{k}, \omega)$ . On pourra toujours obtenir la solution générale en appliquant le principe de superposition linéaire à la somme des différentes composantes spectrales du champ. En conclusion, si l'on injecte un faisceau de longueur d'onde donnée, on ne pourra collecter en optique linéaire qu'un faisceau de même longueur d'onde.

Ce dernier résultat peut paraître surprenant lorsqu'on le confronte à des processus comme la fluorescence ou l'effet Raman, pour lesquels il est bien connu qu'une nouvelle longueur d'onde est émise malgré une relation parfaitement linéaire entre les puissances émise et incidente. La raison de cette contradiction apparente provient du fait que l'on a considéré ici une relation

parfaitement déterministe entre le champ incident et la polarisation induite (eq. 1.15). Ce n'est pas le cas de la fluorescence ou de l'émission Raman spontanée qui sont associées à des champs incohérents, nuls en valeur moyenne. Il faut donc garder à l'esprit que ce cours se limite aux processus cohérents. En outre, des effets spontanés comme la fluorescence et l'émission Raman doivent en toute rigueur être traités dans le cadre de l'optique quantique et non de l'approximation semi-classique qui sera utilisée dans ce cours.

Les milieux anisotropes faisant l'objet de la section 1.6, nous considérons pour l'instant le cas plus simple des milieux isotropes. Le tenseur susceptibilité est alors diagonal ( $\chi_{ij}(\omega) = \chi(\omega)\delta_{ij}$ ) et l'éq. 1.24 devient

$$(1 + \chi(\omega))k_i E_i(\vec{k}, \omega) = 0$$

d'où l'on déduit que le champ électrique est obligatoirement transverse :  $\vec{k} \cdot \vec{E}(\vec{k}, \omega) = 0$  ou encore  $\vec{\nabla} \cdot \vec{E}(\vec{r}, \omega) = 0$ . L'éq. 1.30 peut alors s'écrire

$$\left(-k^2 + k(\omega)^2\right) E_i(\vec{k}, \omega) = 0 \quad (1.31)$$

où la grandeur  $k(\omega)$  est définie par la relation

$$k(\omega)^2 = \frac{\omega^2}{c^2} (1 + \chi(\omega)) \quad (1.32)$$

L'éq. 1.31 n'admet de solution non triviale que lorsque le vecteur d'onde obéit à la relation  $\|\vec{k}\|^2 = k(\omega)^2$ . Remarquons que l'équation de propagation peut également s'écrire dans l'espace direct

$$\left(\Delta + k(\omega)^2\right) E_i(\vec{r}, \omega) = 0 \quad (1.33)$$

et prend donc la même forme que l'équation de propagation dans le vide à condition de remplacer le vecteur d'onde dans le vide  $\omega/c$  par sa valeur dans le milieu  $k(\omega)$  donnée par l'éq. 1.32.

La solution générale des équations de Maxwell est finalement donnée par l'éq. 1.14, la fonction  $\vec{E}(\vec{k}, \omega)$  ne prenant de valeur non nulle que lorsque  $k = k(\omega)$ , avec naturellement la condition de champ transverse, soit  $\vec{k} \cdot \vec{E}(\vec{k}, \omega) = 0$ . Nous allons maintenant discuter plus en détail deux cas particuliers de cette solution générale : le domaine purement temporel (section 1.4), correspondant à une onde plane superposition d'une distribution de composantes spectrales, puis le domaine purement spatial, correspondant à un faisceau lumineux monochromatique mais dont le profil spatial résulte de la superposition d'ondes planes, à la manière d'un paquet d'ondes en mécanique quantique. Ces deux situations physiques particulières correspondent aux cas où la fonction  $\vec{E}(\vec{k}, \omega)$  est une distribution de Dirac respectivement dans l'espace des vecteurs d'ondes et dans l'espace des fréquences.



## 1.4 Propagation linéaire d'une impulsion brève

Nous considérons dans cette section le cas d'une onde plane se propageant selon l'axe  $z$  dans le sens des  $z$  positif. Le champ électrique ne dépendra donc que des variables  $z$  et  $t$ . Il sera en outre supposé polarisé linéairement et pourra donc être caractérisé par la grandeur scalaire  $E(z, t)$ . Il s'agira par exemple d'une impulsion courte comme celle représentée Fig. 1.1, l'objet de cette section étant de déterminer comment le profil temporel de l'impulsion se déforme en fonction de  $z$ .

La solution de l'éq. 1.33 se propageant dans le sens des  $z$  positif s'écrit alors, en utilisant la notation complexe :

$$\mathcal{E}(z, \omega) = \mathcal{E}(0, \omega) \exp(ik(\omega)z) \quad (1.34)$$

En général la susceptibilité  $\chi(\omega)$  est une grandeur complexe et il en va donc de même du vecteur d'onde que l'on écrira  $k(\omega) = \kappa'(\omega) + i\kappa''(\omega)$ . Le champ électrique s'écrit alors

$$\mathcal{E}(z, \omega) = \mathcal{E}(0, \omega) \exp(i\kappa'(\omega)z) \exp(-\kappa''(\omega)z) \quad (1.35)$$

L'intensité spectrale  $|\mathcal{E}(z, \omega)|^2$  a donc une variation en  $\exp(-\alpha(\omega)z)$  où  $\alpha(\omega)$  est le coefficient d'absorption défini par

$$\alpha(\omega) = 2\kappa''(\omega) = 2\text{Im}k(\omega) \quad (1.36)$$

Par ailleurs, dans le cas où la susceptibilité  $\chi(\omega)$  est très inférieure à 1, on peut écrire

$$k(\omega) = \frac{\omega}{c} (1 + \chi(\omega))^{1/2} \approx \frac{\omega}{c} \left(1 + \frac{1}{2}\chi(\omega)\right) \quad (1.37)$$

ce qui nous permet d'exprimer le coefficient d'absorption à partir de la susceptibilité

$$\alpha(\omega) = \frac{\omega}{c} \text{Im}\chi(\omega) \quad (1.38)$$

De même, l'indice de réfraction s'écrit

$$n(\omega) \approx \left(1 + \frac{1}{2}\text{Re}\chi(\omega)\right) \quad (1.39)$$

Considérons maintenant le cas d'une impulsion lumineuse se propageant dans un milieu transparent ( $\alpha(\omega) = 0$ ) mais dispersif, ce qui signifie que l'indice de réfraction dépend de la fréquence (voir Fig. 1.2). Les propriétés de l'impulsion seront définies à l'aide de valeurs moyennes, comme introduit à la section A.4, en utilisant des distributions de probabilités normalisées proportionnelles aux intensités spectrale ( $|\mathcal{E}(z, \omega)|^2$ ) et temporelle ( $|\mathcal{E}(z, t)|^2$ ). En l'absence d'absorption,  $k(\omega)$  est une grandeur réelle et l'éq. 1.34 indique que l'intensité spectrale ne dépend pas de  $z$ . Les grandeurs

dépendant de la fréquence, comme la fréquence centrale  $\langle \omega \rangle = \omega_0$  et la largeur spectrale  $\Delta\omega = \sqrt{\langle (\omega - \omega_0)^2 \rangle}$  seront donc indépendante de  $z$ . Considérons la phase spectrale du champ électrique

$$\varphi(z, \omega) = \varphi(0, \omega) + k(\omega)z. \quad (1.40)$$

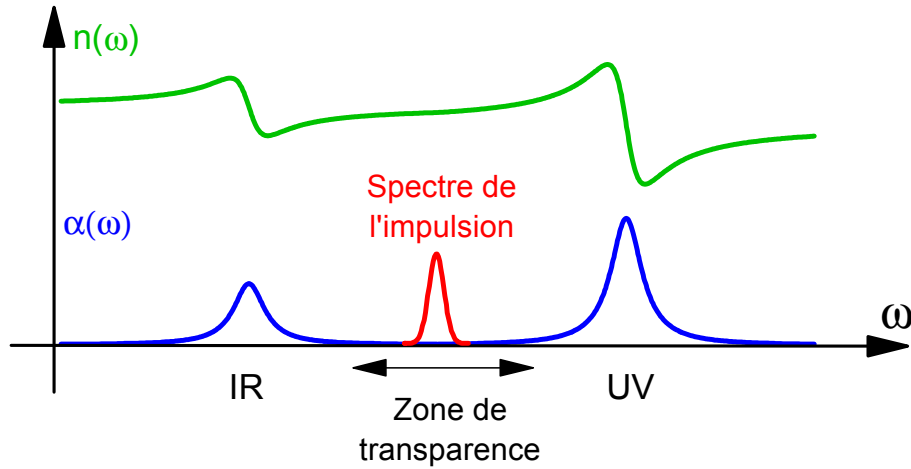
Comme démontré à la section A.4, cette phase spectrale gouverne les valeurs moyennes des grandeurs dépendant du temps. Ainsi, d'après les éq. A.28 et A.29, l'instant moyen d'arrivée de l'impulsion s'écrit  $\langle t \rangle = \langle \tau_g(z, \omega) \rangle$  où  $\tau_g(z, \omega)$  est le retard de groupe défini par

$$\tau_g(z, \omega) = \frac{\partial \varphi(z, \omega)}{\partial \omega} = \tau_g(0, \omega) + \frac{dk}{d\omega}z \quad (1.41)$$

On en déduit la relation

$$\langle t \rangle_z = \langle t \rangle_{z=0} + \left\langle \frac{dk}{d\omega} \right\rangle z \quad (1.42)$$

où l'on retrouve l'expression habituelle de la vitesse de groupe  $1/v_g = dk/d\omega$ .



**Figure 1.2:** Tout milieu matériel comporte des pics d'absorption dans l'infrarouge et dans l'ultraviolet, résultant respectivement de transitions vibrationnelles et électroniques. En conséquence, l'indice de réfraction croît avec la fréquence dans la zone de transparence (dispersion normale). Il en résulte une variation non linéaire de  $k(\omega)$  avec la fréquence. En pratique, la dérivée seconde de  $k(\omega)$  est positive dans le visible en raison de la proximité des résonances ultraviolettes (dispersion positive).

Si l'on excepte le cas d'une propagation dans le vide, la grandeur  $k'(\omega) = dk/d\omega$  (l'inverse de la vitesse de groupe) dépendra de la fréquence, phénomène connu sous le nom de dispersion de vitesse de groupe. Ceci produira un étalement de l'impulsion que l'on peut évaluer en déterminant la variance du retard de groupe,

$$\Delta\tau_g(z)^2 = \langle (\tau_g(z, \omega) - \langle \tau_g(z, \omega) \rangle)^2 \rangle = \langle (\tau_g(0, \omega) - \langle \tau_g(0, \omega) \rangle + (k'(\omega) - \langle k'(\omega) \rangle)z)^2 \rangle \quad (1.43)$$

La variance du retard de groupe est donc un polynôme du second ordre en  $z$ , le coefficient de  $z^2$  étant simplement  $\Delta k'^2$ . D'après l'éq. A.31, la variance  $\Delta t(z)^2 = \Delta t_{\varphi=0}^2 + \Delta \tau_g^2$  est donc également un polynôme du second ordre en  $z$ . En choisissant bien l'origine de l'axe des  $z$ , on peut supposer que le sommet de cette parabole est atteint en  $z = 0$ , ce qui nous permet finalement d'écrire l'écart quadratique moyen de l'impulsion :

$$\Delta t(z) = \sqrt{\Delta t(0)^2 + \Delta k'^2 z^2}. \quad (1.44)$$

On trouve donc une variation hyperbolique de la durée de l'impulsion lors de la propagation. L'étalement d'une impulsion brève est un phénomène parfaitement analogue à l'étalement d'un paquet d'ondes en mécanique quantique, ou à la diffraction d'un faisceau lumineux (voir Fig. 1.3).

Afin de mieux comprendre l'origine physique de l'étalement de l'impulsion, considérons la limite asymptotique de  $\Delta t(z)$  lorsque  $z$  tend vers  $+\infty$ . On voit que dans ce cas,  $\Delta t(z) \sim k_0'' \Delta \omega z = \Delta k' z$ . Or,  $\Delta k'$  est par définition la variation de  $1/v_g$  sur la largeur spectrale de l'impulsion. On peut donc en déduire que  $\Delta t(z) \sim \Delta(z/v_g)$ . La durée de l'impulsion lorsque  $z \rightarrow +\infty$  correspond donc simplement à la variation du retard de groupe sur la largeur spectrale de l'impulsion. C'est le phénomène de dispersion de vitesse de groupe : les différentes composantes spectrales de l'impulsion ne se propagent pas à la même vitesse dans le matériau. Les composantes de plus petite fréquence allant plus vite que celles de plus grande fréquence, elles se retrouvent sur le front avant de l'impulsion. On dit que l'impulsion étalée présente un glissement de fréquence, ou *chirp*, mot anglais signifiant gazouillis pour exprimer le fait que la fréquence varie avec le temps.

Dans certains cas, on peut se contenter d'effectuer un développement limité au second ordre du vecteur d'onde  $k(\omega)$ . Cette approximation sera valable si la largeur spectrale de l'impulsion reste modérée. En développant le vecteur d'onde autour de la fréquence centrale  $\omega_0$  de l'impulsion, on obtient

$$k(\omega) = k_0 + (\omega - \omega_0)k_0' + \frac{1}{2}(\omega - \omega_0)^2 k_0'' \quad (1.45)$$

où  $k_0'$  est l'inverse de la vitesse de groupe à la fréquence centrale de l'impulsion et  $k_0''$  caractérise la dispersion de vitesse de groupe. On en déduit

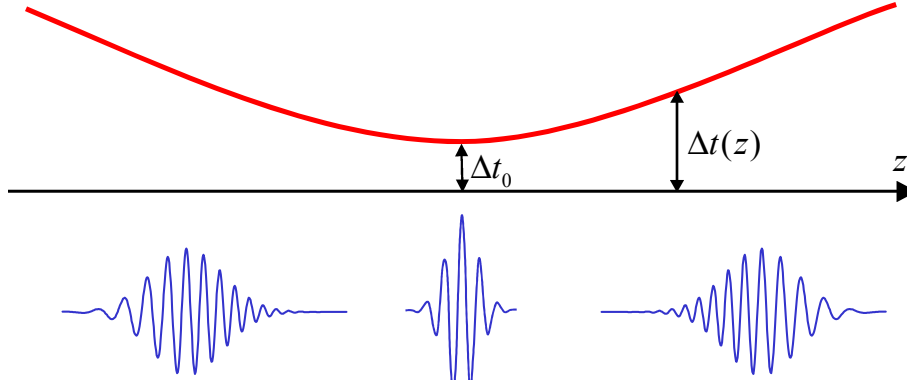
$$k'(\omega) = k_0' + (\omega - \omega_0)k_0'' \quad (1.46)$$

La variance de  $k'(\omega)$  s'écrit alors

$$\Delta k'^2 = \langle (k'(\omega) - k_0')^2 \rangle = \langle (\omega - \omega_0)^2 k_0''^2 \rangle = \Delta \omega^2 k_0''^2 \quad (1.47)$$

La durée de l'impulsion s'écrit alors

$$\Delta t(z) = \sqrt{\Delta t(0)^2 + k_0''^2 \Delta \omega^2 z^2}. \quad (1.48)$$



**Figure 1.3:** Représentation de la durée d'une impulsion brève au cours de sa propagation, montrant une variation hyperbolique, en parfaite analogie avec le diamètre d'un faisceau lumineux. La dispersion joue un rôle analogue à la diffraction.

## 1.5 Approximation paraxiale

On considère dans cette section la propagation d'un faisceau monochromatique de fréquence  $\omega$  dans un milieu homogène et isotrope. La fréquence  $\omega$  sera sous-entendue et le vecteur d'onde  $k(\omega)$  sera simplement noté  $k$ . Dans le cas d'un champ non monochromatique, on pourrait toujours retrouver la solution générale de l'équation de propagation par superposition linéaire (eq. 1.13).

### 1.5.1 Equation de propagation dans le cadre de l'approximation paraxiale

En pratique, on n'a jamais une onde plane mais un faisceau lumineux d'extension transverse finie. L'onde plane est l'équivalent de l'onde de de Broglie en mécanique quantique, qui n'a pas de réalité physique, tandis qu'un véritable faisceau lumineux est l'équivalent d'un paquet d'ondes. Néanmoins, un faisceau lumineux est souvent assez proche d'une onde plane, et il sera donc intéressant d'écrire le champ électrique associé au faisceau sous la forme du produit d'une enveloppe  $u(x, y, z)$  et d'une porteuse  $\exp(ikz)$ .

$$\mathcal{E}(x, y, z) = A u(x, y, z) \exp(ikz) \quad (1.49)$$

La constante  $A$  est choisie de sorte que la fonction  $u(x, y, 0)$  soit normalisée

$$\int |u(x, y, 0)|^2 dx dy = 1 \quad (1.50)$$

L'équation de propagation (eq. 1.33) s'écrit alors

$$\Delta(u(x, y, z) \exp(ikz)) + k^2 u(x, y, z) \exp(ikz) = 0 \quad (1.51)$$

soit

$$\left( \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} + 2ik \frac{\partial u}{\partial z} - k^2 u + k^2 u \right) \exp(ikz) = 0 \quad (1.52)$$

L'approximation paraxiale consiste à supposer que l'enveloppe  $u(x, y, z)$  varie selon  $z$  lentement à l'échelle de la longueur d'onde. Cela nous permet de négliger la dérivée seconde de l'enveloppe dans l'équation ci-dessus ( $\partial^2 u / \partial z^2 \ll k \partial u / \partial z$ ). On obtient alors l'équation

$$2ik \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} = 0 \quad (1.53)$$

Cette équation est en tout point analogue à l'équation de Schrödinger d'un état  $|\psi(t)\rangle$  évoluant dans  $\mathcal{L}^2(\mathbb{R}^2)$  dans le cas d'un potentiel nul:

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} + \frac{\hbar^2}{2m} \left( \frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial y^2} \right) = 0 \quad (1.54)$$

La variable  $z$  dans l'équation paraxiale est l'équivalent du temps  $t$  dans l'équation de Schrödinger. De même que l'évolution libre d'un paquet d'ondes donne lieu à un étalement en mécanique quantique, le profil transverse du faisceau lumineux va s'étaler lorsque  $z$  augmente.

Remarquons que l'éq. 1.53 s'écrit simplement dans l'espace des vecteurs d'ondes transverses

$$2ik \frac{\partial u(k_x, k_y, z)}{\partial z} - (k_x^2 + k_y^2) u(k_x, k_y, z) = 0 \quad (1.55)$$

soit

$$u(k_x, k_y, z) = u(k_x, k_y, 0) \exp\left(-i \frac{k_x^2 + k_y^2}{2k} z\right) \quad (1.56)$$

### 1.5.2 Diffractions de Fresnel et de Fraunhofer

L'éq. 1.56 montre que la propagation d'un faisceau lumineux se ramène à un simple produit dans l'espace de Fourier, et donc à un produit de convolution dans l'espace direct. A l'aide de l'éq. A.20, on peut montrer que la transformée de Fourier inverse de la fonction  $\exp\left(-i \frac{k_x^2 + k_y^2}{2k} z\right)$  s'écrit  $(-ik/2\pi z) \exp(ik(x^2 + y^2)/(2z))$ . La transformée de Fourier inverse de l'éq. 1.56 s'écrit donc

$$u(x, y, z) = \frac{-ik}{2\pi z} \exp\left(\frac{ik}{2z}(x^2 + y^2)\right) \otimes u(x, y, 0) \quad (1.57)$$

soit

$$u(x, y, z) = \frac{-i}{\lambda z} \iint \exp\left(\frac{ik}{2z}((x-x')^2 + (y-y')^2)\right) u(x', y', 0) dx' dy' \quad (1.58)$$

ce qui n'est rien d'autre que l'expression du principe de Huygens-Fresnel dans le cadre de l'approximation de Fresnel, dont on montre donc ici qu'elle est équivalente à l'approximation paraxiale.

L'approximation dite de Fraunhofer consiste à supposer que  $z$  est suffisamment grand pour que les termes quadratiques en  $kx'^2/z$  et  $ky'^2/z$  puissent être négligés dans l'équation ci-dessus. On obtient alors

$$u(x, y, z) \approx \frac{-i}{\lambda z} \exp\left(\frac{ik}{2z}(x^2 + y^2)\right) \iint \exp\left(-\frac{ik}{z}(xx' + yy')\right) u(x', y', 0) dx' dy' \quad (1.59)$$

On reconnaît ici l'expression de la transformée de Fourier de la fonction  $u(x', y', 0)$  :

$$u(x, y, z) = \frac{-i}{\lambda z} \exp\left(\frac{ik}{2z}(x^2 + y^2)\right) u(k_x = kx/z, k_y = ky/z, 0) \quad (1.60)$$

En prenant le carré du module de cette expression, on en déduit que l'image de diffraction à l'infini représente la densité d'énergie dans l'espace de Fourier  $|u(k_x, k_y, 0)|^2$ .

Il est possible d'obtenir cette image de manière exacte à distance finie à l'aide d'un élément optique convergent comme une lentille, un miroir concave (sphérique ou parabolique). L'effet d'un tel élément convergent est d'introduire une phase spatiale

$$\Phi(x, y) = -\frac{k}{2f}(x^2 + y^2) \quad (1.61)$$

où  $f$  est la distance focale. Ce développement quadratique n'est qu'une approximation pour une lentille ou un miroir sphérique, mais est exact pour un miroir parabolique qui sera en conséquence dénué d'aberrations de sphéricité. Appelons  $u_0(x, y)$  le champ juste avant la lentille. Le champ juste après la lentille s'écrit donc  $u_0(x, y) \exp(i\Phi(x, y))$ . Enfin, le champ  $u_1(x, y)$  au foyer de la lentille s'obtient à l'aide de l'éq. 1.58 en prenant  $z = f$ , soit

$$u_1(x, y) = \frac{-i}{\lambda z} \iint \exp\left(\frac{ik}{2f}((x-x')^2 + (y-y')^2)\right) u_0(x', y') \exp(i\Phi(x', y')) dx' dy' \quad (1.62)$$

On voit que les termes en  $x'^2$  et  $y'^2$ , que nous avons négligés dans le cadre de l'approximation de Fraunhofer, s'annulent ici exactement. On obtient donc

$$u_1(x, y) = \frac{-i}{\lambda z} \exp\left(\frac{ik}{2f}(x^2 + y^2)\right) u_0(k_x = kx/f, k_y = ky/f) \quad (1.63)$$

L'image obtenue au foyer d'une lentille correspond donc à la transformée de Fourier du champ en

amont de la lentille, propriété au coeur de l'optique de Fourier.

### 1.5.3 Evolution des valeurs moyennes

A l'aide de la solution générale de l'équation de propagation (eq. 1.56), il est possible de déterminer l'évolution en fonction de  $z$  de la position centrale du faisceau et de sa largeur en utilisant comme plus haut les résultats de la section A.4. Ces quantités peuvent être définies en considérant que  $|u(x, y, z)|^2$  est une densité de probabilité normalisée, de même que sa transformée de Fourier par rapport à ses coordonnées transverses,  $|u(k_x, k_y, z)|^2$ . On peut ainsi écrire :

$$\begin{aligned}\langle x \rangle_z &= \int x |u(x, y, z)|^2 dx dy \\ \langle x^2 \rangle_z &= \int x^2 |u(x, y, z)|^2 dx dy \\ \langle k_x \rangle_z &= \int k_x |u(k_x, k_y, z)|^2 \frac{dk_x}{2\pi} \frac{dk_y}{2\pi}, \text{ etc.}\end{aligned}\tag{1.64}$$

Remarquons tout d'abord que d'après l'éq. 1.56,  $|u(k_x, k_y, z)|^2 = |u(k_x, k_y, 0)|^2$  et est donc indépendant de  $z$ . On peut en déduire que  $\langle k_x \rangle$  et  $\langle k_y \rangle$  sont constants. En choisissant correctement l'axe  $z$ , on peut évidemment supposer que  $\langle k_x \rangle = \langle k_y \rangle = 0$ , ce qui signifie que le faisceau se propage selon l'axe  $z$ .

Appelons  $\varphi(k_x, k_y, z)$  la phase de la grandeur  $u(k_x, k_y, z)$ . On a d'après l'éq. 1.56 la relation

$$\varphi(k_x, k_y, z) = \varphi(k_x, k_y, 0) - \frac{k_x^2 + k_y^2}{2k} z\tag{1.65}$$

D'après l'éq. A.28, la position centrale du faisceau selon  $x$  s'écrit

$$\langle x \rangle_z = - \left\langle \frac{\partial \varphi(k_x, k_y, z)}{\partial k_x} \right\rangle\tag{1.66}$$

où l'on a introduit un signe négatif en raison des conventions de signe différentes entre une transformée de Fourier par rapport au temps et par rapport à l'espace. Or

$$\frac{\partial \varphi}{\partial k_x} = \frac{\partial \varphi}{\partial k_x}(k_x, k_y, 0) - \frac{k_x}{k} z\tag{1.67}$$

On en déduit

$$\langle x \rangle_z = \langle x \rangle_{z=0} + z \langle k_x/k \rangle = \langle x \rangle_{z=0}\tag{1.68}$$

En choisissant correctement l'origine de l'axe des  $x$ , on peut donc en déduire que  $\langle x \rangle_z = 0$ . De

même, on a d'après l'éq. A.30

$$\langle x^2 \rangle_z = \langle x^2 \rangle_{\varphi=0} + \left\langle \left( \frac{\partial \varphi}{\partial k_x} \right)^2 \right\rangle \quad (1.69)$$

Il s'agit d'un polynôme du second degré en  $z$ , dont le coefficient de  $z^2$  est simplement  $\langle k_x/k \rangle^2$  d'après l'éq. 1.67. En choisissant l'origine de l'axe des  $z$  de sorte que l'extremum de la parabole soit en  $z = 0$ , on annule le coefficient en  $z$  du polynôme du second degré. On en déduit donc

$$\langle x^2 \rangle_z = \langle x^2 \rangle_{z=0} + \frac{\langle k_x^2 \rangle}{k^2} z^2 \quad (1.70)$$

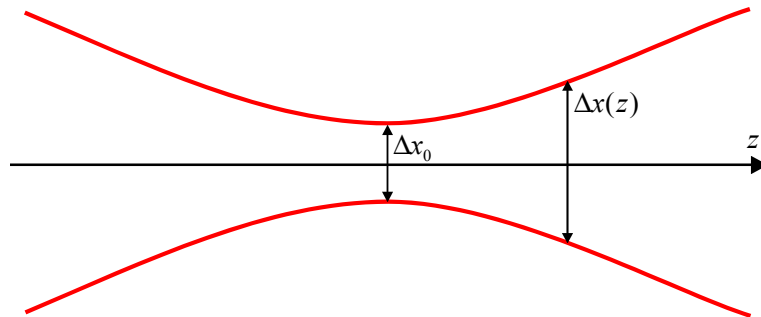
On peut donc en déduire la variance du faisceau  $\Delta x(z)^2 = \langle x^2 \rangle_z - (\langle x \rangle_z)^2 = \langle x^2 \rangle_z$  et l'écart quadratique moyen caractérisant la largeur du faisceau

$$\Delta x(z) = \sqrt{\Delta x(0)^2 + \frac{\Delta k_x^2}{k^2} z^2} \quad (1.71)$$

De même selon l'axe  $y$

$$\Delta y(z) = \sqrt{\Delta y(0)^2 + \frac{\Delta k_y^2}{k^2} z^2} \quad (1.72)$$

La Fig. 1.4 représente la variation de  $\Delta x(z)$  en fonction de  $z$ . On retrouve une hyperbole, comme dans le cas de la dispersion d'une impulsion brève.



**Figure 1.4:** Propagation d'un faisceau lumineux



### 1.5.4 Propagation d'un faisceau gaussien

Considérons un faisceau dont le profil est gaussien en  $z = 0$  :

$$u(x, y, 0) = u_0(x, y) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{w_0} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{w_0^2}\right) \quad (1.73)$$

On montre que les écarts quadratiques moyens en  $z = 0$  s'écrivent alors  $\Delta x_0 = \Delta y_0 = w_0/2$ .

D'après l'éq. A.19, on a dans l'espace de Fourier la relation

$$u(k_x, k_y, 0) = \sqrt{2\pi} w_0 \exp\left(-\frac{(k_x^2 + k_y^2)w_0^2}{4}\right) \quad (1.74)$$

d'où, à l'aide de l'éq. 1.56

$$\begin{aligned} u(k_x, k_y, z) &= \sqrt{2\pi} w_0 \exp\left(-\frac{(k_x^2 + k_y^2)w_0^2}{4}\right) \exp\left(-i\frac{k_x^2 + k_y^2}{2k}z\right) \\ &= \sqrt{2\pi} w_0 \exp\left(-i\frac{k_x^2 + k_y^2}{2k}\tilde{q}(z)\right) \end{aligned} \quad (1.75)$$

où l'on a posé  $\tilde{q}(z) = z - ikw_0^2/2$ . Il s'agit donc d'une fonction gaussienne, dont on déduit aisément la transformée de Fourier à l'aide de l'éq. A.19

$$u(x, y, z) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{k w_0}{2i\tilde{q}(z)} \exp\left(ik\frac{x^2 + y^2}{2\tilde{q}(z)}\right) \quad (1.76)$$

On écrit habituellement

$$\frac{1}{\tilde{q}(z)} = \frac{1}{R(z)} + i\frac{2}{kw(z)^2} \quad (1.77)$$

où

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad (1.78)$$

$$R(z) = z + \frac{z_R^2}{z} \quad (1.79)$$

$$z_R = \frac{k w_0^2}{2} = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (1.80)$$

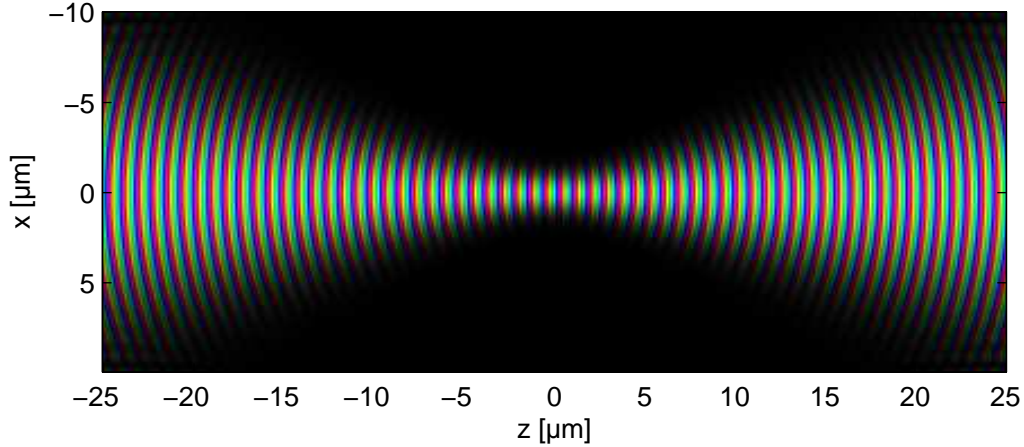
$$\psi(z) = \arctan \frac{z}{z_R} \quad (1.81)$$

L'éq. 1.76 devient alors

$$u(x, y, z) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{\exp(-i\psi(z))}{w(z)} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{w(z)^2}\right) \exp\left(ik\frac{x^2 + y^2}{2R(z)}\right) \quad (1.82)$$

ou encore

$$u(x, y, z) = \sqrt{\frac{2}{w(z)}} \Phi_0\left(\frac{x\sqrt{2}}{w(z)}\right) \Phi_0\left(\frac{y\sqrt{2}}{w(z)}\right) \exp\left(ik\frac{x^2 + y^2}{2R(z)}\right) \exp(-i\psi_0(z)) \quad (1.83)$$



**Figure 1.5:** Coupe longitudinale d'un faisceau gaussien. Les paramètres du faisceau sont  $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ ,  $w_0 = 1 \mu\text{m}$ .

### 1.5.5 Faisceaux gaussiens d'ordre multiple

En observant la forme d'un faisceau gaussien comme vu plus haut, par exemple l'éq. 1.83, on peut se demander comment se propage un faisceau obtenu en faisant le produit de deux fonctions de Hermite d'ordre supérieur.

$$u_{nm}(x, y, 0) = u_{nm}(x, y) = \sqrt{\frac{2}{w_0}} \Phi_n\left(\frac{x\sqrt{2}}{w_0}\right) \Phi_m\left(\frac{y\sqrt{2}}{w_0}\right) \quad (1.84)$$

où  $\Phi_n$  est la fonction de Hermite d'ordre  $n$ , solution de l'hamiltonien de l'oscillateur harmonique

$$\left(-\frac{1}{2} \frac{d^2}{d\xi^2} + \frac{1}{2} \xi^2\right) \Phi_n(\xi) = \left(n + \frac{1}{2}\right) \Phi_n(\xi) \quad (1.85)$$

Les calculs sont plus ardues, mais on montre en suivant la démarche de la section précédente que

$$u(x, y, z) = \sqrt{\frac{2}{w(z)}} \Phi_n\left(\frac{x\sqrt{2}}{w(z)}\right) \Phi_m\left(\frac{y\sqrt{2}}{w(z)}\right) \exp\left(ik\frac{x^2 + y^2}{2R(z)}\right) \exp(-i\psi_{nm}(z)) \quad (1.86)$$

où  $w(z)$  et  $R(z)$  obéissent aux mêmes relations que pour le faisceau gaussien fondamental, et

$$\psi_{nm}(z) = (n + m + 1)\psi_{00}(z) = (n + m + 1) \arctan \frac{z}{z_R} \quad (1.87)$$

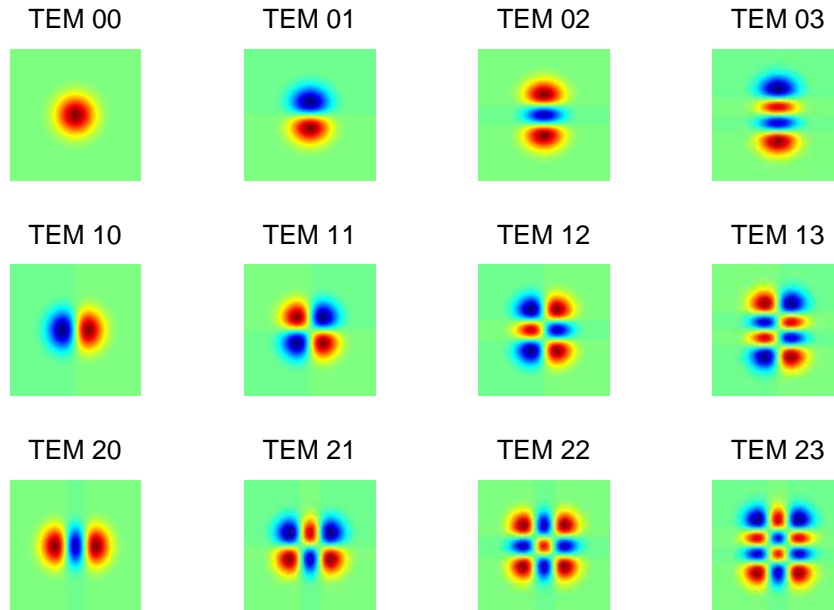


Figure 1.6: Profils transverses de faisceaux gaussiens d'ordre multiple.

### 1.5.6 Propagation d'un faisceau de forme arbitraire

La propagation d'un faisceau lumineux de forme arbitraire peut naturellement être calculée numériquement par une résolution directe de l'équation de propagation paraxiale (éq. 1.53), qui est une équation différentielle du premier ordre par rapport à  $z$ . Ainsi, si le champ  $u_0(x, y) = u(x, y, 0)$  est connu en  $z = 0$ , on peut en déduire le champ en tout point de l'espace. La seule condition est que l'enveloppe  $u_0(x, y)$  varie suffisamment lentement à l'échelle de la longueur d'onde pour que l'approximation paraxiale soit valide.

Il existe cependant une méthode plus efficace consistant à décomposer la fonction initiale sur une base de fonctions dont la propagation est connue. Il peut s'agir par exemple des ondes planes ou des faisceaux gaussiens.

#### Décomposition en ondes planes

La résolution de l'équation de propagation étant immédiate dans l'espace de Fourier, une méthode efficace pour calculer le champ en tout point de l'espace consiste simplement à effectuer une transformée de Fourier de  $u_0(x, y)$  pour calculer  $u_0(k_x, k_y)$ , puis à utiliser l'éq. 1.56 pour déterminer le champ pour la valeur souhaitée de  $z$  selon la relation

$$u(k_x, k_y, z) = u_0(k_x, k_y) \exp\left(-i \frac{k_x^2 + k_y^2}{2k} z\right)$$

puis enfin à en déduire  $u(x, y, z)$  à l'aide d'une transformée de Fourier inverse. En raison de la très grande efficacité des algorithmes de transformée de Fourier rapide, cette méthode permet donc de calculer très simplement le champ en tout point de l'espace. D'après la section 1.5.2, cette méthode est naturellement équivalente au calcul de l'intégrale intervenant dans l'approximation de Fresnel. Elle illustre simplement le fait que la méthode numérique la plus efficace pour calculer un produit de convolution est d'effectuer une transformée de Fourier, un produit, puis une transformée de Fourier inverse.

### Décomposition en fonctions de Hermite

On peut également calculer  $u(x, y, z)$  en exploitant le fait que les fonctions  $u_{n,m}(x, y)$  (eq. 1.84) forment une base de l'espace  $\mathcal{L}^2(\mathbb{R}^2)$ , exactement comme en mécanique quantique pour les fonctions propres du hamiltonien d'un oscillateur harmonique à deux dimensions. On pourra donc écrire

$$u_0(x, y) = \sum_{nm} C_{nm} u_{nm}(x, y) \quad (1.88)$$

avec

$$C_{nm} = \int \int u_{nm}^*(x, y) u_0(x, y) dx dy \quad (1.89)$$

L'équation de propagation étant une équation linéaire, on pourra alors en déduire la solution cherchée par superposition linéaire des solutions connues :

$$u(x, y, z) = \sum_{nm} C_{nm} u_{nm}(x, y, z) \quad (1.90)$$

où les fonctions  $u_{nm}(x, y, z)$  sont données par l'éq. 1.86. Cette démarche est similaire à la méthode utilisée en mécanique quantique consistant à écrire la solution générale de l'équation de Schrödinger dépendant du temps comme une superposition linéaire d'états stationnaires. En pratique, il suffira de prendre un nombre fini de fonctions de base dans les sommes ci-dessus pour que l'éq. 1.88, et donc l'éq. 1.90, constituent une bonne approximation des fonctions exactes.

## 1.6 Optique dans les milieux anisotropes

Revenons au cas général de la propagation d'une onde dans un milieu anisotrope. On peut simplifier encore le système de trois équations couplées 1.30 en remarquant que  $\chi_{ij}$  est un tenseur symétrique donc diagonalisable. Si l'on suppose que les axes  $x, y$  et  $z$  sont choisis de sorte que  $\chi_{ij}$  soit diagonal, on peut écrire

$$\delta_{ij} + \chi_{ij}(\omega) = n_i^2(\omega) \delta_{ij} \quad (1.91)$$

où  $n_i(\omega)$  est par définition l'indice de réfraction du matériau selon l'axe propre  $i$ . L'éq. 1.30 devient alors

$$\left( \left( -k^2 + n_i(\omega)^2 \frac{\omega^2}{c^2} \right) \delta_{ij} + k_i k_j \right) E_j = 0 \quad (1.92)$$

Il s'agit d'un système linéaire homogène de trois équations à trois inconnues qui n'admet de solution non triviale que si son déterminant est nul. Cette condition, connue sous le nom d'équation de Fresnel, s'écrit

$$\sum_i \frac{s_i^2}{\frac{1}{n_i^2} - \frac{1}{n^2}} = 0 \quad (1.93)$$

où  $\vec{s} = \vec{k}/k$  est un vecteur unitaire orienté selon le vecteur d'onde  $\vec{k}$  et  $n$  est l'indice de réfraction effectivement vu par l'onde, défini par  $k = n\omega/c$ .

Pour démontrer l'éq. 1.93, écrivons tout d'abord l'éq. 1.92 à l'aide des notations introduites ci-dessus

$$(n_i^2 - n^2) E_i + n^2 s_i \sum_j s_j E_j = 0 \quad (1.94)$$

On en déduit

$$E_i = \frac{s_i}{1 - \frac{n^2}{n_i^2}} \sum_j s_j E_j \quad (1.95)$$

En multipliant par  $s_i$  puis en sommant sur  $i$ , on obtient

$$\sum_i s_i E_i = \sum_i \frac{s_i^2}{1 - \frac{n^2}{n_i^2}} \sum_j s_j E_j \quad (1.96)$$

soit,

$$\sum_i s_i^2 \left( \frac{1}{1 - \frac{n^2}{n_i^2}} - 1 \right) = 0 \quad (1.97)$$

d'où l'on peut déduire aisément l'éq. 1.93.

Si l'on multiplie l'éq. 1.93 par le produit  $(1/n_x^2 - 1/n^2)(1/n_y^2 - 1/n^2)(1/n_z^2 - 1/n^2)$ , on voit que l'expression obtenue est une équation du second degré en  $1/n^2$ , qui admet deux solutions. Lorsque le vecteur unitaire  $\vec{s}$  décrit la sphère unité, ces deux solutions décrivent deux surfaces, dont l'ensemble est appelé *surface des indices*.

Dans le cas d'un matériau doté d'un axe de symétrie  $z$  d'ordre supérieur à 2, on peut montrer que les indices de réfraction selon les axes propres,  $n_x$  et  $n_y$ , sont nécessairement égaux. Il existe donc deux indices de réfraction pour les axes propres du milieu : l'indice *ordinaire*  $n_o = n_x = n_y$  et l'indice *extraordinaire*  $n_e = n_z$ . On parle de matériau *uniaxe* et l'axe  $z$  est alors appelé *axe optique* du matériau.

Dans ce cas, on démontre que la surface des indices, dont une coupe est représentée Fig. 1.7, est constituée d'une sphère d'indice  $n_o$  et d'un ellipsoïde de révolution d'indice  $n_e(\theta)$ .  $\theta$  est l'angle

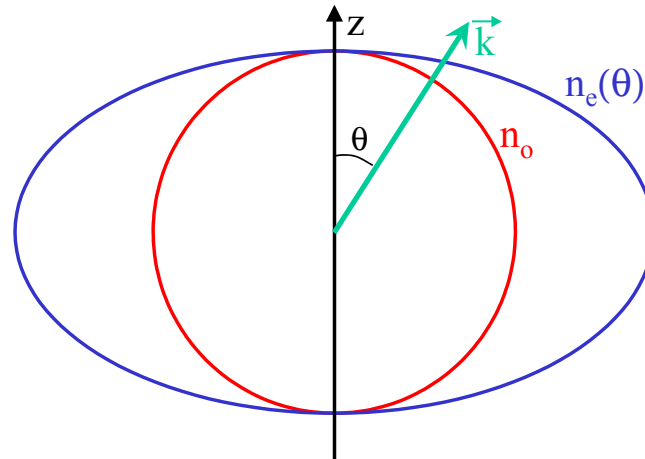


Figure 1.7: Représentation de la surface des indices pour un matériau uniaxe

entre l'axe optique et le vecteur d'onde et  $n_e(\theta)$  est donné par la relation

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2} \quad (1.98)$$

Pour démontrer l'éq. 1.98, on part de l'éq. 1.93, qui peut s'écrire dans le cas d'un matériau uniaxe de la façon suivante

$$(n^2 - n_o^2) \left( (s_x^2 + s_y^2) n_o^2 (n^2 - n_e^2) + s_z^2 n_e^2 (n^2 - n_o^2) \right) = 0 \quad (1.99)$$

Cette équation admet deux solutions : d'une part une sphère  $n = n_o$ , d'autre part un ellipsoïde de révolution. En écrivant  $s_z^2 = \cos^2 \theta$  et  $s_x^2 + s_y^2 = \sin^2 \theta$ , on obtient

$$n_o^2 (n^2 - n_e^2) \sin^2 \theta + n_e^2 (n^2 - n_o^2) \cos^2 \theta = 0 \quad (1.100)$$

d'où l'on déduit l'éq. 1.98.

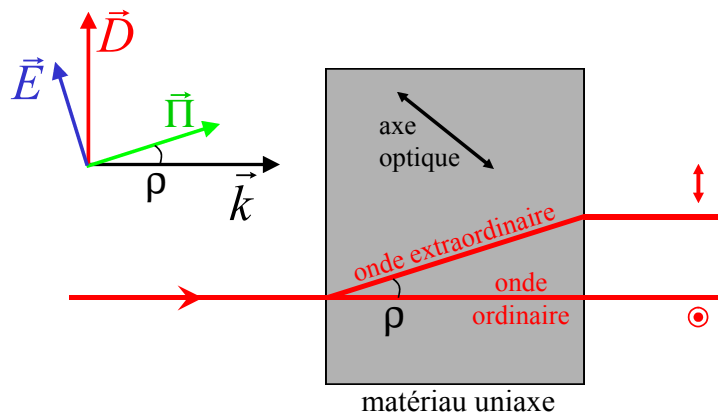


Figure 1.8: Illustration du phénomène de double réfraction

Pour une valeur donnée de  $\theta$ , il existe donc deux ondes de caractéristiques différentes se propageant dans un matériau anisotrope, phénomène dénommé *biréfringence*. La première onde voit l'indice de réfraction  $n_o$  - elle est donc appelée *onde ordinaire*, tandis que la seconde voit l'indice de réfraction  $n_e(\theta)$  et est appelée *onde extraordinaire*. Dans le cas de l'onde ordinaire,  $\vec{E}$  et  $\vec{D}$  sont polarisés perpendiculairement au plan  $\{\vec{k}, z\}$ . A l'inverse, dans le cas de l'onde extraordinaire,  $\vec{E}$  et  $\vec{D}$  sont dans ce plan. De plus, ils ne sont alors pas exactement colinéaires mais forment un petit angle  $\rho$  appelé angle de double réfraction (walkoff en anglais) dont la valeur est déterminée par la relation

$$\tan \rho = \frac{n_e^2(\theta)}{2} \sin(2\theta) \left( \frac{1}{n_e^2} - \frac{1}{n_o^2} \right)$$

Dans ce cas, on a donc  $\vec{\nabla} \vec{E} \neq 0$ . De plus, de même que  $\vec{D}$  et  $\vec{E}$  forment un angle  $\rho$ , le vecteur d'onde  $\vec{k}$  (perpendiculaire à  $\vec{D}$ ) et le vecteur de Poynting  $\vec{\Pi}$  (perpendiculaire à  $\vec{E}$ ) forment eux-aussi un angle  $\rho$  : le faisceau lumineux ne se propagera pas perpendiculairement aux plans d'ondes.

## Chapitre 2

# Modèle semi-classique de la réponse non-linéaire

### 2.1 Développement non-linéaire de la polarisation induite

Dans le cas où le champ électrique appliqué  $E$  est très inférieur au champ électrique caractéristique du système  $E_{at}$  (par exemple le champ liant l'électron au noyau atomique), il est légitime d'effectuer un développement de la polarisation induite :

$$P = \epsilon_0 \left( \alpha \frac{E}{E_{at}} + \beta \left( \frac{E}{E_{at}} \right)^2 + \gamma \left( \frac{E}{E_{at}} \right)^3 + \dots \right) \quad (2.1)$$

Plus exactement, afin de tenir compte de la réponse non instantanée du système, on écrira

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \vec{P}^{(1)}(\vec{r}, t) + \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, t) + \vec{P}^{(3)}(\vec{r}, t) + \dots \quad (2.2)$$

où  $\vec{P}^{(n)}(\vec{r}, t)$  est une fonction multilinéaire d'ordre  $n$  par rapport au champ électrique :

$$P_i^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int dt_1 \dots \int dt_n T_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(t; t_1, \dots, t_n) E_{i_1}(\vec{r}, t_1) \dots E_{i_n}(\vec{r}, t_n) \quad (2.3)$$

En appliquant l'invariance par translation dans le temps de façon similaire à ce que nous avons fait à la section 1.2, on peut en déduire

$$P_i^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int d\tau_1 \dots \int d\tau_n R_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\tau_1, \dots, \tau_n) E_{i_1}(\vec{r}, t - \tau_1) \dots E_{i_n}(\vec{r}, t - \tau_n) \quad (2.4)$$

où, d'après le principe de causalité, la fonction réponse  $R_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\tau_1, \dots, \tau_n)$  n'est non-nulle que si tous ses arguments sont positifs. En exprimant les champs électriques à l'aide de leurs transformées de



Fourier inverses, on peut écrire

$$P_i^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int d\tau_1 \dots \int d\tau_n \int \frac{d\omega_1}{2\pi} \dots \int \frac{d\omega_n}{2\pi} R_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\tau_1, \dots, \tau_n) \exp(i(\omega_1 \tau_1 + \dots + \omega_n \tau_n)) \\ E_{i_1}(\vec{r}, \omega_1) \dots E_{i_n}(\vec{r}, \omega_n) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n)t) \quad (2.5)$$

Soit  $\chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n)$  la transformée de Fourier inverse multidimensionnelle de la réponse temporelle :

$$\chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n) = \int d\tau_1 \dots \int d\tau_n R_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\tau_1, \dots, \tau_n) \exp(i(\omega_1 \tau_1 + \dots + \omega_n \tau_n)) \quad (2.6)$$

L'éq. 2.5 peut alors s'écrire

$$P_i^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int \frac{d\omega_1}{2\pi} \dots \int \frac{d\omega_n}{2\pi} \chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n) E_{i_1}(\vec{r}, \omega_1) \dots E_{i_n}(\vec{r}, \omega_n) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n)t) \quad (2.7)$$

$\chi^{(n)}$  est par définition le *tenseur susceptibilité d'ordre n*, en fait un tenseur d'ordre n+1. Pour qu'il soit défini de façon unique, on le suppose invariant par les n! permutations des  $\{(i_1, \omega_1), \dots, (i_n, \omega_n)\}$ , ce qui revient à permuer les champs dans l'intégrale.

Dans de nombreux ouvrages d'optique non-linéaire, le tenseur susceptibilité non-linéaire est noté  $\chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(-\omega_\sigma; \omega_1, \dots, \omega_n)$ , où  $\omega_\sigma = \omega_1 + \dots + \omega_n$ . Une telle notation fait explicitement ressortir la fréquence engendrée et sera parfois utilisé dans ce document. On rencontre également la notation  $\chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\omega_\sigma, \omega_1, \dots, \omega_n)$ .

Remarquons que la réponse non-linéaire dans le domaine temporel étant une grandeur réelle (de même que la polarisation non-linéaire), on peut déduire de l'éq. 2.6 la relation

$$\chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(-\omega_1, \dots, -\omega_n) = \chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n)^* \quad (2.8)$$

Un cas particulier important est celui où l'on peut négliger la dépendance en fréquence de  $\chi^{(n)}$ . Cela correspond physiquement au cas où les fréquences pour lesquelles le champ prend des valeurs significatives sont très éloignées des résonances du matériau, ce qui correspond donc à la zone de transparence. Dans ce cas, on peut écrire  $\chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n) \approx \chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}$  et

$$P_i^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)} E_{i_1}(\vec{r}, t) \dots E_{i_n}(\vec{r}, t) \quad (2.9)$$

La réponse du matériau est alors *instantanée*[2, 3, 4, 5].

## 2.2 Principe du calcul de la polarisation non-linéaire

Le problème de l'interaction entre le milieu et le rayonnement électromagnétique est en général extrêmement complexe en raison du nombre considérable de degrés de liberté intervenant dans le matériau, en particulier dans le cas d'un milieu solide ou liquide de dimension macroscopique. Nous serons donc contraints d'effectuer un certain nombre d'approximations. En premier lieu, on divisera le système en deux parties, d'une part un système quantique comportant un faible nombre  $N$  de niveaux d'énergie, et d'autre part le reste du système, appelé bain thermique ou réservoir. Nous supposerons que seul le système à  $N$  niveaux est couplé au rayonnement, tandis que l'effet du bain thermique sera d'introduire des mécanismes de relaxation des populations et des cohérences du système quantique.

Il existe diverses techniques plus ou moins élaborées permettant de prendre en compte les mécanismes de relaxation résultant du couplage entre le système et le bain thermique. Nous nous limiterons à la technique la plus simple, à savoir l'équation de Bloch [6, 7]. Cette approche permet en effet de saisir l'essentiel des mécanismes physiques intervenant en optique non-linéaire. On pourra trouver des modèles théoriques plus élaborés dans des ouvrages spécialisés, comme par exemple *Principles of nonlinear optical spectroscopy*, de Shaul Mukamel [8].

Le calcul effectué ci-dessous est similaire à celui que l'on pourra trouver dans les ouvrages d'optique non-linéaire [9, 10]. Toutefois, à l'inverse de ces ouvrages, on ne considérera pas une superposition de champs monochromatiques mais un champ  $E(t)$  de forme temporelle arbitraire, démarche qui sera notamment bien adaptée à l'excitation percussionnelle du système par une ou plusieurs impulsions ultra-courtes. Le résultat sur la susceptibilité non-linéaire sera bien entendu identique puisque cette grandeur est par définition indépendante du champ exciteur.

### 2.2.1 Equation de Bloch

Soit  $\hat{\rho}$  l'opérateur densité restreint aux  $N$  niveaux évoqués plus haut. L'évolution libre du système, c'est à dire en l'absence de champ électromagnétique, s'écrira

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}}{dt} = [\hat{H}_0, \hat{\rho}] + i\hbar \left. \frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} \right|_{relax} \quad (2.10)$$

où  $\hat{H}_0$  est le hamiltonien du système, dont les vecteurs propres et valeurs propres sont supposés connus

$$\hat{H}_0 |n\rangle = \hbar\omega_n |n\rangle \quad (2.11)$$

Le dernier terme de l'éq. 2.10 correspond à la relaxation du système résultant de l'interaction avec le bain. Il sera simplement modélisé par l'expression

$$\left. \frac{\partial \rho_{nm}}{\partial t} \right|_{relax} = -\Gamma_{nm} (\rho_{nm} - \rho_{nm}^{(0)}) \quad (2.12)$$

où  $\Gamma_{nm}$  est le taux de relaxation. Ce dernier correspond à un taux de déphasage ( $1/T_2$ ) lorsque  $n \neq m$  et à un taux de relaxation de la population ( $1/T_1$ ) lorsque  $n = m$ .  $\rho_{nm}^{(0)}$  correspond à la valeur d'équilibre de l'opérateur densité, dont tous les termes non diagonaux, ou cohérences ( $n \neq m$ ), sont évidemment nuls. Remarquez que cette expression simplifiée des termes de relaxation néglige en particulier les transferts de population entre niveaux.

Le couplage du système avec le faisceau lumineux sera pris en compte dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique, *i.e.* via le terme d'interaction  $\hat{W}(t) = -\hat{\vec{\mu}} \cdot \vec{E}(t) = -\hat{\mu}^i E_i(t)$ , où  $\hat{\vec{\mu}}$  est l'opérateur dipôle électrique. L'équation de Bloch en présence du champ devient alors

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}}{dt} = [\hat{H}_0, \hat{\rho}] + [\hat{W}(t), \hat{\rho}] + i\hbar \left. \frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} \right|_{relax} \quad (2.13)$$

Ecrivons les éléments de matrice de cette expression. Tout d'abord, les éléments de matrice des deux commutateurs s'écrivent

$$\begin{aligned} \langle n | [\hat{H}_0, \hat{\rho}] | m \rangle &= \langle n | \hat{H}_0 \hat{\rho} - \hat{\rho} \hat{H}_0 | m \rangle = \langle n | \hbar \omega_n \hat{\rho} - \hat{\rho} \hbar \omega_m | m \rangle \\ &= \hbar \omega_{nm} \rho_{nm} \end{aligned} \quad (2.14)$$

et

$$\begin{aligned} \langle n | [\hat{W}, \hat{\rho}] | m \rangle &= \langle n | \hat{W} \hat{\rho} - \hat{\rho} \hat{W} | m \rangle \\ &= \sum_l (W_{nl} \rho_{lm} - \rho_{nl} W_{lm}) \\ &= -E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm} - \rho_{nl} \mu_{lm}^i) \end{aligned} \quad (2.15)$$

L'équation d'évolution des éléments de matrice de l'opérateur densité s'écrit alors

$$\left( i \frac{d}{dt} - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm} \right) (\rho_{nm}(t) - \rho_{nm}^{(0)}) = -\frac{E_i(t)}{\hbar} \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t) \mu_{lm}^i) \quad (2.16)$$

Afin de résoudre cette équation, on introduit la fonction de Green  $G_{nm}(t)$ , qui est solution de l'équation dans le cas où le membre de droite est remplacé par une distribution de Dirac  $\delta(t)$

$$\left( i \frac{d}{dt} - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm} \right) G_{nm}(t) = -\frac{\delta(t)}{\hbar} \quad (2.17)$$

La transformée de Fourier inverse de l'équation ci-dessus s'écrit

$$(\omega - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm}) G_{nm}(\omega) = -\frac{1}{\hbar} \quad (2.18)$$

d'où l'on déduit l'expression de la fonction de Green dans l'espace des fréquences

$$G_{nm}(\omega) = \frac{-1/\hbar}{\omega - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm}} \quad (2.19)$$

Enfin, à l'aide de l'appendice A.3, on en déduit

$$G_{nm}(t) = \frac{i}{\hbar} \Theta(t) \exp(-i\omega_{nm}t - \Gamma_{nm}t) \quad (2.20)$$

La fonction de Green permet d'exprimer simplement la solution de l'éq. 2.16. En effet, par transformée de Fourier inverse, cette dernière équation donne

$$\begin{aligned} \rho_{nm}(\omega) - \rho_{nm}^{(0)}(\omega) &= \frac{-1/\hbar}{\omega - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm}} \mathcal{F}^{-1} \left( E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t) \mu_{lm}^i) \right) \\ &= G_{nm}(\omega) \mathcal{F}^{-1} \left( E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t) \mu_{lm}^i) \right) \end{aligned} \quad (2.21)$$

Par transformée de Fourier, on en déduit

$$\rho_{nm}(t) = \rho_{nm}^{(0)} + G_{nm}(t) \otimes \left( E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t) \mu_{lm}^i) \right) \quad (2.22)$$

### 2.2.2 Développement perturbatif

L'expression intégrale de l'équation de Bloch (eq. 2.22) se prête très bien à un développement perturbatif. En effet, développons l'opérateur densité en puissances successives du champ électrique

$$\hat{\rho} = \hat{\rho}^{(0)} + \hat{\rho}^{(1)} + \hat{\rho}^{(2)} + \dots \quad (2.23)$$

En utilisant cette expression de l'opérateur densité dans l'éq. 2.22, et en écrivant l'égalité des termes du même ordre par rapport au champ électrique, on obtient la hiérarchie d'équations

$$\rho_{nm}^{(p+1)}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left( E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}^{(p)}(t) - \rho_{nl}^{(p)}(t) \mu_{lm}^i) \right) \quad (2.24)$$

Connaissant la solution d'ordre zéro,  $\hat{\rho}^{(0)}$ , qui n'est autre que la valeur d'équilibre de l'opérateur densité en l'absence de champ, il est donc aisé de déterminer l'expression de l'opérateur densité

aux ordres successifs de perturbation, à l'aide d'une série de produits de convolution.

$$\rho_{nm}^{(1)}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left( E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}^{(0)} - \rho_{nl}^{(0)} \mu_{lm}^i) \right) \quad (2.25)$$

$$\rho_{nm}^{(2)}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left( E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}^{(1)}(t) - \rho_{nl}^{(1)}(t) \mu_{lm}^i) \right) \quad (2.26)$$

$$\rho_{nm}^{(3)}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left( E_i(t) \sum_l (\mu_{nl}^i \rho_{lm}^{(2)}(t) - \rho_{nl}^{(2)}(t) \mu_{lm}^i) \right) \quad (2.27)$$

Dans le cas où l'on souhaite effectuer un calcul numérique, il sera possible d'effectuer de façon très efficace ce calcul itératif à l'aide d'une succession de transformées de Fourier inverses, de produits, et de transformées de Fourier.

### 2.2.3 Expression de la polarisation

Si l'on suppose que le matériau est constitué de  $\mathcal{N}$  systèmes identiques et indépendants par unité de volume, la polarisation volumique s'écrit

$$\begin{aligned} P_i(t) &= \mathcal{N} \langle \hat{\mu}^i(t) \rangle \\ &= \mathcal{N} \text{Tr} \hat{\mu}^i \hat{\rho}(t) \\ &= \mathcal{N} \sum_{nm} \mu_{mn}^i \rho_{nm}(t) \end{aligned} \quad (2.28)$$

Le terme d'ordre  $p$  de la polarisation se déduit donc aisément du terme d'ordre  $p$  de l'opérateur densité

$$P_i^{(p)}(t) = \mathcal{N} \sum_{nm} \mu_{mn}^i \rho_{nm}^{(p)}(t) \quad (2.29)$$

On pourra ainsi en déduire la polarisation non-linéaire à chaque ordre de la perturbation, et, par identification avec l'éq. 2.7, l'expression de la susceptibilité non-linéaire d'ordre correspondant. C'est l'objet de la section suivante.

## 2.3 Détermination des susceptibilités linéaire et non-linéaire

### 2.3.1 Résolution au premier ordre

Sachant que seuls les termes diagonaux de l'opérateur densité sont non nuls à l'ordre zéro, l'éq. 2.24 permet d'obtenir l'expression de l'opérateur densité à l'ordre 1

$$\rho_{nm}^{(1)}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left( E_i(t) (\mu_{nm}^i \rho_{mm}^{(0)}(t) - \rho_{nn}^{(0)}(t) \mu_{nm}^i) \right)$$

$$= \mu_{nm}^i (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) G_{nm}(t) \otimes E_i(t) \quad (2.30)$$

d'où l'on peut déduire, à l'aide de l'éq. 2.29, l'expression de la polarisation linéaire

$$P_i^{(1)}(t) = \mathcal{N} \left( \sum_{nm} \mu_{mn}^i \mu_{nm}^j (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) G_{nm}(t) \right) \otimes E_j(t) \quad (2.31)$$

D'après l'éq. A.9, ce produit de convolution s'écrit comme un simple produit dans l'espace des fréquences

$$P_i^{(1)}(\omega) = \mathcal{N} \sum_{nm} \mu_{mn}^i \mu_{nm}^j (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) G_{nm}(\omega) E_j(\omega) \quad (2.32)$$

On en déduit ainsi l'expression de la susceptibilité linéaire

$$\chi_{ij}^{(1)}(\omega) = \frac{-\mathcal{N}}{\epsilon_0 \hbar} \sum_{nm} \frac{\mu_{mn}^i \mu_{nm}^j}{\omega - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm}} (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) \quad (2.33)$$

Dans le cas où la température est nulle, ou très faible devant l'écart en énergie entre l'état fondamental et les états excités, seul l'état fondamental est peuplé en l'absence de champ, soit  $\hat{\rho}^{(0)} = |g\rangle\langle g|$ . On obtient alors

$$\chi_{ij}^{(1)}(\omega) = \sum_{n \neq g} \frac{-\mathcal{N}}{\epsilon_0 \hbar} \left( \frac{\mu_{gn}^i \mu_{ng}^j}{\omega - \omega_{ng} + i\Gamma_{ng}} - \frac{\mu_{ng}^i \mu_{gn}^j}{\omega + \omega_{ng} + i\Gamma_{ng}} \right) \quad (2.34)$$

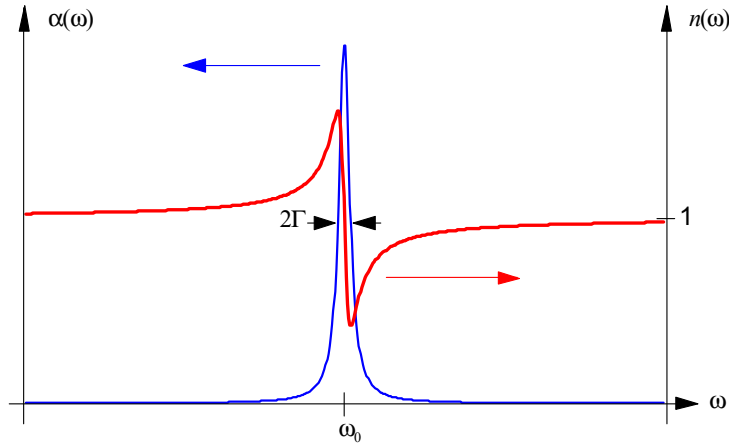
Dans le cas d'un matériau isotrope, et en supposant que la susceptibilité est très inférieure à 1, l'éq. 1.38 nous permet d'écrire le coefficient d'absorption

$$\begin{aligned} \alpha(\omega) &= \frac{\omega}{c} \text{Im}\chi(\omega) \\ &= \sum_{n \neq g} \frac{\mathcal{N}\omega}{\epsilon_0 \hbar c} \left( \frac{|\mu_{ng}|^2 \Gamma_{ng}}{(\omega - \omega_{ng})^2 + \Gamma_{ng}^2} - \frac{|\mu_{ng}|^2 \Gamma_{ng}}{(\omega + \omega_{ng})^2 + \Gamma_{ng}^2} \right) \end{aligned} \quad (2.35)$$

De même, la partie réelle de l'indice de réfraction s'écrit

$$\begin{aligned} n(\omega) &= 1 + \frac{1}{2} \text{Re}\chi(\omega) \\ &= 1 + \sum_{n \neq g} \frac{\mathcal{N}}{2\epsilon_0 \hbar} \left( \frac{|\mu_{ng}|^2 (\omega_{ng} - \omega)}{(\omega - \omega_{ng})^2 + \Gamma_{ng}^2} + \frac{|\mu_{ng}|^2 (\omega_{ng} + \omega)}{(\omega + \omega_{ng})^2 + \Gamma_{ng}^2} \right) \end{aligned} \quad (2.36)$$

On retrouve ainsi le fait que le spectre d'absorption est constitué d'une assemblée de Lorentziennes centrées sur les fréquences de résonance  $\omega_{ng}$  avec une force proportionnelle à  $|\mu_{ng}|^2$ , le carré de l'élément de matrice de transition. La largeur à mi-hauteur de ces pics est  $2\Gamma_{ng}$ , d'autant plus grande que le taux de déphasage est élevé. L'indice de réfraction est quant à lui constitué de superposition de dérivées de Lorentzienne. On en déduit notamment que l'indice de réfraction est



**Figure 2.1:** Représentation de l'absorption et de l'indice de réfraction obtenus à partir des éq. 2.35 et 2.36 dans le cas d'un système à deux niveaux de fréquence de transition  $\omega_0 = \omega_{eg}$  et de taux de déphasage  $\Gamma = \Gamma_{eg}$ .

toujours croissant dans les zones de transparence, également appelées zones de dispersion normale. La Fig. 2.1 représente absorption et indice de réfraction dans le cas d'un système à deux niveaux.

### Approximation de l'onde tournante

Le champ électrique est une grandeur réelle constituée de deux composantes complexes dont l'une,  $\mathcal{E}(t)$ , est associée aux fréquences positives et l'autre,  $\mathcal{E}^*(t)$ , aux fréquences négatives (voir section 1.1). Il est clair que ces deux composantes, tournant en sens contraire dans le plan complexe, ne vont pas toujours exciter avec la même efficacité un élément de matrice donné de l'opérateur densité. Considérons le cas d'un système à deux niveaux dont seul l'état fondamental est peuplé. L'éq. 2.30 devient

$$\rho_{eg}^{(1)}(t) = \mu_{eg} G_{eg}(t) \otimes \frac{\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}^*(t)}{2} \quad (2.37)$$

Dans l'espace des fréquences, cette équation s'écrit

$$\rho_{eg}^{(1)}(\omega) = \mu_{eg} G_{eg}(\omega) \frac{\mathcal{E}(\omega) + \mathcal{E}^*(-\omega)}{2} \quad (2.38)$$

La Fig. 2.2 représente dans l'espace des fréquences la fonction de Green  $G_{eg}(\omega)$  et le champ excitateur dans des conditions où la fréquence centrale du rayonnement est proche de la fréquence de transition  $\omega_{eg}$ . Il est clair que le recouvrement entre  $G_{eg}(\omega)$  sera bien plus efficace avec la composante complexe de fréquence positive  $\mathcal{E}(\omega)$  qu'avec la composante de fréquence négative  $\mathcal{E}^*(-\omega)$ . L'approximation dite de *l'onde tournante* consiste à ne conserver que la composante complexe tournant dans le bon sens. On pourra alors écrire

$$\rho_{eg}^{(1)}(\omega) \approx \frac{\mu_{eg}}{2} G_{eg}(\omega) \mathcal{E}(\omega) \quad (2.39)$$

soit, dans le domaine temporel

$$\rho_{eg}^{(1)}(t) = \frac{\mu_{eg}}{2} G_{eg}(t) \otimes \mathcal{E}(t) \quad (2.40)$$

Tout se passe comme si le terme de cohérence  $\rho_{eg}^{(1)}$  était excité non par un champ réel mais par une onde tournante (dans le plan complexe), ici le champ complexe  $\mathcal{E}(t)$ . Naturellement le terme  $\rho_{ge}^{(1)}$  sera excité de manière prépondérante par la composante complexe tournant dans l'autre sens,  $\mathcal{E}^*(t)$ . L'approximation de l'onde tournante consiste à ne conserver que ces termes prépondérants à chaque ordre de la théorie des perturbations, ce qui réduit grandement le nombre de termes à calculer. Ici encore, une approche diagrammatique permet de sélectionner les diagrammes dits RWA (pour Rotating Wave Approximation) satisfaisant automatiquement cette condition de résonance [8].

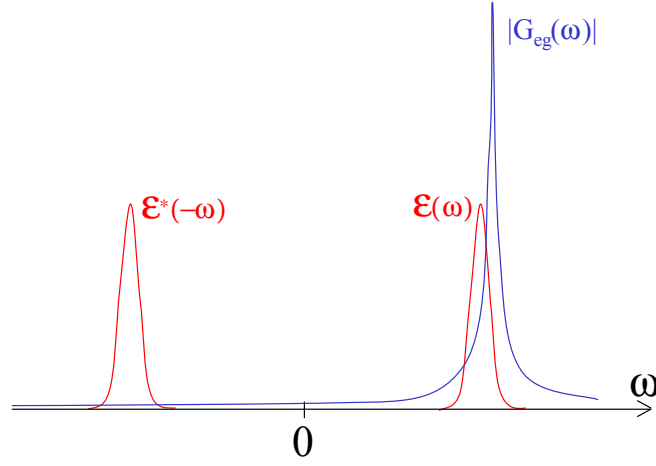


Figure 2.2: Représentation de  $|G_{eg}(\omega)|$  (trait plein) et de  $|E(\omega)|^2$  (trait pointillé)

### 2.3.2 Résolution au deuxième ordre

En remplaçant  $\hat{\rho}^{(1)}$  selon l'éq. 2.30 dans l'expression de  $\hat{\rho}^{(2)}$  (éq. 2.26), on obtient

$$\begin{aligned} \rho_{nm}^{(2)}(t) &= G_{nm}(t) \otimes \left( E_j(t) \sum_l (\mu_{nl}^j \rho_{lm}^{(1)}(t) - \rho_{nl}^{(1)}(t) \mu_{lm}^j) \right) \\ &= \sum_l G_{nm}(t) \otimes \left( E_j(t) \left( \mu_{nl}^j \mu_{lm}^k (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) G_{lm}(t) \otimes E_k(t) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - \mu_{lm}^j \mu_{nl}^k (\rho_{ll}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) G_{nl}(t) \otimes E_k(t) \right) \right) \end{aligned} \quad (2.41)$$

En remplaçant l'équation ci-dessus dans l'expression de la polarisation (éq. 2.29), on obtient

$$\begin{aligned} P_i^{(2)}(t) &= \mathcal{N} \sum_{nm} \mu_{mn}^i \rho_{nm}^{(2)}(t) \\ &= \mathcal{N} \sum_{nml} \left( \mu_{mn}^i \mu_{nl}^j \mu_{lm}^k (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) G_{nm}(t) \otimes (E_j(t) (G_{lm}(t) \otimes E_k(t))) \right. \\ &\quad \left. - \mu_{lm}^j \mu_{nl}^k (\rho_{ll}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) G_{nl}(t) \otimes E_k(t) \right) \end{aligned}$$



$$+\mu_{mn}^i \mu_{nl}^k \mu_{lm}^j (\rho_{nn}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) G_{nm}(t) \otimes (E_j(t)(G_{nl}(t) \otimes E_k(t))) \quad (2.42)$$

On peut remarquer que l'expression ci-dessus consiste en une somme de termes du type

$$G_1(t) \otimes (E_j(t)(G_2(t) \otimes E_k(t))) \quad (2.43)$$

$$= \mathcal{F} \left( G_1(\omega) \left( \frac{1}{2\pi} E_j(\omega) \otimes (G_2(\omega) E_k(\omega)) \right) \right) \quad (2.44)$$

$$= \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} e^{-i\omega t} G_1(\omega) \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} E_j(\omega_1) G_2(\omega - \omega_1) E_k(\omega - \omega_1) \quad (2.45)$$

$$= \int \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} G_1(\omega_1 + \omega_2) G_2(\omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) \quad (2.46)$$

où l'on a utilisé les propriétés du produit de convolution (voir appendice A) pour passer de l'éq. 2.43 à l'éq. 2.44. On a également effectué le changement de variable  $\omega_2 = \omega - \omega_1$  pour passer de l'éq. 2.45 à l'éq. 2.46. On peut constater que l'éq. 2.46 a la même structure de transformée de Fourier à deux dimensions que l'expression de la polarisation non-linéaire du second ordre déduite de l'éq. 2.7 et reportée ci-dessous

$$P_i^{(2)}(t) = \epsilon_0 \int \int \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) \quad (2.47)$$

On peut donc déduire des éq. 2.42 et 2.46 un choix possible du tenseur susceptibilité non-linéaire du deuxième ordre :

$$\begin{aligned} X_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \frac{\mathcal{N}}{\epsilon_0} \sum_{nml} \left( \mu_{mn}^i \mu_{nl}^j \mu_{lm}^k (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) G_{nm}(\omega_1 + \omega_2) G_{lm}(\omega_2) \right. \\ \left. + \mu_{mn}^i \mu_{lm}^j \mu_{nl}^k (\rho_{nn}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) G_{nm}(\omega_1 + \omega_2) G_{nl}(\omega_2) \right) \end{aligned} \quad (2.48)$$

ou encore, après un changement d'indice muet dans le second des deux termes de l'équation ci-dessus

$$\begin{aligned} X_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \frac{\mathcal{N}}{\epsilon_0} \sum_{nml} \left( \rho_{mm}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)} \right) \left( \mu_{mn}^i \mu_{nl}^j \mu_{lm}^k G_{nm}(\omega_1 + \omega_2) G_{lm}(\omega_2) \right. \\ \left. + \mu_{nm}^i \mu_{ln}^j \mu_{ml}^k G_{mn}(\omega_1 + \omega_2) G_{ml}(\omega_2) \right) \end{aligned} \quad (2.49)$$

Toutefois un tel tenseur n'est pas unique. En effet, le tenseur  $X_{ikj}^{(2)}(\omega_2, \omega_1)$  obtenu par échange des couples  $(j, \omega_1)$  et  $(k, \omega_2)$  donnerait le même résultat s'il était utilisé dans l'éq. 2.47 puisque les champs  $E_j(\omega_1)$  et  $E_k(\omega_2)$  y jouent le même rôle. Comme cela a été mentionné à la section 2.1, pour être défini de manière unique, le tenseur susceptibilité  $\chi_{ii_1 \dots i_n}^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n)$  est par convention supposé invariant par toute permutation des couples  $(i_1, \omega_1), \dots, (i_n, \omega_n)$ . Ici, cela signifie que  $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$  doit être invariant par échange des couples  $(j, \omega_1)$  et  $(k, \omega_2)$ , ce qui n'est pas le cas du tenseur

$X_{ijk}^{(2)}(\omega_2, \omega_1)$ . On écrira donc

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \mathcal{P}_2 X_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) \quad (2.50)$$

où l'opérateur  $\mathcal{P}_2$  effectue la moyenne sur les deux échanges possibles de  $(j, \omega_1)$  et  $(k, \omega_2)$ , soit

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \frac{1}{2} \left( X_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) + X_{ikj}^{(2)}(\omega_2, \omega_1) \right) \quad (2.51)$$

On en déduit

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \frac{\mathcal{N}}{2\epsilon_0} \sum_{nml} \left( \rho_{mm}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)} \right) & \left( \mu_{mn}^i \mu_{nl}^j \mu_{lm}^k G_{nm}(\omega_1 + \omega_2) G_{lm}(\omega_2) \right. \\ & + \mu_{nm}^i \mu_{ln}^j \mu_{ml}^k G_{mn}(\omega_1 + \omega_2) G_{ml}(\omega_2) \\ & + \mu_{mn}^i \mu_{nl}^k \mu_{lm}^j G_{nm}(\omega_1 + \omega_2) G_{lm}(\omega_1) \\ & \left. + \mu_{nm}^i \mu_{ln}^k \mu_{ml}^j G_{mn}(\omega_1 + \omega_2) G_{ml}(\omega_1) \right) \end{aligned} \quad (2.52)$$

Il peut être préférable de ne faire apparaître que  $\rho_{ll}^{(0)}$ , ce qui nous donne finalement le tenseur susceptibilité non-linéaire du deuxième ordre sous la forme d'une somme de huit termes

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \frac{\mathcal{N}}{2\epsilon_0} \sum_{lmn} \rho_{ll}^{(0)} & \left( \mu_{ln}^i \mu_{nm}^j \mu_{ml}^k G_{nl}(\omega_1 + \omega_2) G_{ml}(\omega_2) \right. \\ & + \mu_{lm}^k \mu_{mn}^j \mu_{nl}^i G_{ln}(\omega_1 + \omega_2) G_{lm}(\omega_2) \\ & + \mu_{ln}^i \mu_{nm}^k \mu_{ml}^j G_{nl}(\omega_1 + \omega_2) G_{ml}(\omega_1) \\ & + \mu_{lm}^j \mu_{mn}^k \mu_{nl}^i G_{ln}(\omega_1 + \omega_2) G_{lm}(\omega_1) \\ & - \mu_{lm}^k \mu_{mn}^i \mu_{nl}^j G_{nm}(\omega_1 + \omega_2) G_{lm}(\omega_2) \\ & - \mu_{ln}^j \mu_{nm}^i \mu_{ml}^k G_{mn}(\omega_1 + \omega_2) G_{ml}(\omega_2) \\ & - \mu_{lm}^j \mu_{mn}^i \mu_{nl}^k G_{nm}(\omega_1 + \omega_2) G_{lm}(\omega_1) \\ & \left. - \mu_{ln}^k \mu_{nm}^i \mu_{ml}^j G_{mn}(\omega_1 + \omega_2) G_{ml}(\omega_1) \right) \end{aligned} \quad (2.53)$$

En remplaçant les fonctions  $G_{nm}(\omega)$  par leurs valeurs à l'aide de l'éq. 2.19, on en déduit enfin l'expression du tenseur susceptibilité du deuxième ordre

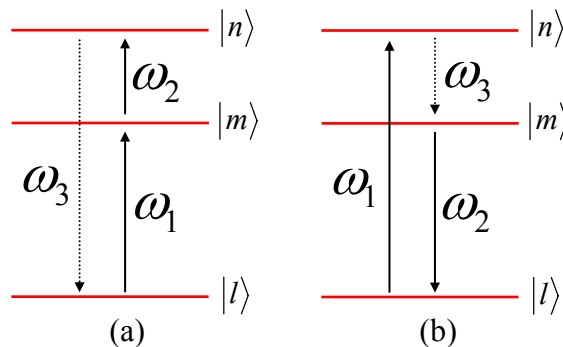
$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) = \frac{\mathcal{N}}{2\epsilon_0 \hbar^2} \sum_{lmn} \rho_{ll}^{(0)} & \left[ \frac{\mu_{ln}^i \mu_{nm}^j \mu_{ml}^k}{(\omega_3 - \omega_{nl} + i\Gamma_{nl})(\omega_2 - \omega_{ml} + i\Gamma_{ml})} + \frac{\mu_{lm}^k \mu_{mn}^j \mu_{nl}^i}{(\omega_3 - \omega_{ln} + i\Gamma_{ln})(\omega_2 - \omega_{lm} + i\Gamma_{lm})} \right. \\ & + \frac{\mu_{ln}^i \mu_{nm}^k \mu_{ml}^j}{(\omega_3 - \omega_{nl} + i\Gamma_{nl})(\omega_1 - \omega_{ml} + i\Gamma_{ml})} + \frac{\mu_{lm}^j \mu_{mn}^k \mu_{nl}^i}{(\omega_3 - \omega_{ln} + i\Gamma_{ln})(\omega_1 - \omega_{lm} + i\Gamma_{lm})} \\ & - \frac{\mu_{lm}^k \mu_{mn}^i \mu_{nl}^j}{(\omega_3 - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm})(\omega_2 - \omega_{lm} + i\Gamma_{lm})} - \frac{\mu_{ln}^j \mu_{nm}^i \mu_{ml}^k}{(\omega_3 - \omega_{mn} + i\Gamma_{mn})(\omega_2 - \omega_{ml} + i\Gamma_{ml})} \\ & \left. - \frac{\mu_{lm}^j \mu_{mn}^i \mu_{nl}^k}{(\omega_3 - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm})(\omega_1 - \omega_{lm} + i\Gamma_{lm})} - \frac{\mu_{ln}^k \mu_{nm}^i \mu_{ml}^j}{(\omega_3 - \omega_{mn} + i\Gamma_{mn})(\omega_1 - \omega_{ml} + i\Gamma_{ml})} \right] \end{aligned} \quad (2.54)$$

avec  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ . Dans le cas où seul l'état fondamental est peuplé ( $\rho^{(0)} = |g\rangle\langle g|$ ), la somme sur

l'indice  $l$  disparaît et  $l$  doit être remplacé par  $g$ . Malgré la complexité apparente de l'expression de  $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ , il est possible d'en donner une interprétation physique simple. On peut tout d'abord remarquer que les quatre termes apparaissant dans la deuxième colonne sont les complexes conjugués de ceux de la première colonne auxquels on aurait changé le signe des fréquences des champs. Ils permettent ainsi que la susceptibilité satisfasse l'éq. 2.8 et il ne sera donc pas nécessaire de les discuter par la suite. De même, chaque terme d'une ligne paire est identique à celui de la ligne précédente après échange des couples  $(j, \omega_1)$  et  $(k, \omega_2)$ . Il ne reste donc à interpréter que deux des huit termes intervenant dans l'expression de  $\chi^{(2)}$ , soit par exemple le troisième et le huitième terme de l'éq. 2.54. Le troisième terme s'écrit

$$\frac{\langle l|\mu^i|n\rangle\langle n|\mu^k|m\rangle\langle m|\mu^j|l\rangle}{(\omega_3 - \omega_{nl} + i\Gamma_{nl})(\omega_1 - \omega_{ml} + i\Gamma_{ml})} \quad (2.55)$$

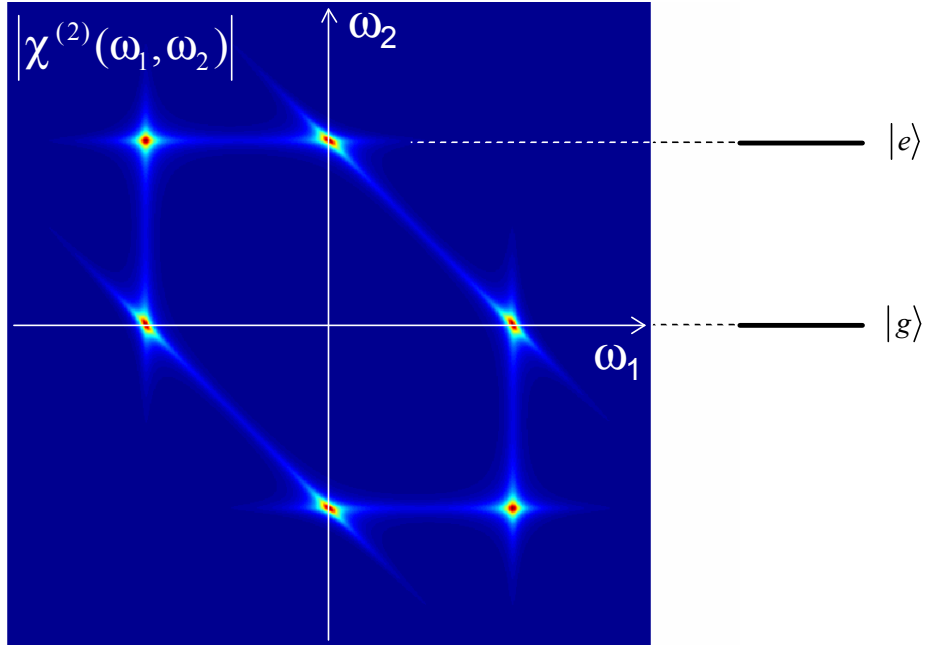
Ce terme peut être interprété à l'aide de la relation de récurrence faisant passer de  $\hat{\rho}^{(p)}$  à  $\hat{\rho}^{(p+1)}$  (eq. 2.24) en considérant que l'on part d'une population  $\rho_{ll}^{(0)}$  dans le niveau  $l$ . Considérons les éléments de matrices figurant au numérateur de l'éq. 2.55 qu'il faut lire ici de la droite vers la gauche. Sous l'action du champ  $E_j(\omega_1)$  et du dipôle de transition  $\langle m|\mu^j|l\rangle$  on engendre d'après l'éq. 2.24 un terme de cohérence  $\rho_{ml}^{(1)}$  au premier ordre de la théorie des perturbations. Sous l'action du champ  $E_k(\omega_2)$  et de l'élément de matrice  $\langle n|\mu^k|m\rangle$  on atteint alors l'élément de matrice  $\rho_{nl}^{(2)}$  au deuxième ordre de la théorie des perturbations. Cet élément de matrice de l'opérateur densité va ensuite contribuer à la polarisation non-linéaire via l'élément de matrice  $\langle l|\mu^i|n\rangle$  (voir eq. 2.28). Les dénominateurs sont associés à la nature plus ou moins résonnante du processus. Contrairement à la susceptibilité du premier ordre qui ne comportait qu'un seul facteur résonnant, la susceptibilité du deuxième ordre en comporte donc deux. On aura en effet une première résonance lorsque la fréquence d'excitation  $\omega_1$  est proche de  $\omega_{ml}$ , la fréquence propre d'oscillation de  $\rho_{ml}^{(1)}$ , et une deuxième résonance lorsque la fréquence à laquelle est induite la polarisation,  $\omega_3$ , est proche de la fréquence propre  $\omega_{nl}$  de la cohérence induite  $\rho_{nl}^{(2)}$ . En résumé l'éq. 2.55 peut être associée au diagramme représenté Fig. 2.3 (a). Le huitième terme de l'éq. 2.54 s'écrit



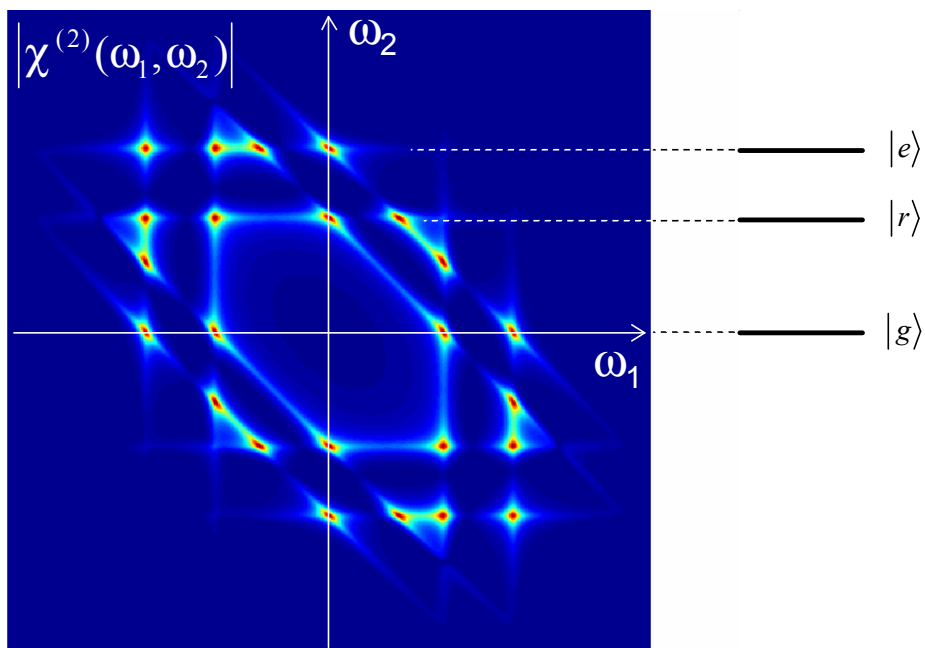
**Figure 2.3:** Deux diagrammes intervenant dans la susceptibilité non-linéaire du deuxième ordre.

$$\frac{\langle l|\mu^k|m\rangle\langle m|\mu^i|n\rangle\langle n|\mu^j|l\rangle}{(\omega_3 - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm})(\omega_1 - \omega_{nl} + i\Gamma_{nl})} \quad (2.56)$$

où l'on a échangé ci-dessus les deux indices muets  $m$  et  $n$ . Le champ  $E_j(\omega_1)$  crée ici une cohérence



**Figure 2.4:** Représentation du spectre bidimensionnel de susceptibilité non-linéaire du deuxième ordre pour un système à deux niveaux.



**Figure 2.5:** Représentation du spectre bidimensionnel de susceptibilité non-linéaire du deuxième ordre pour un système à trois niveaux.

$\rho_{nl}^{(1)}$  via l'élément de matrice  $\langle n|\mu^j|l\rangle$ . Au second ordre de la théorie des perturbations, le champ  $E_k(\omega_2)$  transforme  $\rho_{nl}^{(1)}$  en  $\rho_{nm}^{(2)}$  via l'élément de matrice  $\langle l|\mu^k|m\rangle$ . Contrairement au cas précédent, l'élément de matrice induit à l'ordre deux correspond à une cohérence entre deux états excités, et non entre l'état de départ et un état excité. Le deuxième facteur résonnant est donc différent du cas précédent puisque l'on a maintenant une résonance lorsque la fréquence  $\omega_3$  est proche de  $\omega_{nm}$ . On a donc un processus associé à celui représenté Fig. 2.3 (b). Dans le cas où les composantes spectrales  $E(\omega_1)$  et  $E(\omega_2)$  sont issus d'un même champ laser dont le spectre est suffisamment large pour englober l'ensemble des deux transitions  $\omega_{nl}$  et  $\omega_{ml}$ , on parle de battements quantiques : on a créé une superposition cohérente des deux états excités  $|n\rangle$  et  $|m\rangle$  ce qui résulte en l'induction d'une polarisation non-linéaire oscillant à la fréquence  $\omega_{nm}$  séparant ces deux états excités.

Il est possible de mettre en évidence les facteurs résonnants mentionnés ci-dessus en effectuant une représentation graphique de  $\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$  pour un système à deux ou trois niveaux. La Fig. 2.4 représente le cas d'un système à deux niveaux. On peut observer des lignes verticales ( $|\omega_1| \approx \omega_{eg}$ ), horizontales ( $|\omega_2| \approx \omega_{eg}$ ) ou perpendiculaires à la diagonale ( $|\omega_1 + \omega_2| \approx \omega_{eg}$ ) correspondant à des simples résonances, l'un ou l'autre des deux dénominateurs prenant alors une valeur minimale. A l'intersection de ces lignes on peut voir apparaître une double résonance. Par exemple le processus doublement résonnant associé au diagramme de la Fig. 2.3 (a) correspond au pic de coordonnées  $\omega_1 \approx \omega_{eg}$  et  $\omega_2 \approx 0$ . En effet, pour un système à deux niveaux on aura obligatoirement  $n = m = e$  ou  $l = m = g$ . De même, le processus doublement résonnant associé au diagramme de la Fig. 2.3 (b) correspond au pic de coordonnées  $\omega_1 \approx -\omega_2 \approx \omega_{eg}$ .

La Fig. 2.4 représente le cas d'un système à trois niveaux,  $\{|g\rangle, |r\rangle \text{ et } |e\rangle\}$ . Une partie du spectre observé correspond simplement à la superposition de deux spectres similaires à celui de la Fig. 2.4 pour les systèmes  $\{|g\rangle, |r\rangle\}$  et  $\{|g\rangle, |e\rangle\}$ . Mais on obtient également des pics supplémentaires, comme par exemple un pic doublement résonnant associé au diagramme de la Fig. 2.3 (a), avec  $\omega_1 \approx \omega_{rg}$  et  $\omega_2 \approx \omega_{er}$ , ou encore un pic associé au diagramme de la Fig. 2.3 (b), avec  $\omega_1 \approx \omega_{eg}$  et  $\omega_2 \approx -\omega_{rg}$ . Ces pics non diagonaux présentent l'intérêt de faire ressortir les couplages entre états excités par l'intermédiaire d'éléments de matrice du type  $\langle e|\mu|r\rangle$ , ce qui présente un grand intérêt en spectroscopie non-linéaire. La section 6.2, consacrée à la spectroscopie multidimensionnelle, expose une méthode expérimentale permettant d'avoir ainsi accès à la réponse multidimensionnelle.

### 2.3.3 Susceptibilités d'ordre supérieur

La complexité du calcul de la susceptibilité croît très rapidement avec l'ordre de la non-linéarité. Ainsi la susceptibilité d'ordre 3 comportera 48 termes, que l'on pourra trouver dans les ouvrages spécialisés [10, 9]. Au delà, il sera préférable de ne calculer que les termes résonnants dont la contribution est prépondérante. On peut y parvenir à l'aide de diagrammes similaires aux diagrammes

de Feynman et qui permettent de sélectionner simplement les processus physiquement importants dans des conditions d'excitation données [8].

## 2.4 Modèle à deux niveaux en continu

Considérons un système à deux niveaux  $|a\rangle$  et  $|b\rangle$  en interaction avec le champ électrique d'un faisceau laser continu, de fréquence  $\omega_l$  ( $E(t) = E_0 \cos(\omega_l t)$ ). On suppose  $\omega_a < \omega_b$ . On supposera de plus que l'on est dans le régime quasi-résonnant, ce qui signifie que la fréquence du laser est très proche de la fréquence de résonance du système ( $|\omega_l - \omega_{ba}| \ll \omega_{ba}$ ). Enfin, on supposera que le système est invariant par parité, ce qui signifie que les états propres sont soit pairs soit impairs. Il n'existe donc pas de dipôle permanent dans le système. On peut en déduire la forme de l'opérateur dipôle électrique

$$\hat{\vec{\mu}} \cdot \vec{\epsilon} = \begin{pmatrix} 0 & \mu \\ \mu & 0 \end{pmatrix} \quad (2.57)$$

Dans ce cas, l'éq. 2.34 exprimant la susceptibilité linéaire devient

$$\chi^{(1)}(\omega) = -\frac{\mathcal{N}\mu^2}{\epsilon_0 \hbar} \left( \frac{1}{\omega - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} - \frac{1}{\omega + \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} \right) (\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}) \quad (2.58)$$

On s'intéresse maintenant à la réponse non-linéaire de ce système. On a d'après l'éq. 2.22

$$\rho_{ba}(t) = \mu G_{ba}(t) \otimes (E(t)(\rho_{aa}(t) - \rho_{bb}(t))) \quad (2.59)$$

$$\rho_{aa}(t) = \rho_{aa}^{(0)} + \mu G_{aa}(t) \otimes (E(t)(\rho_{ba}(t) - \rho_{ab}(t))) \quad (2.60)$$

$$\rho_{bb}(t) = \rho_{bb}^{(0)} + \mu G_{bb}(t) \otimes (E(t)(\rho_{ab}(t) - \rho_{ba}(t))) \quad (2.61)$$

Dans le cadre de l'approximation de l'onde tournante, les équations sur le terme de cohérence  $\rho_{ba}(t)$  et sur la différence de population  $\rho_{aa}(t) - \rho_{bb}(t)$  s'écrivent

$$\rho_{ba}(t) = \frac{\mu}{2} G_{ba}(t) \otimes (\mathcal{E}(t)(\rho_{aa}(t) - \rho_{bb}(t))) \quad (2.62)$$

$$\rho_{aa}(t) - \rho_{bb}(t) = \left( \rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)} \right) - \frac{\mu}{2} (G_{aa}(t) + G_{bb}(t)) \otimes (\mathcal{E}(t)\rho_{ab}(t) - \mathcal{E}^*(t)\rho_{ba}(t)) \quad (2.63)$$

En régime forcé, les populations prennent des valeurs constantes et le terme de cohérence oscille à la fréquence du laser. Les deux équations ci-dessus deviennent

$$\rho_{ba}(t) = \frac{\mu}{2} G_{ba}(\omega_l) \mathcal{E}(t) (\rho_{aa} - \rho_{bb}) = \tilde{\rho}_{ba} \exp(-i\omega_l t) \quad (2.64)$$

$$\rho_{aa} - \rho_{bb} = \left( \rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)} \right) - \frac{\mu}{2} (G_{aa}(\omega = 0) + G_{bb}(\omega = 0)) (\mathcal{E}(t)\rho_{ab}(t) - \mathcal{E}^*(t)\rho_{ba}(t)) \quad (2.65)$$

où

$$\tilde{\rho}_{ba} = \frac{\mu}{2} G_{ba}(\omega_l) E_0 (\rho_{aa} - \rho_{bb})$$

En utilisant l'expression 2.19 des fonctions de Green dans l'espace des fréquences, on obtient

$$\tilde{\rho}_{ba} = -\frac{\mu E_0}{2\hbar} \frac{1}{\omega_l - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) \quad (2.66)$$

et

$$\rho_{aa} - \rho_{bb} = (\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}) + \frac{\mu}{2i\hbar} \left( \frac{1}{\Gamma_{aa}} + \frac{1}{\Gamma_{bb}} \right) \frac{\mu}{2\hbar} |E_0|^2 \left( \frac{1}{\omega_l - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} - \frac{1}{\omega_l - \omega_{ba} - i\Gamma_{ba}} \right) (\rho_{aa} - \rho_{bb})$$

d'où l'on déduit

$$\rho_{aa} - \rho_{bb} = \rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)} - \frac{\mu^2 E_0^2}{2\hbar^2} \left( \frac{1}{\Gamma_{aa}} + \frac{1}{\Gamma_{bb}} \right) \Gamma_{ba} \frac{1}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) \quad (2.67)$$

Le même résultat peut être obtenu directement à partir de l'équation de Bloch, qui s'écrit ici

$$\begin{aligned} \left( i \frac{d}{dt} - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba} \right) \rho_{ba}(t) &= -\frac{\mu E(t)}{\hbar} (\rho_{aa}(t) - \rho_{bb}(t)) \\ \left( i \frac{d}{dt} + i\Gamma_{aa} \right) (\rho_{aa} - \rho_{aa}^{(0)}) &= -\frac{\mu E(t)}{\hbar} (\rho_{ba} - \rho_{ab}) \\ \left( i \frac{d}{dt} + i\Gamma_{bb} \right) (\rho_{bb} - \rho_{bb}^{(0)}) &= \frac{\mu E(t)}{\hbar} (\rho_{ab} - \rho_{ba}) \end{aligned}$$

On cherche une solution stationnaire dans le cadre de l'approximation de l'onde tournante, soit  $\rho_{ba} = \tilde{\rho}_{ba} \exp(-i\omega_l t)$ , avec  $\tilde{\rho}_{ba}$ ,  $\rho_{aa}$  et  $\rho_{bb}$  constants. Les trois équations ci-dessus deviennent

$$\begin{aligned} (\omega_l - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}) \tilde{\rho}_{ba} &= -\frac{\mu E_0}{2\hbar} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) \\ (i\Gamma_{aa}) (\rho_{aa} - \rho_{aa}^{(0)}) &= -\frac{\mu E_0}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{ba} - \tilde{\rho}_{ab}) \\ (i\Gamma_{bb}) (\rho_{bb} - \rho_{bb}^{(0)}) &= -\frac{\mu E_0}{2\hbar} (\tilde{\rho}_{ab} - \tilde{\rho}_{ba}) \end{aligned}$$

ce qui nous permet de retrouver l'éq. 2.67.

Posons

$$\frac{1}{\Gamma} = \frac{1}{2} \left( \frac{1}{\Gamma_{aa}} + \frac{1}{\Gamma_{bb}} \right) : \text{Temps de vie moyen} \quad (2.68)$$

et

$$\Omega_1 = -\frac{\mu E_0}{\hbar} \sqrt{\frac{\Gamma_{ba}}{\Gamma}} \quad (2.69)$$

L'éq. 2.67 devient

$$\rho_{aa} - \rho_{bb} = (\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}) - \frac{\Omega_1^2}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) \quad (2.70)$$

d'où l'on déduit la différence des populations

$$\rho_{aa} - \rho_{bb} = (\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}) \frac{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2 + \Omega_1^2} \quad (2.71)$$

$$= (\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}) \left( 1 - \frac{\Omega_1^2}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2 + \Omega_1^2} \right) \quad (2.72)$$

La différence de populations peut encore s'écrire

$$\rho_{aa} - \rho_{bb} = \frac{\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}}{1 + I/I_S} \quad (2.73)$$

où  $I$  est l'intensité du faisceau, proportionnelle à  $\Omega_1^2$ , et  $I_S$  est l'intensité de saturation.

La polarisation induite dans le matériau s'écrit

$$P(t) = \mathcal{N} \mu \tilde{\rho}_{ba} \exp(-i\omega_l t) + c.c. \quad (2.74)$$

soit, en notation complexe

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(t) &= 2\mathcal{N} \mu \tilde{\rho}_{ba} \exp(-i\omega_l t) \\ &= \frac{\mathcal{N} \mu^2}{\hbar} \frac{1}{\omega_l - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) E_0 \exp(-i\omega_l t) \end{aligned}$$

Ceci peut se mettre sous la forme

$$\mathcal{P}(t) = \epsilon_0 \chi \mathcal{E}_0 \exp(-i\omega_l t) \quad (2.75)$$

avec

$$\begin{aligned} \chi &= \chi^{(1)}(\omega_l) \frac{\rho_{aa} - \rho_{bb}}{\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}} \\ &= \frac{\chi^{(1)}(\omega_l)}{1 + I/I_S} \end{aligned} \quad (2.76)$$

$\chi$  est la susceptibilité non-linéaire effectivement vue par le système, qui dépend maintenant de l'intensité. On pourrait évidemment développer cette expression en puissance de  $I/I_S$  et retrouver un développement de la polarisation faisant intervenir  $\chi^{(1)}$ ,  $\chi^{(3)}$ ,  $\chi^{(5)}$ , etc.

A intensité très faible devant l'intensité de saturation ( $I \ll I_S$ ),  $\rho_{aa} - \rho_{bb}$  est très proche de  $\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}$  et la susceptibilité est égale à la susceptibilité linéaire. Au contraire, les phénomènes non linéaires commencent à apparaître quand l'intensité est de l'ordre de l'intensité de saturation. A l'extrême, quand  $I \gg I_S$ ,  $\rho_{aa} - \rho_{bb}$  tend vers 0 et la susceptibilité tend aussi vers 0. Le système



devient transparent : l'absorption est saturée.

## Chapitre 3

# Quelques phénomènes d'optique non-linéaire

### 3.1 Equation de propagation

Si l'on tient compte de la réponse non-linéaire du milieu, l'équation de propagation peut s'écrire

$$\Delta \vec{E} - \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(1)}}{\partial t^2} + \underbrace{\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(2)}}{\partial t^2} + \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(3)}}{\partial t^2} + \dots}_{\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{(NL)}}{\partial t^2}} \quad (3.1)$$

où l'on a explicité le terme non-linéaire de la polarisation  $\vec{P}^{(NL)}(t)$ . Ce terme source supplémentaire dans l'équation de propagation est à l'origine de nombreux processus qui font l'objet de ce chapitre.

Par la suite, on ne s'intéressera pas aux effets tensoriels de la réponse non-linéaire et on considérera donc uniquement des grandeurs scalaires. De plus, on négligera l'angle de double réfraction, habituellement inférieur à quelques degrés, ce qui nous permettra de négliger le terme  $\vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E})$  dans l'équation de propagation. En utilisant la notation complexe comme définie au chapitre 1, l'équation de propagation devient alors

$$\Delta \mathcal{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial t^2} - \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{P}^{(1)}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{P}^{(NL)}}{\partial t^2} \quad (3.2)$$

Dans le cadre de l'approximation paraxiale, introduite à la section 1.5, on peut écrire la composante de fréquence  $\omega$  du champ électrique sous la forme

$$\mathcal{E}(x, y, z, \omega) = \mathcal{A}(x, y, z, \omega) \exp(ik(\omega)z) \quad (3.3)$$

où  $\mathcal{A}(x, y, z, \omega)$  est une enveloppe supposée lentement variable avec  $z$ .  $k(\omega) = n(\omega)\omega/c$  est le

vecteur d'onde dans le milieu. Avec ces nouvelles notations, l'éq. 1.53 devient

$$\frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial y^2} + 2ik(\omega) \frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = 0 \quad (3.4)$$

Si l'on tient compte du terme non-linéaire dans la réponse du milieu, il convient d'ajouter à l'équation ci-dessus un terme source obtenu par transformée de Fourier inverse du membre de droite de l'éq. 3.2. On obtient alors

$$\frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial y^2} + 2ik(\omega) \frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = -\frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \mathcal{P}^{(NL)}(x, y, z, \omega) \exp(-ik(\omega)z) \quad (3.5)$$

qui est l'équation de propagation en régime non-linéaire dans le cadre de l'approximation paraxiale. Le traitement des phénomènes transverses requiert des simulations numériques souvent ardues et qui sortent du cadre de ce cours. On se contentera par la suite de la version unidimensionnelle de l'équation de propagation, valable pour des ondes planes. On écrit alors

$$\frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = \frac{i\omega}{2n(\omega)\epsilon_0 c} \mathcal{P}^{(NL)}(z, \omega) \exp(-ik(\omega)z) \quad (3.6)$$

Cette équation sera utilisée en travaux dirigés dans le cas de la propagation en régime soliton d'une impulsion brève. Dans la suite de ce chapitre nous nous limiterons au cas particulier où le champ est constitué d'une superposition d'ondes monochromatiques

$$\mathcal{E}(\vec{r}, t) = \sum_i \mathcal{E}_i(\vec{r}) \exp(-i\omega_i t) \quad (3.7)$$

soit

$$\mathcal{E}(\vec{r}, \omega) = 2\pi \sum_i \mathcal{E}_i(\vec{r}) \delta(\omega - \omega_i) \quad (3.8)$$

La polarisation non-linéaire est alors elle aussi constituée d'une somme discrète de pics de Dirac

$$\mathcal{P}(\vec{r}, \omega) = 2\pi \sum_i \mathcal{P}_i(\vec{r}) \delta(\omega - \omega_i) \quad (3.9)$$

En remplaçant dans l'éq. 3.6, on obtient

$$\begin{aligned} 2\pi \sum_i \frac{d\mathcal{A}_i}{dz} \delta(\omega - \omega_i) &= \frac{i\omega}{2n(\omega)\epsilon_0 c} 2\pi \sum_i \mathcal{P}_i^{(NL)}(z) \exp(-ik(\omega)z) \delta(\omega - \omega_i) \\ &= 2\pi \sum_i \frac{i\omega_i}{2n(\omega_i)\epsilon_0 c} \mathcal{P}_i^{(NL)}(z) \exp(-ik(\omega_i)z) \delta(\omega - \omega_i) \end{aligned} \quad (3.10)$$

En identifiant les coefficients des distributions de Dirac pour chaque onde de fréquence  $\omega_i$ , on

obtient un système non-linéaire d'équations différentielles couplées

$$\frac{d\mathcal{A}_i}{dz} = \frac{i\omega_i}{2n_i\epsilon_0 c} \mathcal{P}_i^{(NL)} \exp(-ik_i z) \quad (3.11)$$

où  $n_i = n(\omega_i)$  et  $k_i = k(\omega_i) = n_i\omega_i/c$ .

C'est ce système non-linéaire que nous allons résoudre dans la suite de ce chapitre.

## 3.2 Optique non-linéaire du second ordre

Les processus non-linéaires du second ordre résultent de la polarisation d'ordre deux induite dans le matériau

$$P_i^{(2)}(t) = \epsilon_0 \int \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \quad (3.12)$$

### 3.2.1 Importance de la symétrie

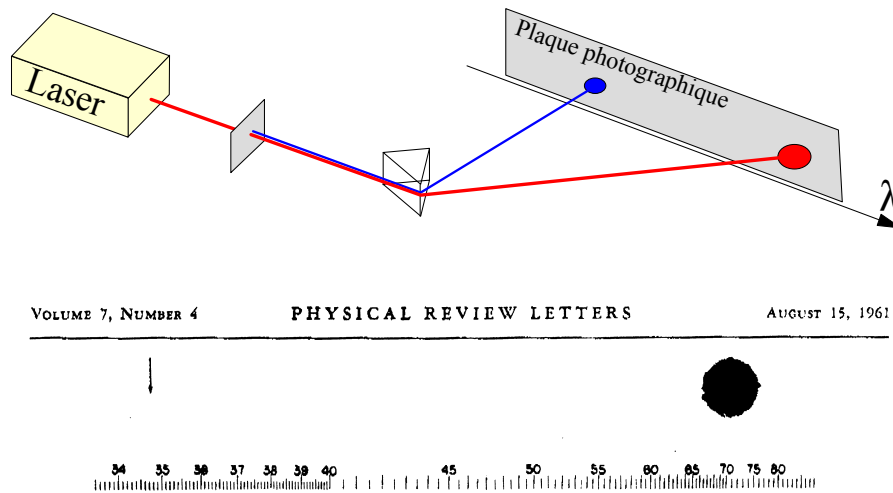
Dans une transformation  $\vec{r} \rightarrow -\vec{r}$ , les vecteurs sont transformés en leurs opposés, soit  $\vec{E} \rightarrow -\vec{E}$  et  $\vec{P} \rightarrow -\vec{P}$ . D'après l'éq. 3.12, on peut donc en déduire que  $\chi^{(2)} \rightarrow -\chi^{(2)}$  lors d'une telle transformation. Considérons maintenant le cas particulier d'un matériau dit centro-symétrique, ce qui signifie qu'il admet un centre d'inversion et qu'il est donc inchangé par la symétrie ponctuelle  $\vec{r} \rightarrow -\vec{r}$ . En conséquence, la susceptibilité non-linéaire du matériau doit rester identique lors de cette symétrie, d'où l'on peut déduire  $\chi^{(2)} = -\chi^{(2)}$  et donc  $\chi^{(2)} = 0$ . En conclusion, la réponse non-linéaire du deuxième ordre d'un matériau centro-symétrique est rigoureusement nulle. Le raisonnement peut évidemment s'étendre à toutes les susceptibilités non-linéaires d'ordre pair.

### 3.2.2 Inventaire des effets non-linéaires du deuxième ordre

L'éq. 3.12 montre que le mélange de fréquences entre les composantes spectrales  $\omega_1$  et  $\omega_2$  du champ électrique donne naissance à un terme de la polarisation non-linéaire oscillant à la fréquence  $\omega_1 + \omega_2$ . Ce processus de somme de fréquences peut être caractérisé à l'aide de la notation complète du tenseur susceptibilité,  $\chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2)$ . Comme  $\omega_1$  et  $\omega_2$  prennent dans l'intégrale de l'éq. 3.12 des valeurs positives et négatives, ce processus peut aussi correspondre à un phénomène de différence de fréquences (par exemple si  $\omega_1 > 0$  et  $\omega_2 < 0$ ). Le tableau ci-dessous fait l'inventaire des principaux processus non-linéaires du deuxième ordre (les fréquences sont ici supposées toutes positives).

$\chi^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega)$	Doublage de fréquence
$\chi^{(2)}(-\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2)$	Somme de fréquences
$\chi^{(2)}(-(\omega_1 - \omega_2); \omega_1, -\omega_2)$	Différence de fréquences
$\chi^{(2)}(0; \omega, -\omega)$	Redressement optique
$\chi^{(2)}(-\omega; \omega, 0)$	Effet électro-optique

### 3.2.3 Doublage de fréquence



**Figure 3.1:** Première observation du phénomène de doublage de fréquence [11]. Le faisceau transmis par le cristal non-linéaire est dispersé à l'aide d'un prisme afin d'isoler la composante à  $2\omega$ . L'image du faisceau doublé, normalement présente sous la flèche, a malencontreusement été effacée car confondue avec une tache lors de l'édition du manuscrit par *Physical Review Letters*.

On s'intéresse ici au cas où un faisceau monochromatique de fréquence  $\omega_1$  se propage dans un cristal non-linéaire. Le champ complexe du faisceau incident s'écrira  $\mathcal{E}_1(z, t) = \mathcal{E}_1(z) \exp(-i\omega_1 t)$ , donnant lieu à une polarisation non-linéaire du second ordre s'écrivant

$$\begin{aligned}
 P^{(2)} &= \epsilon_0 \chi^{(2)} \left( \frac{\mathcal{E}_1 + \mathcal{E}_1^*}{2} \right)^2 \\
 &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{4} \left( \underbrace{\mathcal{E}_1^2 + \mathcal{E}_1^{*2}}_{\text{doublage}} + \underbrace{2\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_1^*}_{\text{redressement}} \right)
 \end{aligned} \tag{3.13}$$

Seul le premier terme, correspondant au doublage de fréquence, sera conservé ici. En utilisant la notation complexe, on obtient

$$\mathcal{P}_2^{(2)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \mathcal{E}_1^2 = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \mathcal{A}_1(z)^2 \exp(2ik_1 z) \tag{3.14}$$

Cette polarisation oscille à la fréquence  $\omega_2 = 2\omega_1$  et donne donc naissance à un champ  $\mathcal{A}_2(z)$  se

propageant dans le cristal. On parle de doublage de fréquence, ou encore de génération de second harmonique. Ce champ obéit à l'éq. 3.11, qui s'écrit ici

$$\frac{d\mathcal{A}_2}{dz} = \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2c} \mathcal{A}_1(z)^2 \exp(i\Delta kz) \quad (3.15)$$

où  $\Delta k = 2k_1 - k_2$ . De même,  $\mathcal{A}_1(z)$  obéit à une équation de propagation faisant intervenir un terme source en  $\mathcal{A}_2(z)\mathcal{A}_1(z)^*$  correspondant au processus de différence de fréquences entre le champ à  $2\omega_1$  et le champ à  $\omega_1$ . On obtient donc un système de deux équations différentielles couplées. Nous nous limiterons ici au cas simple où la génération de second harmonique est très faible, ce qui signifie que le champ fondamental peut être considéré comme à peu près constant lors de la propagation dans le cristal ( $\mathcal{A}_1(z) \approx \mathcal{A}_1(0) = \mathcal{A}_1$ ). L'éq. 3.15 peut être alors aisément résolue :

$$\mathcal{A}_2(z) = \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2c} \mathcal{A}_1^2 \frac{\exp(i\Delta kz) - 1}{i\Delta k} \quad (3.16)$$

L'intensité du second harmonique,  $I_2(z) \propto |\mathcal{A}_2(z)|^2 \propto \sin^2 \Delta kz/2$ , est donc une fonction périodique de  $z$ . La période a pour valeur  $2L_C$ , où  $L_C = \pi/\Delta k$  est par définition la longueur de cohérence. C'est la longueur au delà de laquelle la puissance du second harmonique cesse d'augmenter en raison des interférences destructives entre le faisceau engendré au point  $z$ , dont la phase est  $2k_1z$ , et celui qui a été engendré plus tôt dans le cristal puis s'est propagé avec le vecteur d'onde  $k_2$ , donnant lieu à une phase  $k_2z$ . Ce phénomène limite fortement l'épaisseur utilisable pour le cristal non-linéaire, et donc la quantité de second harmonique engendré. Pour obtenir un taux de conversion optimal il est nécessaire de s'affranchir de ce processus en se plaçant dans des conditions telles que  $\Delta k = 0$ , ce qui correspond à la condition dite d'*accord de phase*. Dans le cas du doublage de fréquence cette condition s'écrit  $k_2 = 2k_1$ , soit  $n_2 = n_1$ . Cette condition n'est pas réalisée naturellement dans le matériau car l'indice est en général plus grand à la fréquence double qu'à la fréquence du fondamental en raison de la dispersion chromatique.

Il existe cependant deux méthodes couramment employées permettant de réaliser l'accord de phase. La première technique, dite de l'accord de phase par biréfringence et schématisée Fig. 3.2, consiste à utiliser un cristal non-linéaire biréfringent de sorte que le fondamental et le second harmonique soient polarisés selon des axes perpendiculaires. Si la biréfringence est suffisante (par exemple  $n_e(2\omega_1) < n_o(\omega_1)$ ) il sera possible de choisir un angle  $\theta$  tel que  $n_e(\theta, 2\omega_1) = n_o(\omega_1)$ , réalisant ainsi la condition d'accord de phase.

L'autre technique, dite du quasi-accord de phase et schématisée Fig. 3.3, consiste à utiliser un matériau constitué d'un empilement alterné de couches de sorte que l'on change le signe de la non-linéarité à chaque longueur de cohérence. On introduit ainsi un déphasage de  $\pi$  à chaque interface qui vient exactement compenser le déphasage  $\Delta k L_C = \pi$  résultant de la propagation. En pratique,

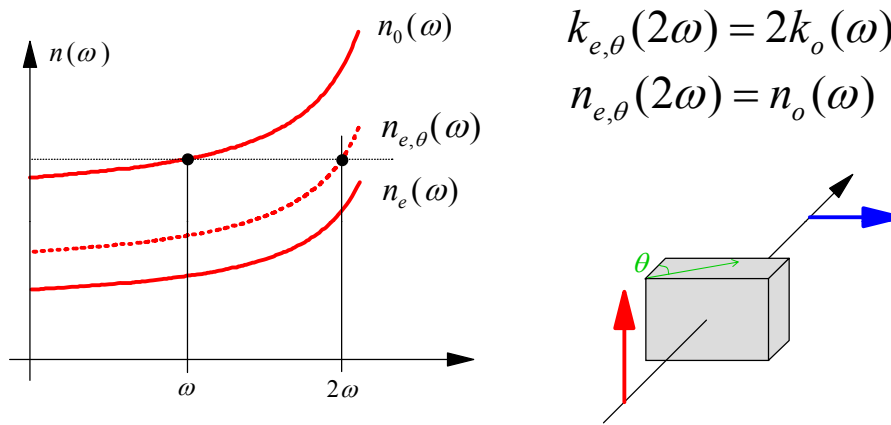


Figure 3.2: Accord de phase par biréfringence

le renversement du  $\chi^{(2)}$  résulte de l'inversion de domaines ferro-électriques.

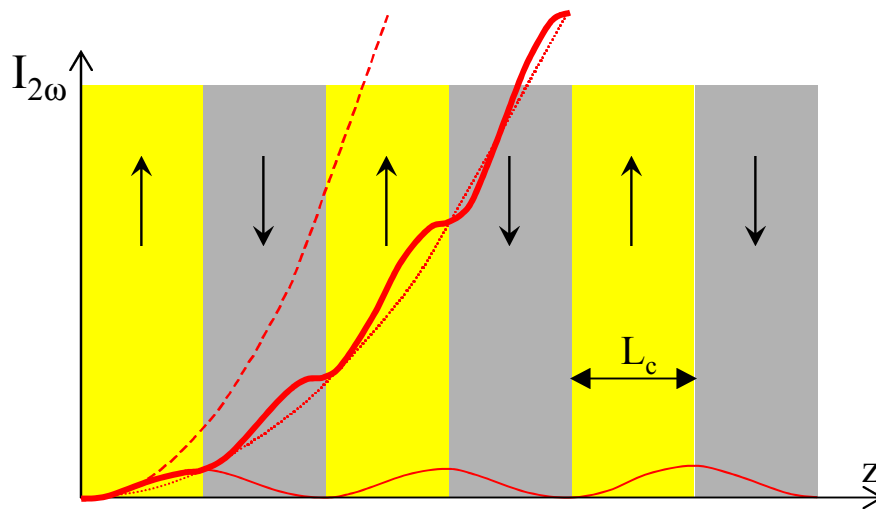


Figure 3.3: Quasi accord de phase

Dans le cas où  $\Delta k = 0$ , l'éq. 3.15 devient

$$\frac{d\mathcal{A}_2}{dz} = \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2c} \mathcal{A}_1^2 \quad (3.17)$$

dont la solution s'écrit simplement

$$\mathcal{A}_2(z) = \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2c} \mathcal{A}_1^2 z \quad (3.18)$$

Le champ est donc proportionnel à  $z$  et la puissance du second harmonique varie comme  $z^2$ . Cette variation parabolique ne sera valable que dans le régime de faible conversion dans lequel nous sommes placés ici, puisque la variation réelle de la puissance sera en fait bornée supérieurement par la puissance incidente du fondamental.

### 3.2.4 Différence de fréquences et amplification paramétrique

On considère ici le cas où deux faisceaux de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  se propagent dans un matériau non-linéaire du second ordre (on suppose  $\omega_1 > \omega_2$ ). On s'attend à voir apparaître différents phénomènes comme le doublage de chacune des deux ondes, la somme de fréquences et la différence de fréquences, ainsi que des phénomènes en cascade obtenus à partir des processus précédents. On supposera néanmoins que parmi tous ces phénomènes, seule la différence de fréquences donnera lieu à une conversion efficace, condition qui sera réalisée si seul ce processus est proche des conditions d'accord de phase. Trois ondes vont donc se propager dans le cristal, les deux ondes incidentes ainsi qu'une onde de fréquence  $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ . On parle de mélange à trois ondes, ou Three Wave Mixing. La condition d'accord de phase s'écrira ici  $\Delta k = 0$  où  $\Delta k = k_1 - k_2 - k_3$ . On constate que dès que le processus  $\omega_1 - \omega_2 \rightarrow \omega_3$  est en accord de phase, il en va de même des processus  $\omega_1 - \omega_3 \rightarrow \omega_2$  et  $\omega_2 + \omega_3 \rightarrow \omega_1$ . La polarisation non-linéaire en résultant pourra s'écrire

$$\begin{aligned} P^{(NL)} &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{4} (\mathcal{E}_1 + \mathcal{E}_1^* + \mathcal{E}_2 + \mathcal{E}_2^* + \mathcal{E}_3 + \mathcal{E}_3^*)^2 \\ &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} (\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* + \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_3^* + \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3) + c.c. \end{aligned} \quad (3.19)$$

où l'on n'a conservé que les termes proches de l'accord de phase. On peut en déduire les polarisations non-linéaires intervenant dans l'équation de propagation de chacune des trois ondes

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_1^{(2)}(z) &= \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3 = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{A}_2 \mathcal{A}_3 e^{i(k_2+k_3)z} \\ \mathcal{P}_2^{(2)}(z) &= \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_3^* = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_3^* e^{i(k_1-k_3)z} \\ \mathcal{P}_3^{(2)}(z) &= \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_2^* e^{i(k_1-k_2)z} \end{aligned}$$

A l'aide de l'éq. 3.11, on peut en déduire le système non-linéaire ci-dessous

$$\begin{aligned} \frac{d\mathcal{A}_1}{dz} &= \frac{i\omega_1 \chi^{(2)}}{2n_1 c} \mathcal{A}_2 \mathcal{A}_3 e^{-i\Delta k z} \\ \frac{d\mathcal{A}_2}{dz} &= \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{2n_2 c} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_3^* e^{i\Delta k z} \\ \frac{d\mathcal{A}_3}{dz} &= \frac{i\omega_3 \chi^{(2)}}{2n_3 c} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_2^* e^{i\Delta k z} \end{aligned}$$



A ce stade, il est préférable d'utiliser des variables réduites,  $\alpha_i(z)$ , pour le champ électrique, grandeurs définies par

$$\alpha_i(z) = \sqrt{\frac{n_i c \epsilon_0}{2 \hbar \omega_i}} \mathcal{A}_i(z) \quad (3.20)$$

Remarquons que le carré de  $\alpha_i(z)$  s'écrit

$$\Phi_i(z) = |\alpha_i(z)|^2 = \frac{n_i c \epsilon_0}{2 \hbar \omega_i} |\mathcal{A}_i(z)|^2 = \frac{n_i c \epsilon_0 |\mathcal{A}_i(z)|^2 / 2}{\hbar \omega_i} \quad (3.21)$$

soit le rapport entre le vecteur de Poynting dans le milieu et l'énergie d'un photon.  $\Phi_i$  est donc le flux de photons dans le matériau, qui s'exprime en nombre de photons par unité de temps et de surface.

Calculons la dérivée de  $\alpha_1$  par rapport à  $z$ :

$$\begin{aligned} \frac{d\alpha_1}{dz} &= \sqrt{\frac{n_1 c \epsilon_0}{2 \hbar \omega_1}} \frac{d\mathcal{A}_1}{dz} \\ &= \sqrt{\frac{n_1 c \epsilon_0}{2 \hbar \omega_1}} \frac{i \omega_1 \chi^{(2)}}{2 n_1 c} \sqrt{\frac{2 \hbar \omega_2}{n_2 c \epsilon_0}} \alpha_2 \sqrt{\frac{2 \hbar \omega_3}{n_3 c \epsilon_0}} \alpha_3 e^{-i \Delta k z} \\ &= i \chi^{(2)} \sqrt{\frac{\hbar \omega_1 \omega_2 \omega_3}{2 \epsilon_0 c^3 n_1 n_2 n_3}} \alpha_2 \alpha_3 e^{-i \Delta k z} \\ &= i \xi \alpha_2 \alpha_3 e^{-i \Delta k z} \end{aligned}$$

où l'on a posé

$$\xi = \chi^{(2)} \sqrt{\frac{\hbar \omega_1 \omega_2 \omega_3}{2 \epsilon_0 c^3 n_1 n_2 n_3}} \quad (3.22)$$

En procédant de même pour  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$ , on obtient le système d'équations couplées

$$\frac{d\alpha_1}{dz} = i \xi \alpha_2 \alpha_3 e^{-i \Delta k z} \quad (3.23)$$

$$\frac{d\alpha_2}{dz} = i \xi \alpha_1 \alpha_3^* e^{i \Delta k z} \quad (3.24)$$

$$\frac{d\alpha_3}{dz} = i \xi \alpha_1 \alpha_2^* e^{i \Delta k z} \quad (3.25)$$

Calculons la dérivée par rapport à  $z$  de  $\Phi_1 = \alpha_1 \alpha_1^*$

$$\begin{aligned} \frac{d\Phi_1}{dz} &= \frac{d\alpha_1}{dz} \alpha_1^* + \alpha_1 \frac{d\alpha_1^*}{dz} \\ &= 2 \operatorname{Re} \alpha_1^* \frac{d\alpha_1}{dz} \\ &= 2 \operatorname{Re} i \xi \alpha_1^* \alpha_2 \alpha_3 e^{-i \Delta k z} \end{aligned} \quad (3.26)$$

De même

$$\frac{d\Phi_2}{dz} = 2 \operatorname{Re} i \xi \alpha_1 \alpha_2^* \alpha_3^* e^{i \Delta k z} \quad (3.27)$$

et

$$\frac{d\Phi_3}{dz} = 2\text{Rei}\xi\alpha_1\alpha_2^*\alpha_3^*e^{i\Delta kz} \quad (3.28)$$

On peut donc en déduire

$$\frac{d\Phi_2}{dz} = \frac{d\Phi_3}{dz} = -\frac{d\Phi_1}{dz} \quad (3.29)$$

En particulier, on en déduit que  $\Phi_2 - \Phi_3$  reste constant. C'est la relation de Manley - Rowe : toute variation sur le flux de photons du faisceau signal se traduit par une variation identique du flux de photons du faisceau complémentaire. Par ailleurs, on déduit aussi l'expression

$$\frac{d}{dz} (\hbar\omega_1\Phi_1 + \hbar\omega_2\Phi_2 + \hbar\omega_3\Phi_3) = 0 \quad (3.30)$$

ce qui signifie que la puissance totale se conserve : le milieu n'absorbe pas d'énergie. Sa non-linéarité sert d'intermédiaire pour assurer un transfert d'énergie entre les trois faisceaux mais aucune énergie n'est déposée dans le matériau.

L'ensemble de ces relations s'interprète facilement en terme de photons : lors du processus d'interaction paramétrique, un photon pompe est détruit tandis qu'un photon signal et un photon complémentaire sont créés.

Dans toute la suite, on se placera dans les conditions d'accord de phase ( $\Delta k = 0$ ). On considérera de plus le cas simple où le faisceau 1 (pompe) reste très intense devant les faisceaux signal et complémentaire lors de toute la propagation non-linéaire dans le cristal. On pourra alors négliger la déplétion du faisceau pompe et supposer que  $\alpha_1$  reste constant. Par un choix judicieux de l'origine des temps, on pourra de plus supposer  $\alpha_1$  imaginaire pur et de partie imaginaire négative ( $\alpha_1 = \alpha_1(0) = -i|\alpha_1(0)|$ ). Les équations de propagation pour le signal et le complémentaire deviennent alors

$$\frac{d\alpha_2}{dz} = i\xi\alpha_1\alpha_3^* = g\alpha_3^* \quad (3.31)$$

$$\frac{d\alpha_3}{dz} = i\xi\alpha_1\alpha_2^* = g\alpha_2^* \quad (3.32)$$

où  $g = i\xi\alpha_1 = \xi|\alpha_1(0)|$ , nombre réel positif, est le gain paramétrique. En dérivant les équations ci-dessus par rapport à  $z$ , on voit que  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$  obéissent à une même équation

$$\frac{d^2\alpha}{dz^2} = g^2\alpha \quad (3.33)$$

On peut donc en déduire la solution pour  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$  :

$$\alpha_2(z) = \alpha_2(0) \cosh gz + \alpha_3^*(0) \sinh gz \quad (3.34)$$

$$\alpha_3(z) = \alpha_3(0) \cosh gz + \alpha_2^*(0) \sinh gz \quad (3.35)$$

Dans le cas particulier où l'on n'injecte que le faisceau signal dans le cristal en plus du faisceau pompe ( $\alpha_3(0) = 0$ ), on obtient

$$\alpha_2(z) = \alpha_2(0) \cosh gz \quad (3.36)$$

$$\alpha_3(z) = \alpha_2^*(0) \sinh gz \quad (3.37)$$

On voit donc que le faisceau signal est amplifié, de façon très similaire à ce qui se produit lors du phénomène d'émission stimulée. Il sera donc possible de réaliser des *amplificateurs paramétriques optiques* (OPA) ou des *oscillateurs paramétriques optiques* (OPO). Ce dernier cas sera traité en détail en TD. Dans un OPO, la courbe de gain est déterminée par les conditions d'accord de phase. Ceci confère à l'OPO un immense avantage par rapport à un laser traditionnel : sa fréquence d'émission pourra être accordée sur une très grande largeur spectrale, simplement en modifiant l'angle ou la température du cristal non-linéaire.

Pour terminer, intéressons nous au cas dégénéré, où  $\omega_2 = \omega_3$ . Il devient alors impossible de distinguer entre signal et complémentaire, et les équations 3.31 et 3.32 se réduisent à l'unique équation

$$\frac{d\alpha_2}{dz} = g\alpha_2^* \quad (3.38)$$

dont la solution s'écrit

$$\begin{aligned} \alpha_2(L) &= \alpha_2(0) \cosh gL + \alpha_2^*(0) \sinh gL \\ &= \operatorname{Re} \alpha_2(0) \exp(gL) + i \operatorname{Im} \alpha_2(0) \exp(-gL) \end{aligned} \quad (3.39)$$

Si l'on revient au champ électrique  $\mathcal{A}(z) = \mathcal{A}_P(z) + i\mathcal{A}_Q(z)$  que l'on a décomposé sur ses deux quadratures P et Q, on voit que le champ après propagation s'écrit

$$\mathcal{A}(L) = \mathcal{A}_P(0)e^{gL} + i\mathcal{A}_Q(0)e^{-gL} \quad (3.40)$$

Contrairement au cas de l'émission stimulée, l'amplification dépend ici de la phase relative du signal et de la pompe. Une quadrature est amplifiée de façon exponentielle, tandis que l'autre quadrature est atténuée. Ce phénomène est analogue au phénomène d'amplification paramétrique en mécanique classique, où la bonne amplification du mouvement dépend de la phase (par exemple dans le cas d'une balançoire où l'on fait varier le moment cinétique de façon périodique).

Par ailleurs, la faculté de pouvoir amplifier une quadrature tout en atténuant l'autre aura de

nombreuses applications en optique quantique en permettant notamment de descendre en dessous du bruit quantique standard pour une des deux quadratures (génération d'états comprimés) [7].

### 3.3 Optique non-linéaire du troisième ordre

Les phénomènes non-linéaires du troisième ordre sont *a priori* d'amplitude plus faible que ceux du deuxième ordre. Ils jouent cependant un rôle très important en optique non-linéaire pour deux raisons. Tout d'abord, dans le cas des matériaux centro-symétriques, nous avons vu qu'il n'existait pas de non-linéarité du second ordre. La non-linéarité du troisième ordre correspond dans ce cas au premier effet non-linéaire observable. La seconde raison sera démontrée plus loin dans cette section : contrairement aux phénomènes du second ordre, certains processus du troisième ordre obéissent automatiquement à l'accord de phase. Dans ce cas, l'effet de la non-linéarité optique pourra se cumuler sur de très grandes distances, voire sur des milliers de kilomètres dans le cas de la propagation d'une impulsion courte le long d'une fibre optique. L'effet sera alors très important et pourra jouer un rôle fondamental sur le profil temporel ou spatial du faisceau après propagation.

#### 3.3.1 Un faisceau incident - effet Kerr optique et absorption à deux photons

Intéressons nous au cas où un seul faisceau, associé au champ  $E(t)$ , est incident sur le matériau. La polarisation non-linéaire du troisième ordre s'écrit alors

$$\begin{aligned} P^{(3)}(t) &= \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t)^3 \\ &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} \left( \mathcal{E}(t)^3 + \mathcal{E}^*(t)^3 + 3\mathcal{E}^*(t)\mathcal{E}(t)^2 + 3\mathcal{E}^*(t)^2\mathcal{E}(t) \right) \end{aligned} \quad (3.41)$$

Si le champ oscille à une fréquence  $\omega$ , les deux premiers termes de l'équation ci-dessus oscilleront à la fréquence  $3\omega$ , ce qui correspond à une génération de troisième harmonique. Cependant, ce phénomène n'est pas particulièrement intéressant car en pratique il est plus efficace d'engendrer la troisième harmonique à l'aide de deux processus du deuxième ordre en cascade : doublage de fréquence  $\omega \rightarrow 2\omega$  puis somme de fréquence  $\omega + 2\omega \rightarrow 3\omega$ . Par la suite, on supposera que les termes en  $\mathcal{E}(t)^3$  n'obéissent pas à la condition d'accord de phase et peuvent donc être négligés. En notation complexe, la polarisation non-linéaire se réduit donc à l'expression

$$\mathcal{P}^{(3)}(t) = \frac{3\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} |\mathcal{E}(t)|^2 \mathcal{E}(t) \quad (3.42)$$

Comme annoncé plus haut, on voit que ce terme de la polarisation non-linéaire a exactement la même phase que le champ électrique : l'accord de phase est automatiquement vérifié. L'effet de ce terme sur la propagation non-linéaire du champ électrique est appelée *effet Kerr optique*. Le cas

de la propagation d'une impulsion brève sera étudié en TD et nous nous limiterons ici au cas d'un champ monochromatique. Nous pouvons donc directement utiliser l'éq. 3.11 qui s'écrit ici

$$\frac{d\mathcal{A}}{dz} = \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} |\mathcal{A}|^2 \mathcal{A} \quad (3.43)$$

Remarquons que, malgré la non-linéarité optique, l'intensité du faisceau reste constante. En effet,

$$\begin{aligned} \frac{d|\mathcal{A}|^2}{dz} &= \mathcal{A}^* \frac{d\mathcal{A}}{dz} + \frac{d\mathcal{A}^*}{dz} \mathcal{A} \\ &= \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} |\mathcal{A}|^2 (\mathcal{A}^* \mathcal{A} - \mathcal{A}^* \mathcal{A}) \\ &= 0 \end{aligned} \quad (3.44)$$

Donc  $|\mathcal{A}(z)| = |\mathcal{A}(0)| = |\mathcal{E}_0|$ . L'éq. 3.43 devient

$$\frac{d\mathcal{A}}{dz} = \frac{3i\omega\chi^{(3)}|\mathcal{E}_0|^2}{8nc} \mathcal{A} \quad (3.45)$$

La solution de l'équation ci-dessus s'obtient immédiatement

$$\mathcal{A}(z) = \mathcal{A}(0) \exp(i\varphi_{NL}(z)) \quad (3.46)$$

où

$$\varphi_{NL}(z) = \frac{3\omega\chi^{(3)}}{8nc} |\mathcal{E}_0|^2 z \quad (3.47)$$

On remarque que le déphasage non-linéaire  $\varphi_{NL}(z)$  est proportionnel à la densité de puissance,  $I$ , du faisceau lumineux. On l'écrit en général sous la forme

$$\varphi_{NL}(z) = \frac{\omega}{c} n_2 I z \quad (3.48)$$

où  $n_2$ , quantité proportionnelle à  $\chi^{(3)}$ , est par définition l'*indice non-linéaire* du matériau et s'exprime en  $\text{m}^2/\text{W}$ . En revenant à l'expression du champ électrique  $\mathcal{E}(z)$ , on voit que celui-ci se met sous la forme

$$\mathcal{E}(z) = \mathcal{E}(0) \exp\left(i\frac{\omega}{c}(n + n_2 I)z\right) \quad (3.49)$$

Tout se passe comme si l'indice de réfraction du milieu devait être remplacé par la quantité dépendant de l'intensité  $n(I) = n + n_2 I$ .

Un exemple de manifestation de l'effet Kerr optique est le phénomène d'autofocalisation. Celui-ci résulte du fait que dans le cas d'un faisceau présentant une extension transverse finie, le déphasage

non-linéaire n'est pas uniforme le long du faisceau :

$$\varphi_{NL}(x, y, z) = \frac{\omega}{c} n_2 I(x, y) z \quad (3.50)$$

Par exemple, dans le cas d'un faisceau gaussien, le chemin optique vu par le faisceau lumineux sera plus important au centre du faisceau que sur la périphérie. Cette plus grande épaisseur optique au centre du faisceau se traduit par une lentille effective, appelée *lentille de Kerr*, qui a pour effet de focaliser le faisceau. On parle alors d'autofocalisation.

### 3.3.2 Deux faisceaux incidents - effet Kerr croisé

Considérons le cas où deux faisceaux non colinéaires, appelés pompe et signal, interagissent dans un matériau non-linéaire. Les vecteurs d'onde de ces deux faisceaux seront notés respectivement  $\vec{k}_P$  et  $\vec{k}_S$ . La polarisation non-linéaire du troisième ordre induite dans le matériau s'écrit alors

$$P^{(3)}(\vec{r}, t) = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} (\mathcal{E}_P(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_P^*(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_S(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_S^*(\vec{r}, t))^3 \quad (3.51)$$

Le développement de cette expression fait apparaître un grand nombre de termes. Considérons l'un d'entre eux, par exemple le terme  $\mathcal{E}_P(\vec{r}, t)\mathcal{E}_P(\vec{r}, t)\mathcal{E}_S^*(\vec{r}, t)$ . Sa dépendance spatiale s'écrit  $\exp(i(2\vec{k}_P - \vec{k}_S) \cdot \vec{r})$ . Ce terme de la polarisation est donc à l'origine du rayonnement d'une onde dont la phase spatiale varie selon  $(2\vec{k}_P - \vec{k}_S) \cdot \vec{r}$ , ce qui signifie que l'onde se propage dans la direction indiquée par le vecteur  $2\vec{k}_P - \vec{k}_S$ . Cet effet peut être interprété de la façon suivante : L'interférence entre les faisceaux pompe et signal induit un réseau dans le matériau, le vecteur d'onde associé à ce réseau s'écrivant  $\vec{k}_P - \vec{k}_S$ . Le faisceau pompe est diffracté sur ce réseau, ce qui fait passer sa direction de  $\vec{k}_P$  à  $\vec{k}_P + \vec{k}_P - \vec{k}_S = 2\vec{k}_P - \vec{k}_S$ . Ce phénomène de diffraction sur un réseau induit est l'un des exemples des nombreux processus non-linéaires intervenant dans cette configuration.

Par la suite, nous nous intéresserons uniquement à la propagation du faisceau signal, ce qui correspond à une situation expérimentale où l'on aurait bloqué la propagation des autres faisceaux à l'aide d'un diaphragme placé après le matériau non-linéaire. Le faisceau pompe, la diffraction sur le réseau induit de la pompe et du signal étant bloqué par le diaphragme, seuls nous intéressent les termes de l'éq. 3.51 pour lesquels la phase spatiale est en  $\vec{k}_S \cdot \vec{r}$ . Ceux-ci sont soit du type  $\mathcal{E}_P \mathcal{E}_P^* \mathcal{E}_S$ , soit du type  $\mathcal{E}_S \mathcal{E}_S^* \mathcal{E}_S$ . En écrivant la polarisation en notation complexe, et en comptant le nombre de fois où chacun des termes apparaît, on obtient

$$\mathcal{P}^{(3)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} (6|\mathcal{E}_P|^2 + 3|\mathcal{E}_S|^2) \mathcal{E}_S \quad (3.52)$$

En notant l'analogie entre cette expression et l'éq. 3.42, on peut en déduire directement l'expression

du déphasage non-linéaire du faisceau sonde :

$$\varphi_{NL}(z) = \frac{\omega}{c}(n_2 I_S + 2n_2 I_P)z \quad (3.53)$$

Le premier terme correspond à l'effet Kerr optique du faisceau signal, phénomène intervenant même en l'absence du faisceau pompe et déjà étudié plus haut. Le second terme correspond à l'effet Kerr optique induit par le faisceau pompe sur le faisceau signal, appelé effet Kerr croisé. En pratique, on s'intéressera souvent au cas où le faisceau pompe est beaucoup plus intense que le faisceau signal ( $I_P \gg I_S$ ), et le second terme sera donc prédominant.

L'effet Kerr croisé a de nombreuses applications, notamment dans le domaine de la commutation tout-optique. De plus, la possibilité de mesurer la puissance d'un faisceau lumineux à l'aide du déphasage introduit sur un autre faisceau sera d'une grande utilité en optique quantique.

### 3.3.3 Trois faisceaux incidents - conjugaison de phase

Dans le cas où trois faisceaux sont incidents sur le matériau le nombre de processus non-linéaires accessibles augmente encore. Nous nous limiterons ici à une configuration particulière où deux faisceaux pompe contra-propagatifs,  $\mathcal{E}_P$  et  $\mathcal{E}'_P$ , interagissent avec un troisième faisceau appelé signal,  $\mathcal{E}_S$ . On s'intéresse seulement au faisceau émis dans la direction opposée à celle du signal, soit  $-\vec{k}_S$ . La polarisation non-linéaire s'écrit

$$P^{(3)}(\vec{r}, t) = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} (\mathcal{E}_P(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_P^*(\vec{r}, t) + \mathcal{E}'_P(\vec{r}, t) + \mathcal{E}'_P^*(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_S(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_S^*(\vec{r}, t))^3 \quad (3.54)$$

En suivant la même démarche que celle utilisée précédemment, on voit que seul le terme en  $\mathcal{E}_P \mathcal{E}'_P \mathcal{E}_S^*$  donnera lieu à un champ se propageant dans la bonne direction. En effet, le vecteur d'onde associé à ce terme s'écrit  $\vec{k}_P + \vec{k}'_P - \vec{k}_S = \vec{k}_P - \vec{k}_P - \vec{k}_S = -\vec{k}_S$ . Une propriété remarquable de ce terme en  $\mathcal{E}_P \mathcal{E}'_P \mathcal{E}_S^*$  est qu'il fait apparaître le conjugué complexe du champ sonde. Il s'agit du phénomène de *conjugaison de phase* et l'ensemble du dispositif est appelé un miroir à conjugaison de phase. Contrairement au cas d'un miroir ordinaire, le faisceau "réfléchi" n'obéit pas aux lois de Descartes puisqu'il est réémis exactement dans la direction inverse du faisceau incident. De plus, en raison de la conjugaison de phase, le front d'onde du faisceau réémis se trouve retourné, ce qui trouve des applications pour compenser les phénomènes de distorsions de front d'onde.

### 3.3.4 Absorption à deux photons

Considérons maintenant le cas où la susceptibilité du troisième ordre est une grandeur complexe et reprenons le calcul effectué plus haut portant sur la variation avec  $z$  de  $|\mathcal{A}(z)|^2$  (voir éq. 3.44) :

$$\begin{aligned}
 \frac{d|\mathcal{A}|^2}{dz} &= \mathcal{A}^* \frac{d\mathcal{A}}{dz} + \frac{d\mathcal{A}^*}{dz} \mathcal{A} \\
 &= \frac{3i\omega}{8nc} |\mathcal{A}|^2 \left( \mathcal{A}^* \chi^{(3)} \mathcal{A} - \chi^{(3)*} \mathcal{A}^* \mathcal{A} \right) \\
 &= -\frac{3\omega}{4nc} \text{Im}\chi^{(3)} |\mathcal{A}(z)|^4
 \end{aligned} \tag{3.55}$$

équation que l'on peut réexprimer sous la forme

$$\frac{dI(z)}{dz} = -\alpha_2 I(z)^2 \tag{3.56}$$

où  $\alpha_2$ , quantité proportionnelle à  $\text{Im}\chi^{(3)}$ , est par définition le coefficient d'absorption à deux photons. En effet, contrairement à l'absorption habituelle, à un photon, le taux d'atténuation de l'intensité temporelle est non pas proportionnel à l'intensité mais à l'intensité élevée au carré. On peut en outre montrer que la partie imaginaire de la susceptibilité du troisième ordre présente une résonance très marquée lorsque qu'une transition du système est proche de deux fois la fréquence du laser excitateur.





# Chapitre 4

## Des lasers continus aux lasers femtosecondes

Le principe du laser [12] fait intervenir deux éléments, un amplificateur et un mécanisme de bouclage. Comme en électronique, on obtient alors dans certaines conditions, i.e. si le gain est suffisamment élevé, une oscillation.

Dans le domaine optique, le mécanisme de bouclage est assuré par une *cavité optique*, qui fera l'objet de la section 4.1, tandis que l'amplification résulte de l'émission stimulée (section 4.2). Nous étudierons le laser continu en régime stationnaire à la section 4.3 avant d'aborder la génération d'impulsions femtosecondes à l'aide de lasers à modes bloqués, d'amplificateurs, ou de sources secondaires reposant sur des processus non-linéaires (section 4.4).

### 4.1 Cavité optique

#### 4.1.1 Modes longitudinaux

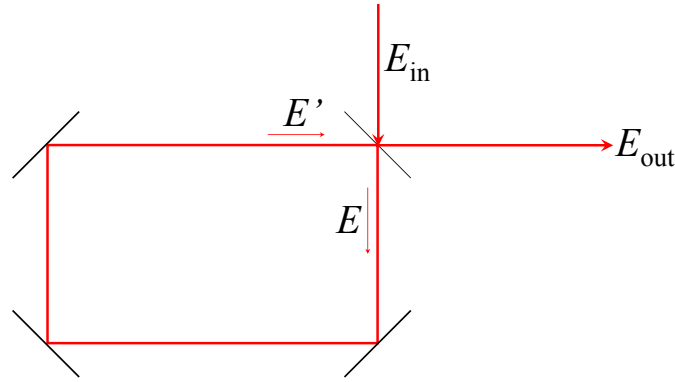
Une cavité laser peut être soit linéaire soit circulaire. Nous considérerons ce dernier cas dans cette partie mais les résultats sont similaires dans le cas d'une cavité linéaire.

On suppose que le miroir de couplage, ou de sortie, de la cavité est caractérisé par un coefficient de réflexion  $\sqrt{R}$  et un coefficient de transmission  $\sqrt{T}$  (en amplitude). Les relations d'entrée-sortie sur le miroir de couplage s'écrivent ainsi

$$\mathcal{E} = \sqrt{T}\mathcal{E}_{in} + \sqrt{R}\mathcal{E}' \quad (4.1)$$

$$\mathcal{E}_{out} = -\sqrt{R}\mathcal{E}_{in} + \sqrt{T}\mathcal{E}' \quad (4.2)$$

Le signe  $-$  dans l'éq. 4.2 résulte de la conservation de l'énergie. Par ailleurs, on suppose que



**Figure 4.1:** *Cavité circulaire*

l'intensité du faisceau est multipliée par un facteur  $\exp(-A)$  à chaque tour de cavité, et que le champ subit un déphasage  $\varphi$ . Dans le cas où la cavité est vide, ce déphasage peut s'écrire  $\varphi = \omega L/c + \varphi_G$ , le premier terme correspondant au chemin optique vu par une onde monochromatique de fréquence  $\omega$ , tandis que le terme  $\varphi_G$  inclut des corrections d'origines diverses (phase de Gouy à laquelle il faudra éventuellement ajouter le déphasage intervenant lors des réflexions sur les autres miroirs).

La relation de bouclage liant les champs  $\mathcal{E}$  et  $\mathcal{E}'$  s'écrit donc

$$\mathcal{E}' = \mathcal{E} e^{-A/2} e^{i\varphi} \quad (4.3)$$

En remplaçant dans l'éq. 4.1, on obtient

$$\mathcal{E} = \sqrt{T}\mathcal{E}_{in} + \sqrt{R} e^{-A/2} e^{i\varphi} \mathcal{E} \quad (4.4)$$

soit,

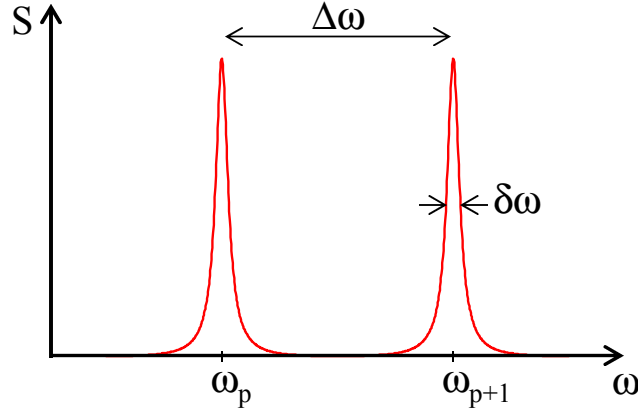
$$\mathcal{E} = \frac{\sqrt{T}}{1 - \sqrt{R} e^{-A/2} e^{i\varphi}} \mathcal{E}_{in} \quad (4.5)$$

d'où

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{out} &= \left( -\sqrt{R} + \frac{T e^{-A/2} e^{i\varphi}}{1 - \sqrt{R} e^{-A/2} e^{i\varphi}} \right) \mathcal{E}_{in} \\ &= \frac{e^{-A/2} e^{i\varphi} - \sqrt{R}}{1 - \sqrt{R} e^{-A/2} e^{i\varphi}} \mathcal{E}_{in} \end{aligned} \quad (4.6)$$

L'intensité circulant dans la cavité peut s'écrire  $|\mathcal{E}|^2 = S |\mathcal{E}_{in}|^2$ , où  $S$  est par définition le facteur de surtension. Ce dernier, représenté Fig. 4.2, est constitué de pics coïncidant avec les points où la phase  $\varphi$  est un multiple de  $2\pi$ . L'espacement entre les pics, encore appelé intervalle spectral libre, a donc pour valeur  $\Delta\omega = 2\pi c/L$ . On dit qu'on a affaire à une "bonne cavité" lorsque les

pertes subies après un tour sont faibles. Celles-ci sont caractérisées par la grandeur  $P$  définie par  $\exp(-P) = R \exp(-A)$ , soit  $P = \ln(1/R) + A$ . Dans le cas de faible pertes, c'est à dire lorsque le coefficient de réflexion  $R$  est proche de 1 et lorsque l'absorption  $A$  est faible (d'où  $P \approx T + A$ ), on montre que les pics de résonance prennent une forme lorentzienne de largeur  $\delta\omega = cP/L$ . Enfin, la finesse  $f$  définie comme le rapport entre  $\Delta\omega$  et  $\delta\omega$  a pour valeur  $f = 2\pi/P$ .



**Figure 4.2:** Représentation du facteur de surtension en fonction de la fréquence

Dans le cas général, le facteur de surtension a pour valeur

$$\begin{aligned}
 S &= \frac{T}{1 + R e^{-A} - 2\sqrt{R} e^{-A/2} \cos \varphi} \\
 &= \frac{T}{1 + R e^{-A} - 2\sqrt{R} e^{-A/2} + 4\sqrt{R} e^{-A/2} \sin^2 \frac{\varphi}{2}} \\
 &= \frac{T}{(1 - \sqrt{R} e^{-A/2})^2 + 4\sqrt{R} e^{-A/2} \sin^2 \frac{\varphi}{2}} \\
 &= \frac{T / (1 - \sqrt{R} e^{-A/2})^2}{1 + \frac{4\sqrt{R} e^{-A/2}}{(1 - \sqrt{R} e^{-A/2})^2} \sin^2 \frac{\varphi}{2}} \tag{4.7}
 \end{aligned}$$

La largeur à mi-hauteur est obtenue lorsque

$$\sin^2 \frac{\varphi}{2} = \frac{(1 - \sqrt{R} e^{-A/2})^2}{4\sqrt{R} e^{-A/2}} \tag{4.8}$$

En remarquant que  $\sin \frac{\varphi}{2} \approx \delta\omega L/2c$ , on en déduit la largeur des pics de résonances

$$\delta\omega = \frac{2c}{L} \frac{1 - \sqrt{R} e^{-A/2}}{\sqrt{4\sqrt{R} e^{-A/2}}} \tag{4.9}$$

On en déduit la finesse

$$f = \frac{\Delta\omega}{\delta\omega} = \pi \frac{\sqrt{4\sqrt{R} e^{-A/2}}}{1 - \sqrt{R} e^{-A/2}} \tag{4.10}$$

Enfin, le facteur de surtension à la résonance s'écrit

$$S_{max} = \frac{T}{(1 - \sqrt{R} e^{-A/2})^2} \approx \frac{T}{P^2} \quad (4.11)$$

Il est simple de déduire des résultats ci-dessus les valeurs énoncées plus haut dans le cas d'une "bonne cavité".

### 4.1.2 Interprétation impulsionnelle des modes longitudinaux d'une cavité

Il existe une autre méthode pour établir les résultats ci-dessus, consistant à se placer dans le domaine temporel. Supposons que le champ  $\mathcal{E}_{in}(t)$  soit non pas un champ monochromatique mais une impulsion brève, dont la durée sera supposée très inférieure au temps nécessaire pour parcourir la cavité,  $T_0 = L/c$ . Cette impulsion va effectuer un certain nombre de tours dans la cavité, son amplitude étant multipliée à chaque tour par la grandeur  $\sqrt{R} \exp(-A/2 + i\varphi_G) = \exp(-P/2 + i\varphi_G)$ . Le champ dans la cavité s'écrit donc

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(t) &= \sqrt{T} \sum_{n=0}^{+\infty} \left( e^{-P/2 + i\varphi_G} \right)^n \mathcal{E}_{in}(t - nT_0) \\ &= \sqrt{T} \sum_{n=0}^{+\infty} \exp(n(-P/2 + i\varphi_G)) \mathcal{E}_{in}(t - nT_0) \\ &= \sqrt{T} \sum_{n=0}^{+\infty} f(nT_0) \delta(t - nT_0) \otimes \mathcal{E}_{in}(t) \end{aligned} \quad (4.12)$$

où l'on a posé  $f(t) = \Theta(t) \exp(-\gamma t/2 + it\varphi_G/T_0)$ , avec  $\gamma = P/T_0$  le taux de décroissance de la cavité. L'éq. 4.12 peut encore s'écrire

$$\mathcal{E}(t) = \sqrt{T} (f(t) \Pi_{T_0}(t)) \otimes \mathcal{E}_{in}(t) \quad (4.13)$$

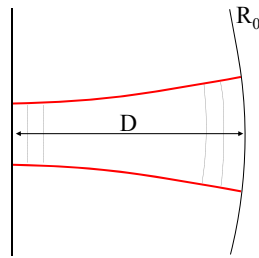
où  $\Pi_{T_0}(t) = \sum \delta(t - nT_0)$  est un peigne de Dirac de pas  $T_0$ . En passant dans l'espace des fréquences, on obtient

$$\mathcal{E}(\omega) = \sqrt{T} \left( \frac{1}{2\pi} f(\omega) \otimes \Pi_{2\pi/T_0}(\omega) \right) \mathcal{E}_{in}(\omega) \quad (4.14)$$

On en déduit que la réponse spectrale de la cavité est constituée de pics espacés de  $\Delta\omega = 2\pi/T_0 = 2\pi c/L$ . Dans le cas d'une cavité de bonne qualité, le chevauchement de ces pics peut être négligé et on peut donc se concentrer sur un pic unique. Celui-ci a pour forme spectrale la transformée de Fourier inverse d'une exponentielle, soit une lorentzienne, dont la largeur  $\delta\omega$  est inversement proportionnelle au temps de vie dans la cavité.

### 4.1.3 Modes transverses

Le calcul effectué ci-dessus n'est valable que dans le cas d'une onde plane, ce qui impliquerait des miroirs d'extension spatiale infinie. Dans une cavité réelle, l'extension transverse est bien évidemment finie, ce qui donne lieu à une diffraction qu'il faut compenser à l'aide d'éléments convergents comme des lentilles ou des miroirs sphériques. L'exemple le plus simple d'une telle cavité est constitué d'un miroir plan faisant face à un miroir sphérique. La longueur de la cavité est noté  $D$  et le rayon de courbure du miroir est noté  $R_0$ .



**Figure 4.3:** Cavité plan - sphérique utilisée dans la détermination du mode transverse

Nous savons que quel que soit le profil spatial du faisceau sur le miroir plan, il pourra se décomposer sur les fonctions  $u_{nm}(x, y, 0)$  qui forment une base de l'espace  $\mathcal{L}^2(R)$ . Cherchons donc une solution de l'équation de propagation dans la cavité sous la forme d'une fonction  $u_{nm}(x, y, z)$ . De façon générale, on démontre que le rayon de courbure de l'onde doit coïncider avec le rayon du miroir sur lequel elle se réfléchit. Cela signifie que le rayon de courbure du faisceau doit être infini au niveau du miroir plan, ou encore que ce dernier se situe au waist du faisceau. Par ailleurs, le rayon de courbure du faisceau gaussien au niveau du miroir sphérique,  $R(D)$ , doit être égal au rayon  $R_0$  du miroir sphérique. On obtient donc

$$R_0 = R(D) = D + \frac{z_R^2}{D}$$

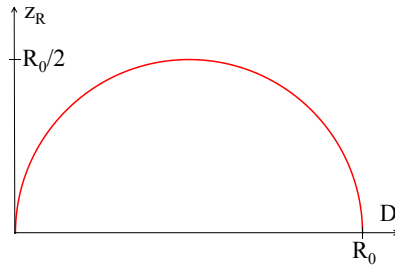
La longueur de Rayleigh du faisceau est donc entièrement déterminée par la longueur de la cavité :

$$z_R = \sqrt{D(R_0 - D)}$$

ce qui impose  $R_0 > D$ . Cette condition détermine la *zone de stabilité* de la cavité, représentée sur la Fig. 4.4.

On peut en déduire le waist du faisceau, qui dépend de la géométrie de la cavité

$$w_0 = \sqrt{\frac{2c}{\omega}} (D(R_0 - D))^{\frac{1}{4}} = \sqrt{\frac{\lambda z_R}{\pi}}$$



**Figure 4.4:** Zone de stabilité de la cavité

Enfin, si l'on tient compte des conditions de résonance longitudinales de la cavité, on doit écrire que la phase vue par le faisceau après un aller-retour doit être égale à un multiple de  $2\pi$ , soit

$$\frac{2\omega_{pnm}D}{c} - 2(n + m + 1) \arctan \frac{D}{z_R} = 2p\pi$$

ce qui permet de déterminer la fréquence d'un mode de la cavité

$$\omega_{pnm} = \frac{c}{2D} \left( 2p\pi + 2(n + m + 1) \arctan \frac{D}{z_R} \right)$$

## 4.2 Amplification optique

Comme vu au chapitre précédent, il faut établir une inversion de population,  $\rho_{aa} < \rho_{bb}$ , si l'on veut obtenir une amplification. Par ailleurs, nous avons vu que dans le cas d'un système à deux niveaux couplé à un champ, il est impossible de changer le signe de la différence des populations simplement par un couplage avec le champ électromagnétique. On peut donc en déduire qu'il faut trois ou quatre niveaux pour pouvoir obtenir une inversion de population par un pompage sous forme optique.

### 4.2.1 Equation de Bloch en présence de pompage

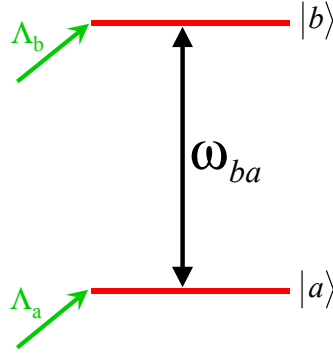
Nous nous contenterons ici du modèle simplifié à deux niveaux représenté Fig. 4.5, les autres niveaux étant incorporés au bain thermique.

On introduira donc des termes de pompage des deux niveaux a et b

$$\left. \frac{\partial \rho_{aa}}{\partial t} \right|_{\text{pompage}} = \Lambda_a \quad (4.15)$$

$$\left. \frac{\partial \rho_{bb}}{\partial t} \right|_{\text{pompage}} = \Lambda_b \quad (4.16)$$

Il faut donc maintenant résoudre de nouveau l'équation de Bloch avec ces termes supplémentaires, en suivant l'approche de la section 2.4.



**Figure 4.5:** Modèle à deux niveaux incorporant des taux de pompage  $\Lambda_a$  et  $\Lambda_b$  des deux niveaux  $a$  et  $b$

Considérons dans un premier temps l'évolution des populations en l'absence de champ électrique.

L'équation d'évolution s'écrit

$$\begin{aligned}
 \frac{d}{dt}\rho_{nn} &= \left. \frac{\partial\rho_{nn}}{\partial t} \right|_{relax} + \left. \frac{\partial\rho_{nn}}{\partial t} \right|_{pompage} \\
 &= -\Gamma_{nn} \left( \rho_{nn} - \rho_{nn}^{(0)} \right) + \Lambda_n \\
 &= -\Gamma_{nn} \left( \rho_{nn} - \rho_{nn}^{(0)} - \frac{\Lambda_n}{\Gamma_{nn}} \right)
 \end{aligned} \tag{4.17}$$

Il en résulte que les populations tendent vers les valeurs d'équilibre

$$\rho_{nn}^{(eq)} = \rho_{nn}^{(0)} + \frac{\Lambda_n}{\Gamma_{nn}} \tag{4.18}$$

Enfin, il est intéressant de remarquer que la somme des termes de relaxation et de pompage s'écrit

$$\left. \frac{\partial\rho_{nn}}{\partial t} \right|_{relax} + \left. \frac{\partial\rho_{aa}}{\partial t} \right|_{pompage} = -\Gamma_{nn} \left( \rho_{nn} - \rho_{nn}^{(eq)} \right) \tag{4.19}$$

Cette expression est parfaitement analogue au terme de relaxation seul, à condition de remplacer  $\rho_{nn}^{(0)}$  par  $\rho_{nn}^{(eq)}$ . Cette remarque nous permet d'utiliser directement les résultats obtenus à la section 2.4 pour déterminer la susceptibilité d'un système à deux niveaux en présence de pompage.

On obtient

$$\begin{aligned}
 \chi &= \chi^{(1)}(\omega_l) \frac{\rho_{bb} - \rho_{aa}}{\rho_{bb}^{(eq)} - \rho_{aa}^{(eq)}} \\
 &= -\frac{\mathcal{N}\mu^2}{\epsilon_0\hbar} \left( \frac{1}{\omega - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} - \frac{1}{\omega + \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} \right) \left( \rho_{aa}^{(eq)} - \rho_{bb}^{(eq)} \right) \frac{1}{1 + \frac{I}{I_S}}
 \end{aligned} \tag{4.20}$$



Dans le cas où  $\rho_{aa}^{(eq)} < \rho_{bb}^{(eq)}$ , le champ subit donc un gain

$$g(\omega_l) = \frac{g_0(\omega_l)}{1 + \frac{I}{I_S}} \quad (4.21)$$

où  $g_0(\omega_l)$  est le gain faible signal

$$g_0(\omega_l) = \frac{\omega_l \mathcal{N} \mu^2}{c \epsilon_0 \hbar} \frac{\Gamma_{ba}}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2} \left( \rho_{bb}^{(eq)} - \rho_{aa}^{(eq)} \right) \quad (4.22)$$

Un cas particulier important est la situation idéale où les niveaux  $a$  et  $b$  sont initialement vides ( $\rho_{aa}^{(0)} = \rho_{bb}^{(0)} = 0$ ) et où seul le niveau  $b$  est pompé ( $\Lambda_a = 0$ ). On a alors  $\rho_{aa}^{(eq)} = 0$  et  $\rho_{bb}^{(eq)} = \Lambda_b / \Gamma_{bb}$ . Dans ce cas, l'équation 4.22 devient

$$g_0(\omega_l) = \frac{\omega_l \mathcal{N} \mu^2}{c \epsilon_0 \hbar} \frac{\Gamma_{ba}}{(\omega_l - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ba}^2} \frac{\Lambda_b}{\Gamma_{bb}} \quad (4.23)$$

et le gain en faible signal est simplement proportionnel au taux de pompage du niveau supérieur.

### 4.2.2 Propagation en régime de faible signal

L'intensité du faisceau se propageant dans le milieu amplificateur obéit à l'équation

$$\frac{dI}{dz} = g(\omega_l)I \quad (4.24)$$

Dans le cas où le faisceau est de faible intensité, on peut supposer que  $g(\omega_l) = g_0(\omega_l)$  (noté simplement  $g_0$  par la suite) et est donc indépendant de l'intensité. Dans ce cas, l'équation ci-dessus donne immédiatement

$$I(z) = I(0) \exp(g_0 z) \quad (4.25)$$

L'intensité croît donc exponentiellement avec  $z$ .

### 4.2.3 Propagation en régime saturé

L'expression ci-dessus cesse d'être valable dès que  $I(z)$  n'est plus négligeable devant l'intensité de saturation. Dans ce cas l'équation d'évolution de l'intensité s'écrit

$$\frac{dI}{dz} = g_0 \frac{I}{1 + \frac{I}{I_S}} \quad (4.26)$$

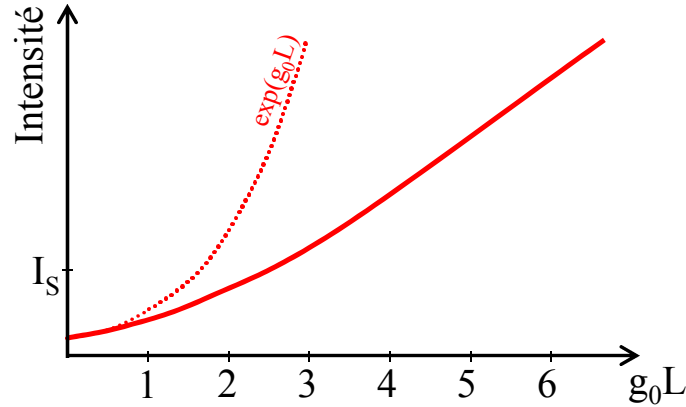
que l'on peut encore écrire

$$\left( \frac{1}{I} + \frac{1}{I_S} \right) dI = g_0 dz \quad (4.27)$$

Cette équation aux variables séparables s'intègre simplement

$$\ln \frac{I}{I_0} + \frac{I - I_0}{I_S} = g_0 L \quad (4.28)$$

On retrouve évidemment une variation exponentielle lorsque  $I \ll I_S$ . A l'inverse, lorsque  $I \gg I_S$ , la variation de l'intensité avec  $z$  devient linéaire.



**Figure 4.6:** Intensité obtenue après amplification sur une Longueur  $L$ . La courbe en pointillé représente ce que l'on aurait obtenu en l'absence de saturation ( $g = g_0$ ).

### 4.3 Laser en régime stationnaire

Considérons ici le cas d'une cavité circulaire en supposant que le champ se propage dans un sens de rotation bien déterminé, que l'on pourra imposer à l'aide d'un composant optique comme un isolateur de Faraday. Le rôle de cette hypothèse est de simplifier le problème en évitant la présence de franges d'interférences dans le milieu amplificateur.

#### 4.3.1 Condition d'oscillation

On appellera  $L$  la longueur de la cavité et  $L_A$  l'épaisseur du milieu amplificateur. Considérons le champ sur l'axe du faisceau et appelons  $\mathcal{E}$  le champ à l'entrée du milieu amplificateur,  $\mathcal{E}'$  le champ en sortie du milieu amplificateur et  $\mathcal{E}''$  le champ à l'entrée du milieu amplificateur après un tour de cavité. Comme à la section 4.1 on appellera  $R$  le coefficient de réflexion du miroir de sortie de la cavité et  $A$  les pertes par absorption.

On supposera de plus que le milieu amplificateur est suffisamment mince pour que le gain  $g$  puisse être considéré comme constant dans le milieu. Cette approximation nous permet d'écrire

$$\mathcal{E}' = \mathcal{E} e^{i \frac{n\omega L_A}{c}} e^{g L_A / 2} \quad (4.29)$$

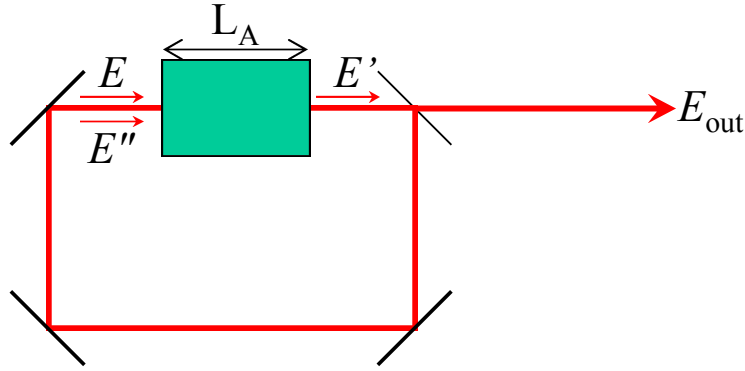


Figure 4.7: Cavité laser utilisée dans le modèle

Par ailleurs, le champ  $\mathcal{E}''$  après un tour de cavité peut s'exprimer à partir de  $\mathcal{E}'$  selon la relation

$$\mathcal{E}'' = \mathcal{E}' \sqrt{Re^{-A}} e^{i\frac{\omega}{c}(L-L_A)} e^{i\varphi_G} \quad (4.30)$$

où l'on a tenu compte des pertes par réflexion et absorption, du déphasage résultant de la propagation sur une distance  $L - L_A$  et du déphasage de Gouy  $\varphi_G$ .

En régime stationnaire, le champ doit se reproduire identique à lui-même après un tour de cavité. C'est la condition de bouclage, qui s'exprime ici  $\mathcal{E}'' = \mathcal{E}$ , soit

$$\mathcal{E} = \mathcal{E} \sqrt{Re^{-A}} e^{gL_A/2} e^{i\frac{\omega}{c}(L-L_A)} e^{i\frac{n\omega L_A}{c}} e^{i\varphi_G} \quad (4.31)$$

Cette équation admet deux solutions : soit  $\mathcal{E} = 0$ , ce qui signifie que le laser ne fonctionne pas, soit

$$\sqrt{Re^{-A}} e^{gL_A/2} \exp\left(i\left(\frac{\omega}{c}((n-1)L_A + L) + \varphi_G\right)\right) = 1 \quad (4.32)$$

qui est la condition d'oscillation du laser. Cette expression impose une condition sur l'amplitude et une condition sur la phase, conditions que nous allons examiner successivement.

### 4.3.2 Condition sur l'amplitude

La condition d'oscillation sur l'amplitude s'écrit

$$Re^{-A} e^{gL_A} = 1 \quad (4.33)$$

En notant  $P = A + \ln(1/R)$  les pertes dans la cavités, on obtient

$$gL_A = P \quad (4.34)$$

En d'autres termes en régime stationnaire le gain compense exactement les pertes. En remplaçant le gain par son expression, on obtient

$$\frac{g_0 L_A}{1 + \frac{I}{I_S}} = P \quad (4.35)$$

soit

$$I = I_S \left( \frac{g_0 L_A}{P} - 1 \right) \quad (4.36)$$

L'intensité étant positive, on en déduit que le laser ne peut fonctionner que si le gain en faible signal est strictement supérieur aux pertes.

Dans le cas simplifié où seul le niveau supérieur est pompé, on sait d'après l'éq. 4.23 que le gain faible signal est directement proportionnel au taux de pompage :  $g_0 \propto \Lambda_b$ . On peut alors exprimer l'intensité circulant dans le laser selon la relation

$$I = I_S \left( \frac{\Lambda_b}{\Lambda_{b,seuil}} - 1 \right) \quad (4.37)$$

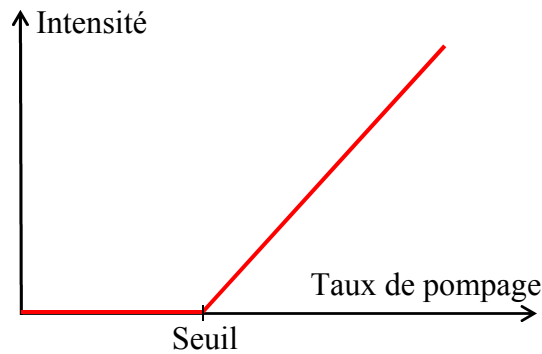


Figure 4.8: Puissance émise en fonction du taux de pompage

### 4.3.3 Condition sur la phase

La condition sur la phase s'écrit

$$\frac{\omega}{c} ((n(\omega, I) - 1)L_A + L) + \varphi_G = p2\pi \quad (4.38)$$

Cette condition fait intervenir l'indice de réfraction du milieu amplificateur qui dépend non seulement de la fréquence mais aussi de l'intensité du faisceau laser. La position exacte des modes longitudinaux est donc fonction de la puissance de fonctionnement du laser.

## 4.4 Génération d'impulsions femtosecondes

Comme le montre le schéma représenté Fig. 4.9, une source femtoseconde est généralement constituée d'un oscillateur produisant un train d'impulsions ultracourtes (section 4.4.1), d'un étage d'amplification augmentant l'énergie des impulsions de plusieurs ordres de grandeur (section 4.4.2), et enfin d'un étage de génération d'impulsions de longueurs d'onde appropriées obtenues par des processus d'optique non-linéaire (section 4.4.3).

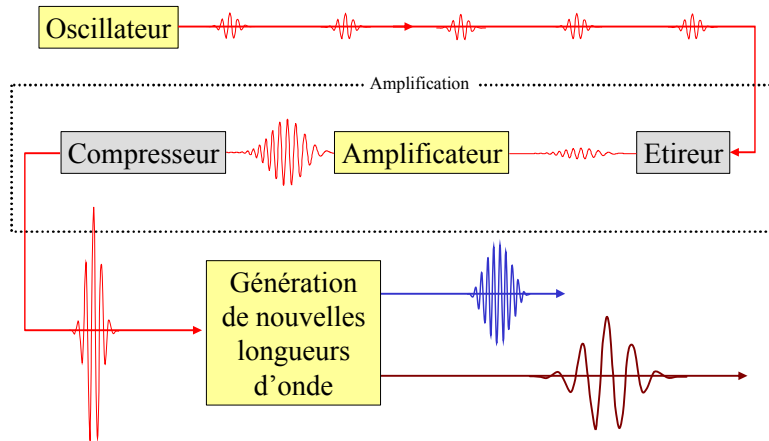
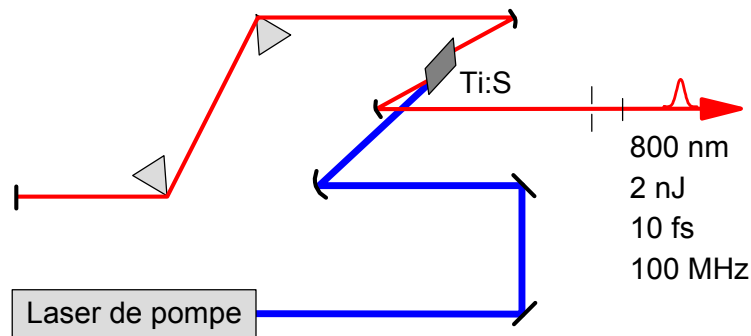


Figure 4.9: Schéma général d'une source femtoseconde

### 4.4.1 Oscillateur

Un oscillateur femtoseconde est un dispositif produisant un train d'impulsions dont chacune a une durée extrêmement courte, de l'ordre de cinq femtosecondes pour les systèmes les plus performants. Il s'agit avant tout d'un laser, constitué d'une cavité et d'un milieu amplificateur, avec bien entendu des caractéristiques particulières. Tout d'abord, nous savons d'après les propriétés générales de la transformée de Fourier (voir éq. A.26) que pour produire une impulsion de "durée"  $\Delta t$  il faudra disposer d'un spectre dont la "largeur" spectrale  $\Delta\omega$  soit telle que  $\Delta\omega\Delta t \geq 1/2$ . Rappelons que largeur et durée s'entendent ici au sens de l'écart quadratique moyen. La première condition pour pouvoir obtenir des impulsions femtosecondes est donc de disposer d'un milieu amplificateur dont la courbe de gain présente une très grande largeur spectrale. Le matériau le plus couramment utilisé à cette fin est le saphir dopé au titane, qui présente une bande de gain couvrant les longueurs d'onde comprises entre 700 nm et plus de 1  $\mu\text{m}$ .

L'émission laser se faisant sur une grande largeur spectrale, un grand nombre de modes longitudinaux contribueront à cette émission. Dans le cas d'une cavité laser dont la longueur est de l'ordre de 1.5 m, l'intervalle spectral libre  $c/2L$  vaut 100 MHz.  $\Delta\omega$  pouvant atteindre une centaine



**Figure 4.10:** *Oscillateur Saphir:Titane.* La compensation de dispersion de vitesse de groupe est assurée par l'ensemble des deux prismes, produisant une dispersion de vitesse de groupe négative. Le blocage de mode est assuré par effet Kerr. D'une part dans le domaine temporel, la phase non-linéaire permet de compenser la composante quadratique négative résultant de la dispersion de la cavité en régime linéaire, ce qui permet d'avoir des modes longitudinaux parfaitement équidistants. D'autre part dans le domaine spatial, l'autofocalisation par lentille de Kerr permet de diminuer les pertes lorsque les différents modes longitudinaux sont en phase, privilégiant ainsi le régime impulsif.

de THz, on aura donc jusqu'à un million de modes longitudinaux intervenant dans la production d'impulsions. Le spectre émis est le produit d'une courbe de largeur  $\Delta\omega$  par un peigne de Dirac correspondant aux modes longitudinaux de la cavité. Dans le domaine temporel, cela signifie que le champ émis est le produit de convolution entre un champ de durée  $\Delta t$  et un peigne de Dirac de période  $2L/c$ . Le laser produit donc un train d'impulsions, le temps entre deux impulsions étant simplement le temps qu'il faut à la lumière pour parcourir la cavité.

Comme tout laser, un laser femtoseconde doit satisfaire aux conditions de bouclage du champ. Il faut donc que l'impulsion se reproduise identique à elle-même après chaque tour de cavité. Mais, comme nous l'avons vu à la section précédente, l'impulsion va nécessairement s'étaler temporellement en raison de la dispersion de vitesse de groupe dans le saphir. La seconde condition pour produire des impulsions est donc d'introduire dans la cavité un mécanisme de compensation de la dispersion de vitesse de groupe. Une première technique consiste à utiliser un ensemble de deux prismes permettant de séparer les différentes composantes spectrales de l'impulsion et de retarder les plus grandes longueurs d'onde qui sont précisément les plus rapides lors de la propagation dans le saphir. En ajustant correctement la distance entre les prismes on peut compenser l'étalement de l'impulsion intervenant lors de la propagation dans le saphir. Une seconde technique consiste à utiliser de multiples réflexions sur des miroirs diélectriques ayant été spécialement conçus pour introduire une phase quadratique dont la courbure s'oppose à celle résultant de la propagation dans le saphir.

Les deux premières conditions mentionnées plus haut sont nécessaires à l'obtention d'un train

d'impulsions brèves mais elles ne sont pas suffisantes. En effet, le laser peut *a priori* osciller sur ses différents modes longitudinaux sans qu'il y ait une relation de phase particulière entre les modes. La troisième condition consiste à assurer le blocage des modes. En d'autres termes, il s'agit de s'assurer que le laser fonctionne en régime impulsionnel en favorisant ce régime par rapport aux autres. Une technique appelée blocage des modes par lentille de Kerr consiste à tirer parti de l'effet Kerr optique intervenant dans le saphir. Comme mentionné section 3.3.1, la lentille de Kerr induite dans le saphir aura tendance à focaliser le faisceau. Cependant, cet effet, proportionnel à la densité de puissance du faisceau, sera significatif uniquement dans le cas où le laser fonctionne en régime impulsionnel puisque la puissance crête est alors bien supérieure. Si l'on place un diaphragme à une distance appropriée du saphir, le faisceau focalisé grâce à la lentille de Kerr sera transmis plus efficacement et subira donc moins de pertes. On peut ainsi se placer dans une situation où le gain n'est supérieur aux pertes que lorsque le laser fonctionne en régime impulsionnel. Le fonctionnement du laser en régime continu est alors rendu impossible et on obtiendra un train d'impulsions brèves.

#### 4.4.2 Amplification

Un oscillateur femtoseconde produit typiquement un faisceau laser dont la puissance moyenne est de l'ordre du Watt. Le taux de répétition de la cavité étant de l'ordre de 100 MHz, on dispose ainsi d'une énergie de l'ordre de 10 nJ par impulsion. Une telle énergie est suffisante pour certaines applications, mais dans de nombreux cas il est nécessaire d'avoir recours à une amplification optique du faisceau pour obtenir des énergies par impulsion plus importantes. On sélectionnera ainsi une impulsion à un taux de répétition inférieur afin de l'amplifier au niveau d'énergie requis. A puissance moyenne constante, on pourra ainsi obtenir des impulsions d'énergie 1 mJ à un taux de répétition de 1 kHz, ou de 100 mJ à un taux de répétition de 10 Hz. Le processus utilisé pour assurer cette amplification est le plus souvent l'émission stimulée dans un matériau à large bande spectrale similaire à celui utilisé dans l'oscillateur, par exemple le Saphir dopé au Titane. Le spectre de l'impulsion amplifiée est souvent légèrement plus étroit que celui de l'impulsion incidente en raison du phénomène dit de rétrécissement par le gain lié à la légère dépendance spectrale du gain. Quant à la phase spectrale, on sait qu'elle est conservée puisque l'émission stimulée a pour caractéristique de produire un faisceau amplifié dont la phase est égale à celle du faisceau incident. Cette propriété permet d'amplifier des impulsions courtes dont la durée sera approximativement conservée - à la dispersion linéaire près qui pourra être aisément compensée. Il existe cependant une limitation technique à l'énergie des impulsions qui pourront être produites par une application directe de cette méthode : au cours de sa propagation dans le milieu amplificateur, l'impulsion amplifiée atteindra en effet des puissances crêtes considérables qui seront suffisantes pour induire des effets non-linéaires importants, comme l'effet Kerr optique. On verra alors apparaître des

phénomènes comme l'autofocalisation ou la filamentation menant finalement à un endommagement du matériau amplificateur soumis à des puissances crêtes trop élevées. La méthode utilisée pour contourner ce problème, dite amplification à dérive de fréquence (chirped pulse amplification ou CPA), consiste à étirer l'impulsion préalablement à son amplification, puis à la recomprimer en sortie de l'amplificateur (voir Fig. 4.9) [13].

Une seconde approche développée plus récemment est l'amplification paramétrique optique à dérive de fréquence (Optical Parametric Chirped Pulse Amplification ou OPCPA). La principale différence avec la méthode décrite ci-dessus est que l'émission stimulée y est remplacée par l'amplification paramétrique dans un cristal non-linéaire (voir section 3.2.4).

#### 4.4.3 Génération de nouvelles longueurs d'onde

Pour de nombreuses applications il peut être extrêmement utile de disposer d'une source accordable, c'est à dire de pouvoir varier à volonté la longueur d'onde des impulsions produites. L'optique non-linéaire fournit les mécanismes physiques permettant d'effectuer de telles conversions de fréquences, qui seront d'autant plus faciles à mettre en oeuvre dans le cas d'une source femtoseconde en raison des fortes puissances crêtes disponible. On pourra ainsi très facilement observer la génération de second harmonique en focalisant une impulsion femtoseconde dans un cristal non-linéaire comme le BBO ou le KDP de quelques mm d'épaisseur. Les taux de conversion atteignent facilement plusieurs dizaines de pourcents. Selon le même principe on peut observer la génération d'harmoniques d'ordres élevés par focalisation d'une impulsion ultracourte dans un gaz ou sur une cible solide, ce qui permettra d'atteindre le domaine des UV ou des rayons X mous. Pour obtenir une longueur d'onde arbitraire dans le spectre visible, la méthode la plus courante consiste à engendrer un continuum spectral en focalisant une impulsion femtoseconde dans un milieu transparent comme de l'eau ou du saphir. On engendre alors une auto-modulation de phase résultant en un élargissement du spectre qui pourra ainsi s'étendre de l'UV à l'infrarouge proche (voir travaux dirigés). La densité spectrale d'énergie produite par un tel processus est naturellement assez faible, mais on pourra y remédier en amplifiant une tranche spectrale donnée à l'aide d'un amplificateur paramétrique. On pourra également couvrir le domaine de l'infrarouge moyen par différence de fréquences entre les faisceaux signal et complémentaire produits dans un amplificateur paramétrique [14]. Enfin, le domaine de l'infrarouge lointain est directement accessible par redressement optique d'une impulsion dont la durée est de l'ordre d'une centaine de femtosecondes [15]. C'est donc quasiment l'ensemble du spectre électro-magnétique, des micro-ondes jusqu'aux rayons X, qui est ainsi rendu accessible par l'utilisation de l'optique non-linéaire en régime femtoseconde.





## Chapitre 5

# Caractérisation spatio-temporelle

Ce chapitre aborde les méthodes de caractérisation du champ électrique  $E(x, y, z, t)$  associé à un faisceau lumineux. Dans la mesure où il n'existe pas de détecteurs suffisamment rapides, il sera souvent préférable de travailler dans l'espace des fréquences et donc de mesurer la grandeur complexe  $\mathcal{E}(x, y, z, \omega)$ , qui contient exactement la même information que le champ dans le domaine temporel. La plupart du temps, on s'intéressera en fait à un faisceau laser se propageant selon l'axe  $z$  en géométrie paraxiale. La propagation en espace libre étant connue (voir section 1.5), il suffira de mesurer le champ dans un plan transverse donné, par exemple en  $z = 0$ . Le problème se ramène donc à la mesure de la grandeur complexe  $\mathcal{E}(x, y, \omega) = |\mathcal{E}(x, y, \omega)| \exp(i\varphi(x, y, \omega))$  dans un espace à trois dimensions. La mesure du module de cette grandeur, traitée brièvement à la section 5.2, ne pose pas de problème particulier. Il n'en va pas de même de la phase  $\varphi(x, y, \omega)$  car les détecteurs disponibles sont sensibles non à la phase mais à l'intensité, comme cela sera démontré à la section 5.1. La section 5.3 porte sur la mesure de la phase spatiale  $\varphi(x, y)$ , correspondant par exemple au cas d'un faisceau laser monochromatique. La section 5.4 porte sur la mesure de la phase spectrale  $\varphi(\omega)$ , correspondant au cas d'une onde plane ou bien d'un faisceau dont la phase spatiale est plate (au foyer d'un faisceau gaussien par exemple). Enfin, la section 5.5 aborde brièvement les méthodes de mesure véritablement spatio-temporelles.

### 5.1 Détection aux fréquences optiques

Considérons un détecteur ponctuel <sup>1</sup>, placé en un point de coordonnées  $x$  et  $y$  dans le plan transverse du faisceau lumineux et produisant un signal  $S(t)$  à partir du champ électrique  $E(x, y, t)$  en ce point. Par la suite, on omettra les coordonnées  $x$  et  $y$  du point où le champ est mesuré. Un détecteur sensible doit pouvoir mesurer des champs de faible amplitude et il est donc légitime d'effectuer un

---

<sup>1</sup>En pratique, il suffira de supposer que la dimension du détecteur est très inférieure à l'échelle de variation du profil transverse du faisceau à mesurer.

développement perturbatif du signal mesuré

$$S(t) = S^{(1)}(t) + S^{(2)}(t) + \dots \quad (5.1)$$

le terme  $S^{(n)}(t)$  étant par définition d'ordre  $n$  par rapport au champ électrique  $E(t)$ . Nous allons considérer successivement les contributions au signal de  $S^{(1)}(t)$  et  $S^{(2)}(t)$ , termes respectivement linéaires et quadratiques par rapport au champ électrique  $E(t)$ .

### 5.1.1 Détection linéaire

Comme pour la polarisation linéaire (voir section 1.2), les hypothèses de linéarité et d'invariance par translation dans le temps nous permettent d'écrire de manière générale le signal sous la forme d'un produit de convolution entre la réponse impulsionnelle du détecteur  $R(t)$  et le champ électrique  $E(t)$ :

$$S^{(1)}(t) = R(t) \otimes E(t) = \int R(t-t')E(t')dt' \quad (5.2)$$

ou encore

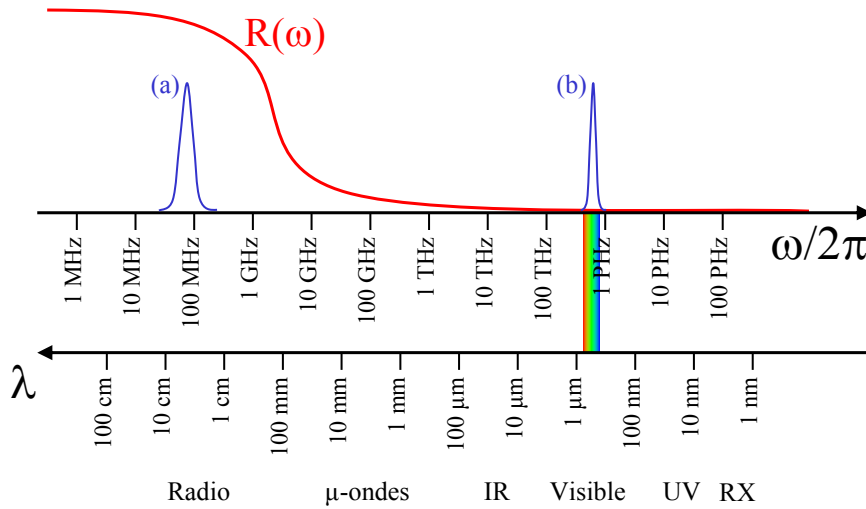
$$S^{(1)}(t) = \int R(\omega)E(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi} \quad (5.3)$$

La réponse impulsionnelle du détecteur a une durée caractéristique  $T_R$  gouvernée par le temps de réponse de l'ensemble de la chaîne de détection. Dans le cas d'un système de détection reposant sur des technologies électroniques, comportant par exemple une antenne, un amplificateur et un oscilloscope, le temps de réponse sera typiquement de 1 ns si l'on emploie des composants standards, et pourra éventuellement descendre à quelques dizaines de picosecondes avec des composants particulièrement rapides. En conséquence, comme le montre la Fig. 5.1, la réponse  $R(\omega)$  tendra rapidement vers zéro au delà d'une fréquence de coupure  $1/T_R$  de l'ordre de un à quelques dizaines de GHz. Pour une impulsion électro-magnétique dans le domaine radio, comme celle représentée Fig. 5.1(a), la fréquence centrale  $\omega_0$  est très inférieure à la fréquence de coupure et on peut considérer que la fonction  $R(\omega)$  garde une valeur à peu près constante (et non nulle) sur le support de  $E(\omega)$ . On en déduit

$$S^{(1)}(t) \approx R(\omega_0)E(t). \quad (5.4)$$

Le signal détecté reproduit ainsi fidèlement le champ électrique de l'impulsion. Il s'agit naturellement d'une méthode de détection optimale, mais qui reste cantonnée aux fréquences relativement basses. En effet, dans le domaine optique la fréquence centrale est très supérieure à la fréquence de coupure (voir Fig. 5.1(b)), et le recouvrement entre  $R(\omega)$  et  $E(\omega)$  est nul. En d'autres termes, la période d'oscillation du champ électrique, de l'ordre de 2 fs pour une impulsion visible, est très inférieure au temps de réponse du détecteur qui produit donc la valeur moyenne du champ, ici

égale à zéro. En conclusion, dans le domaine optique, il est impossible de concevoir un système de détection linéaire purement électronique en raison d'un temps de réponse trop lent.



**Figure 5.1:** Représentation de la fonction de réponse  $R(\omega)$  du système de détection. (a) Spectre d'une impulsion électromagnétique dans le domaine radio. (b) Spectre d'une impulsion visible.

Il existe cependant un moyen de contourner cet obstacle en utilisant des méthodes de détection ultra-rapides reposant non pas sur l'électronique mais sur l'optique. Ainsi, une impulsion ultra-courte permettra d'échantillonner le champ électrique oscillant d'une onde électromagnétique à condition que la durée de l'impulsion de mesure soit très inférieure à la période d'oscillation du champ. Dans le domaine de l'infrarouge lointain, le champ d'une impulsion dont la fréquence est de l'ordre du THz - ce qui correspond à une période de 1 ps - est correctement échantillonné par une impulsion visible de durée égale à 100 fs [16]. Cette approche est très fréquemment employée en raison de la facilité d'obtention d'impulsions de 100 fs. Dans le domaine visible, la période d'oscillation est de l'ordre de 2 fs et il faut alors avoir recours à une impulsion attoseconde pour procéder à l'échantillonnage du champ [17]. Même si cette dernière expérience est réalisable, sa difficulté est telle qu'il est de loin préférable d'avoir recours à des détecteurs quadratiques lorsqu'on doit caractériser un champ électrique oscillant dans le domaine des fréquences optiques.

### 5.1.2 Détection quadratique

Par hypothèse, le signal détecté  $S^{(2)}(t)$  est maintenant une forme bilinéaire du champ électrique  $E(t)$ . L'hypothèse d'invariance par translation dans le temps nous permet d'écrire ce signal de manière similaire à la polarisation non-linéaire du second ordre (voir eq. 2.47), soit

$$S^{(2)}(t) = \int \int R(\omega_1, \omega_2) E(\omega_1) E(\omega_2) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \quad (5.5)$$

où  $R(\omega_1, \omega_2)$  est la réponse bidimensionnelle du système de détection, définie telle que  $R(\omega_1, \omega_2) = R(\omega_2, \omega_1)$ . On peut également exprimer  $S^{(2)}(t)$  à l'aide de sa transformée de Fourier inverse selon

$$S^{(2)}(t) = \int S^{(2)}(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi} \quad (5.6)$$

avec

$$S^{(2)}(\omega) = \int R(\omega_1, \omega - \omega_1) E(\omega_1) E(\omega - \omega_1) \frac{d\omega_1}{2\pi} \quad (5.7)$$

Comme plus haut, le signal électronique mesuré  $S^{(2)}(t)$  sera limité par le temps de réponse fini  $T_R$  de la chaîne de détection, typiquement de l'ordre de 1 ns. Cela signifie que sa transformée de Fourier inverse  $S^{(2)}(\omega)$  doit s'annuler dès lors que  $|\omega| \gg 1/T_R$ . Cette propriété, valable quelle que soit le champ  $E(\omega)$ , implique que la fonction réponse  $R(\omega_1, \omega_2)$  tende elle-même vers zéro dès lors que  $|\omega_1 + \omega_2| \gg 1/T_R$ , grandeur qui est de l'ordre du GHz. La fonction  $R(\omega_1, \omega_2)$  est donc très fortement localisée sur la droite  $\omega_1 + \omega_2 = 0$ . A l'inverse, la variation le long de cette droite est relativement lente, et correspond à la courbe de sensibilité spectrale du détecteur. Exprimée en longueur d'onde, l'échelle caractéristique de variation de la sensibilité spectrale est typiquement de l'ordre de la centaine de nanomètres, soit plusieurs dizaines de THz dans l'espace des fréquences.

Dans le domaine optique la fréquence centrale  $\omega_0$  est naturellement très supérieure à  $1/T_R$ , ce qui implique que les seuls termes contribuant à l'intégrale dans l'éq. 5.5 sont ceux où  $\omega_1$  et  $\omega_2$  sont de signes contraires. En utilisant la notation complexe du champ électrique  $E(\omega) = (\mathcal{E}(\omega) + \mathcal{E}^*(-\omega))/2$ , on en déduit

$$S^{(2)}(t) = \frac{1}{2} \int \int R(\omega_1, \omega_2) \mathcal{E}(\omega_1) \mathcal{E}^*(-\omega_2) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \quad (5.8)$$

ou encore

$$S^{(2)}(t) = \frac{1}{2} \int \int R(\omega_1, -\omega_2) \mathcal{E}(\omega_1) \mathcal{E}^*(\omega_2) \exp(-i(\omega_1 - \omega_2)t) \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \quad (5.9)$$

L'éq. 5.7 devient alors

$$S^{(2)}(\omega) = \frac{1}{2} \int R(\omega_1, \omega - \omega_1) \mathcal{E}(\omega_1) \mathcal{E}^*(\omega_1 - \omega) \frac{d\omega_1}{2\pi} \quad (5.10)$$

Ces deux dernières équations montrent que le profil temporel du signal produit résulte en général à la fois du profil temporel du champ électrique et de la réponse du détecteur. Considérons deux cas particuliers intéressants, correspondant aux cas où la durée de l'impulsion est respectivement très longue ou très courte.

### Cas d'une impulsion longue

Considérons dans un premier temps le cas d'une impulsion longue, où plus précisément d'une impulsion de largeur spectrale faible par rapport à la bande spectrale couverte par le détecteur. En d'autres termes, on pourra négliger la variation de la fonction  $R(\omega_1, \omega_2)$  le long de la droite  $\omega_1 + \omega_2 = 0$ . On écrira donc

$$R(\omega_1, \omega_2) = 2\xi(\omega_1 + \omega_2) \quad (5.11)$$

où la fonction  $\xi(\omega)$  est une fonction centrée sur  $\omega = 0$  et dont la largeur spectrale est de l'ordre de  $1/T_R$ , la bande passante du système de détection. On obtient alors

$$\begin{aligned} S^{(2)}(t) &= \int \int \xi(\omega_1 + \omega_2) \mathcal{E}(\omega_1) \mathcal{E}^*(-\omega_2) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \\ &= \int \int \int \xi(t') \exp(i(\omega_1 + \omega_2)t') \mathcal{E}(\omega_1) \mathcal{E}^*(-\omega_2) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} dt' \\ &= \int \xi(t') \int \mathcal{E}(\omega_1) e^{-i\omega_1(t-t')} \frac{d\omega_1}{2\pi} \int \mathcal{E}^*(-\omega_2) e^{-i\omega_2(t-t')} \frac{d\omega_2}{2\pi} dt' \\ &= \int \xi(t') \mathcal{E}(t-t') \mathcal{E}^*(t-t') dt' \\ &= \int \xi(t') |\mathcal{E}(t-t')|^2 dt' \end{aligned} \quad (5.12)$$

soit

$$S^{(2)}(t) = \xi(t) \otimes |\mathcal{E}(t)|^2 \quad (5.13)$$

Le signal mesuré est ainsi le produit de convolution entre l'intensité temporelle de l'impulsion et la fonction  $\xi(t)$ , qui peut donc s'interpréter comme la réponse impulsionnelle de la chaîne de détection. Dans le cas idéal où la durée de l'impulsion est très supérieure à  $T_R$ , on peut négliger la variation lente du champ dans l'éq. 5.12 et on obtient simplement

$$S^{(2)}(t) = \left( \int \xi(t') dt' \right) |\mathcal{E}(t)|^2 = \xi(\omega = 0) |\mathcal{E}(t)|^2 = \frac{1}{2} R(\omega_0, -\omega_0) |\mathcal{E}(t)|^2 \quad (5.14)$$

Le signal mesuré reproduit donc fidèlement l'intensité temporelle  $I(t) = |\mathcal{E}(t)|^2$ . Notons que le signal est ici indépendant de la phase temporelle de l'impulsion. Il est par contre sensible à la phase spectrale puisque cette dernière quantité gouverne le profil temporel de l'impulsion.

A l'inverse, si la durée de l'impulsion est très inférieure à  $T_R$  (tout en restant suffisamment longue pour que l'hypothèse initiale d'une réponse spectrale constante reste valide), on voit que c'est au contraire la fonction  $\xi(t')$  qui peut être supposée constante dans l'éq. 5.12. On obtient alors

$$S^{(2)}(t) = \xi(t) \int |\mathcal{E}(t')|^2 dt' \quad (5.15)$$

On voit que le profil temporel du signal mesuré est alors entièrement gouverné par la réponse impul-

sionnelle du système de détection. Ce n'est pas l'impulsion qui est caractérisée par le détecteur, mais au contraire la réponse impulsionnelle du système de détection qui est déterminée par une excitation pouvant être assimilée à une distribution de Dirac. La seule information que l'on peut extraire sur l'impulsion est alors l'intégrale de l'intensité temporelle, c'est à dire l'énergie de l'impulsion.

### Cas d'une impulsion ultra-courte

Considérons maintenant le cas d'une impulsion femtoseconde, dont la durée est très inférieure au temps de réponse des détecteurs disponibles. Dans ce cas extrême, nous venons de voir que le profil temporel du signal  $S^{(2)}(t)$  est entièrement gouverné par le temps de réponse du système de détection. La seule information accessible sur l'impulsion est donc l'intégrale du signal mesuré

$$S = \int S^{(2)}(t)dt = S^{(2)}(\omega = 0) \quad (5.16)$$

Cette grandeur peut être déterminée à l'aide de l'éq. 5.10, ce qui nous donne

$$S = \frac{1}{2} \int R(\omega_1, -\omega_1) \mathcal{E}(\omega_1) \mathcal{E}^*(\omega_1) \frac{d\omega_1}{2\pi} \quad (5.17)$$

ou encore

$$S = \int R_S(\omega) |\mathcal{E}(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \quad (5.18)$$

où  $R_S(\omega) = R(\omega, -\omega)/2$  est par définition la réponse spectrale du détecteur. Dans le cas où la largeur spectrale de l'impulsion est suffisamment étroite par rapport à la réponse spectrale du détecteur, on peut simplement écrire

$$S = R_S(\omega_0) \int |\mathcal{E}(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \quad (5.19)$$

Le signal mesuré est alors simplement proportionnel à l'énergie de l'impulsion, et on retrouve le résultat énoncé plus haut (voir eq. 5.15). Dans le cas où le spectre est plus large - ce qui correspond par exemple au cas d'impulsions de durée inférieure à quelques dizaines de femtosecondes - il faut tenir compte de la réponse spectrale du détecteur : le signal correspond à l'intégrale de recouvrement entre la réponse spectrale  $R_S(\omega)$  et la densité spectrale d'énergie de l'impulsion  $|\mathcal{E}(\omega)|^2$ , comme indiqué par l'éq. 5.18. En conclusion, nous avons démontré le résultat général suivant : *Le signal produit par un système de détection quadratique, stationnaire et invariant par translation dans le temps est insensible à la phase spectrale  $\varphi(\omega)$  de l'impulsion.* Ce résultat concerne notamment le cas d'une impulsion femtoseconde mesurée à l'aide d'un dispositif purement électronique.

En conclusion générale de cette section, on pourra retenir que dans le domaine optique on est

le plus souvent contraint de caractériser un faisceau lumineux à l'aide d'un dispositif de détection quadratique, comme par exemple une photodiode, produisant un signal s'exprimant comme une forme bilinéaire du champ électrique. Dans le cas d'un faisceau laser continu, le signal mesuré fournit l'intensité temporelle, ici constante au cours du temps. On a ainsi accès à l'intensité spatiale  $I(x, y) = |\mathcal{E}(x, y)|^2$ , par exemple en déplaçant le détecteur dans le plan transverse. Dans le domaine temporel, il est possible de caractériser l'intensité temporelle  $I(t) = |\mathcal{E}(t)|^2$  à condition de disposer d'un détecteur suffisamment rapide. A l'inverse, pour une impulsion ultracourte, le signal sera insensible à la phase spectrale  $\varphi(\omega)$ . De manière générale, on pourra retenir qu'aux fréquences optiques les détecteurs sont insensibles à la phase, comme cela avait été annoncé dans l'introduction. Cette spécificité de l'optique, par rapport au domaine radio par exemple, explique la relative complexité des méthodes de caractérisation décrites dans la suite de ce chapitre.

## 5.2 Mesure de l'intensité

### 5.2.1 Mesure de l'intensité spatiale

La mesure de l'intensité spatiale  $I(x, y)$  est relativement aisée. Comme mentionné ci-dessus, il suffit de déplacer une photodiode dans le plan transverse pour cartographier le profil du faisceau laser. La résolution spatiale est alors simplement déterminée par les dimensions transverses du détecteur. Il existe fort heureusement une méthode moins fastidieuse qui repose sur l'utilisation d'une caméra CCD (Charge Coupled Device) permettant d'acquérir en une seule mesure l'ensemble de l'image grâce à une matrice de pixels similaire à celle d'un appareil photo numérique. Ces dispositifs reposent sur l'ingénieux mécanisme du transfert de charge permettant de transférer les photo-électrons de chaque pixel jusqu'à un unique convertisseur analogique / numérique permettant de numériser l'ensemble de l'image. La cadence de lecture pour une image d'un million de pixels varie typiquement de 1 à quelques centaines de Hertz selon le dispositif employé.

### 5.2.2 Mesure de l'intensité spectrale

La perception des couleurs est un exemple de mesure - certes très incomplète - de l'intensité spectrale. L'œil humain dispose en effet de récepteurs sensibles à la lumière - les cônes - dont la réponse spectrale  $R_S(\omega)$  est centrée respectivement sur le jaune, le vert et le bleu pour les cônes appelés rouge, vert et bleu. Comme le montre l'éq. 5.18, chacun de ces récepteurs fournira une information sélective selon les composantes spectrales contenues dans le rayonnement détecté. Cependant, pour avoir accès à l'ensemble du spectre de manière précise, il est nécessaire d'avoir recours à un instrument plus perfectionné appelé *spectromètre* dont nous donnons deux exemples dans la suite de ce chapitre : le spectromètre à réseau et le spectromètre par transformée de Fourier.



### Spectromètre à réseau

Considérons tout d'abord le cas de la réflexion spéculaire d'un faisceau lumineux sur un miroir plan, et appelons  $\vec{k}_i$  et  $\vec{k}_r$  les vecteurs d'onde des faisceaux incidents et réfléchis (voir Fig. 5.2(a)). L'invariance par translation dans le plan du miroir assure la conservation de la projection du vecteur d'onde dans ce plan. On en déduit que  $\vec{k}_r - \vec{k}_i$  doit être normal au miroir, ce qui implique notamment que le faisceau réfléchi soit dans le plan d'incidence (défini comme le plan contenant le vecteur d'onde incident et la normale au miroir). En outre, le fait que la projection du vecteur d'onde dans le plan du miroir soit conservée implique que l'angle de réflexion soit égal à l'angle d'incidence : c'est la loi de Snell-Descartes pour la réflexion.

Dans le cas d'un réseau de diffraction, on n'a plus affaire à un objet diffractant invariant par translation mais simplement périodique, à la manière d'un réseau cristallin. Comme en physique du solide, on en déduit ici que la projection du vecteur d'onde dans le plan du réseau se conserve à un vecteur du réseau réciproque près. Appelons  $\vec{\tau}$  un vecteur unitaire contenu dans le plan du réseau et perpendiculaire aux traits, et considérons le cas où ce vecteur est contenu dans le plan d'incidence (Fig. 5.2(b)). La conservation de la composante tangentielle du vecteur d'onde modulo un vecteur du réseau réciproque s'écrit alors

$$\vec{k}_d \cdot \vec{\tau} = \vec{k}_i \cdot \vec{\tau} + n \frac{2\pi}{d} \quad (5.20)$$

où  $\vec{k}_d$  est le vecteur d'onde du faisceau diffracté,  $n$  est un nombre entier appelé ordre de diffraction et  $d$  est le pas du réseau. En appelant  $\theta_i$  et  $\theta_d$  les angles par rapport à la normale (orienté dans le sens direct comme indiqué sur la Fig. 5.2(b)), on en déduit la relation

$$\frac{2\pi}{\lambda} (\sin \theta_d + \sin \theta_i) = n \frac{2\pi}{d} \quad (5.21)$$

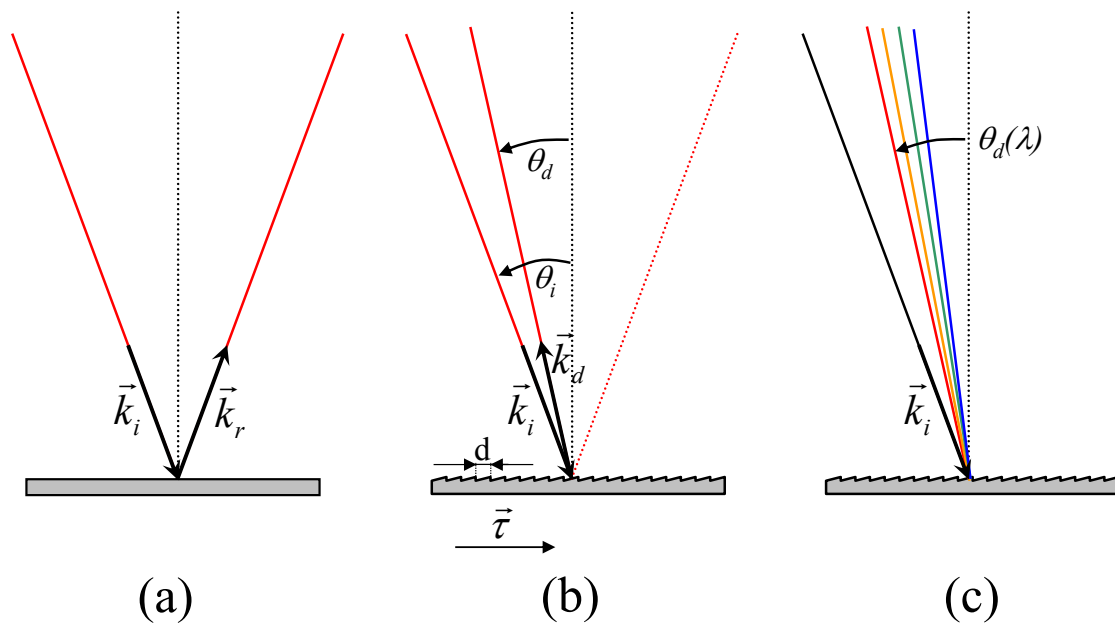
ou encore

$$\sin \theta_d + \sin \theta_i = n \frac{\lambda}{d} \quad (5.22)$$

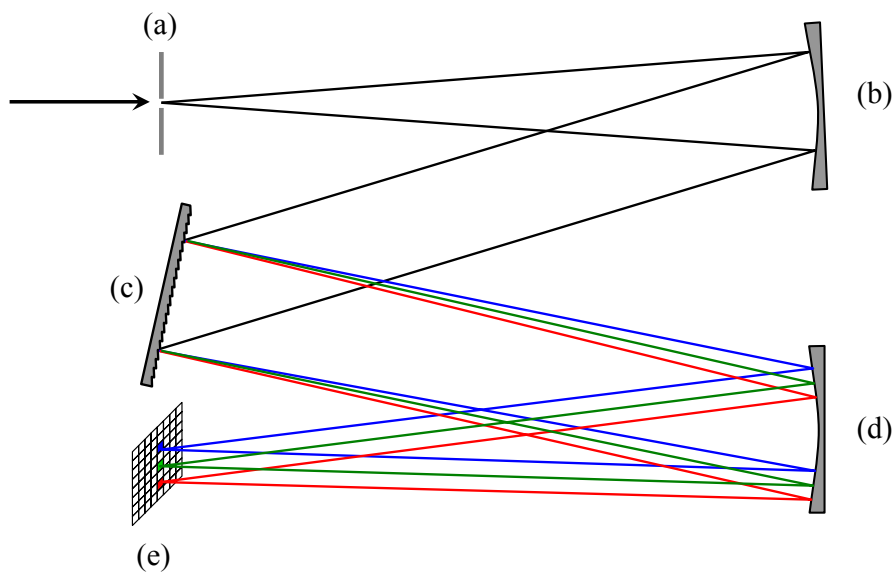
relation connue sous le nom de *loi des réseaux*. On retrouve le faisceau réfléchi dans le cas  $n = 0$  avec  $\theta_r = -\theta_i$ .

On voit d'après l'éq. 5.22 que l'angle de diffraction dépend de la longueur d'onde : le réseau permet de disperser angulairement les différentes composantes spectrales contenues dans un faisceau polychromatique, comme représenté Fig. 5.2. Le pouvoir dispersif du réseau est déterminé par la dérivée de l'angle de diffraction  $\theta_d(\lambda)$  par rapport à la longueur d'onde

$$\frac{d\theta_d}{d\lambda} = \frac{n/d}{\cos \theta_d} \quad (5.23)$$



**Figure 5.2:** (a) Réflexion sur un miroir plan. (b) Diffraction d'un faisceau monochromatique sur un réseau de période  $d$ . (c) Diffraction d'un faisceau polychromatique.



**Figure 5.3:** Schéma de principe d'un spectromètre à réseau

et l'angle de diffraction sera considéré en première approximation comme proportionnel à la longueur d'onde. L'angle de diffraction pouvant être relié au vecteur d'onde transverse du faisceau, on voit qu'un réseau de diffraction effectue finalement une transposition longueur d'onde  $\rightarrow$  vecteur d'onde transverse. Il suffit donc de lui associer une optique convergente, qui associe espace de Fourier et espace direct, pour finalement transposer la longueur d'onde en une coordonnées spatiale. Le problème de la mesure de l'intensité spectrale se ramène finalement à une mesure d'intensité spatiale. La Fig. 5.3 représente un exemple de spectromètre à réseau. Celui-ci comporte :

- (a) une fente d'entrée, permettant de bien contrôler la divergence - limitée par la diffraction sur la fente,
- (b) un miroir concave, dont la distance focale est égale à sa distance à la fente d'entrée, produisant ainsi un faisceau parallèle dirigé vers le réseau de diffraction<sup>2</sup>,
- (c) le réseau de diffraction,
- (d) un second miroir concave permettant de focaliser chaque composante spectrale dans le plan du détecteur,
- (e) un détecteur comme une barrette de photodiodes ou une caméra CCD permettant de mesurer l'intensité spatiale dans le plan focal, elle-même reliée à l'intensité spectrale.

### Spectromètre par transformée de Fourier

Un spectromètre par transformée de Fourier [18] est un instrument permettant d'accéder au spectre d'une source à l'aide d'une méthode interférométrique. Il repose sur l'utilisation d'un interféromètre permettant de produire deux répliques du champ décalées d'un retard  $\tau$  l'une par rapport à l'autre. Il peut s'agir par exemple d'un interféromètre de Michelson, comportant une lame séparatrice et une lame compensatrice, ou bien d'un interféromètre de Mach-Zehnder comme celui représenté Fig. 5.4(a).

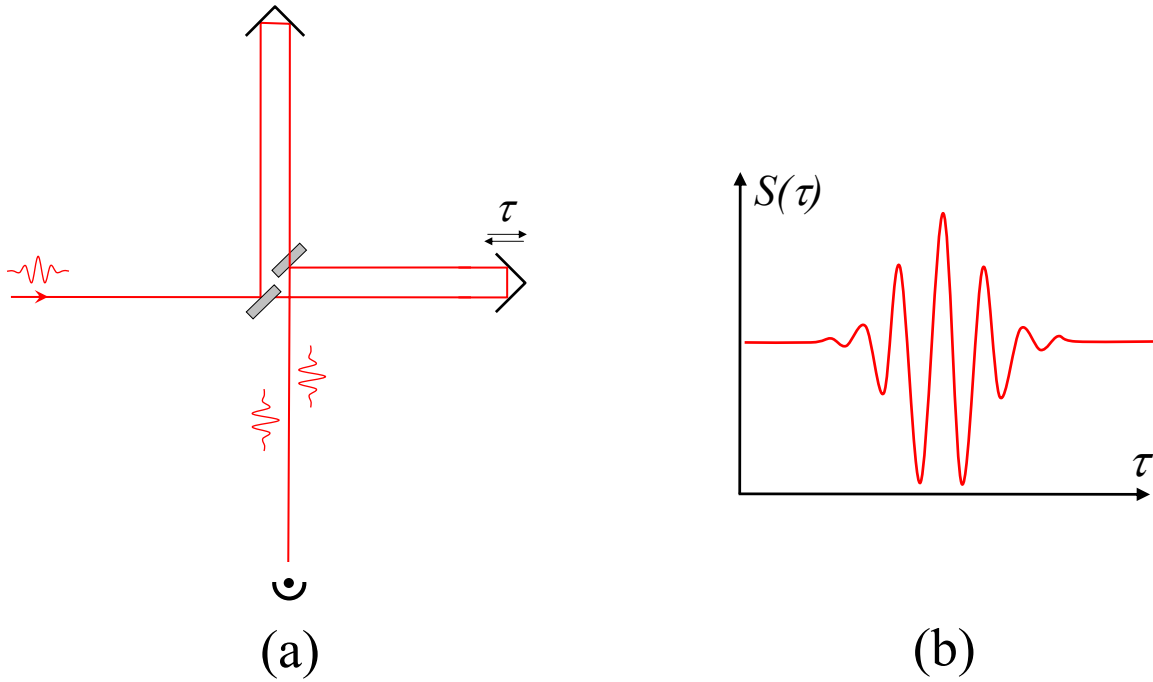
Pour un champ incident  $E(t)$ , le champ électrique total produit par l'interféromètre s'écrit

$$E_{tot}(t) = \frac{1}{2} (E(t) + E(t - \tau)) \quad (5.24)$$

On appelle  $S(\tau)$  le signal mesuré en fonction de  $\tau$  à l'aide d'un détecteur intégrateur. Comme le montre l'éq. 5.19, le signal est alors proportionnel à l'énergie du faisceau, que l'on peut d'après le théorème de Parseval-Plancherel exprimer indifféremment comme l'intégrale de l'intensité spectrale

---

<sup>2</sup>Dans le cas d'un faisceau laser, il est naturellement possible d'omettre ces deux premiers éléments à condition de contrôler précisément l'angle d'incidence du faisceau laser sur le réseau de diffraction



**Figure 5.4:** (a) Schéma de principe d'un spectromètre par transformée de Fourier. Chaque lame semi-transparente comporte un traitement diélectrique en face avant assurant une réflectivité de 50%, ainsi qu'un traitement anti-reflet en face arrière. (b) Exemple de signal mesuré en fonction du retard  $\tau$  dans le cas d'une source de grande largeur spectrale.

ou de l'intensité temporelle. On obtient alors

$$S(\tau) = \int E_{tot}(t)^2 dt = \frac{1}{4} \int (E(t) + E(t - \tau))^2 dt \quad (5.25)$$

On en déduit

$$S(\tau) = \frac{1}{2} \left( \int E(t)^2 dt + \int E(t)E(t - \tau) dt \right) \quad (5.26)$$

Le premier terme est indépendant du retard  $\tau$  et constitue donc une ligne de base horizontale. Le second terme est la fonction d'autocorrélation du champ électrique, qui peut également s'écrire comme le produit de convolution entre le champ  $E(t)$  et son retourné temporel  $E(-t)$ , soit  $g^{(1)}(t) = E(t) \otimes E(-t)$ . On peut encore écrire  $g^{(1)}(t) = E(t) \otimes E(-t)^*$  puisque le champ est une grandeur réelle. Or d'après l'éq. A.9, la transformée de Fourier inverse d'un produit de convolution est le produit des transformées de Fourier inverses. En outre, d'après l'éq. A.4, la transformée de Fourier de  $E(-t)^*$  est simplement  $E(\omega)^*$ . On en déduit donc que la transformée inverse de Fourier de la fonction d'autocorrélation du champ électrique est simplement égale à l'intensité spectrale

$$\mathcal{F}^{-1} [g^{(1)}(t)] (\omega) = \mathcal{F}^{-1} [E(t) \otimes E(-t)^*] = E(\omega)E(\omega)^* = |E(\omega)|^2 \quad (5.27)$$

Remarquons que ce résultat, dont la démonstration effectuée ci-dessus est immédiate pour un champ cohérent comme ceux considérés dans ce cours, est également valable dans le cas d'un champ

aléatoire (source incohérente, laser monochromatique de largeur spectrale limitée par diffusion de phase, etc.). Il s'agit alors du théorème de Wiener-Khintchine [19].

La Fig. 5.4(b) représente un exemple de fonction d'autocorrélation obtenue pour une source de spectre large. La fréquence d'oscillation de cette fonction est directement égale à la fréquence centrale de la source. La largeur temporelle est par définition égale au temps de cohérence de la source, de l'ordre de l'inverse de sa largeur spectrale. Naturellement, dans le cas d'une impulsion courte, la largeur temporelle de la fonction d'autocorrélation ne donne qu'une borne inférieure de la durée de l'impulsion, puisque des impulsions de spectre donné mais de phases spectrales différentes, dont on sait qu'elles peuvent avoir des durées très différentes, sont associées à une même fonction d'autocorrélation égale à la transformée de Fourier du spectre.

En résumé, un spectromètre par transformée de Fourier consiste en un interféromètre permettant d'enregistrer la fonction d'autocorrélation du champ associé à un ordinateur effectuant numériquement la transformée de Fourier inverse pour produire le spectre. La résolution spectrale de ce dispositif est déterminée par l'inverse de la gamme temporelle de variation du retard et peut donc être aisément ajustée.

### 5.3 Mesure de la phase spatiale

Nous considérons dans cette section le cas d'une onde monochromatique de fréquence  $\omega$  dont on souhaite caractériser le profil transverse  $\mathcal{E}(x, y)$  en amplitude et en phase. Comme cela a été discuté plus haut, la mesure de l'amplitude repose simplement sur l'utilisation directe d'une caméra de type CCD et le véritable problème réside donc dans la mesure de la phase spatiale  $\varphi(x, y)$ . La connaissance de cette phase est essentielle notamment pour déterminer dans quelle mesure un faisceau laser pourra être focalisé de manière efficace. En outre, au delà d'une détermination générale de la qualité spatiale d'un faisceau lumineux, il est très intéressant de pouvoir déterminer en tout point la phase spatiale du faisceau lumineux. Ceci sera notamment important lorsque des technologies d'optique adaptative sont mises en oeuvre, permettant de corriger les aberrations de phase spatiale et s'approcher ainsi au mieux des limites de la diffraction. Nous allons exposer ci-dessous trois exemples de méthodes de mesure de phase spatiale.

#### 5.3.1 Interférométrie

Les détecteurs n'étant pas sensibles à la phase spatiale, la première approche envisageable consiste à utiliser l'interférence entre deux faisceaux lumineux afin de transformer une variation de phase en une variation d'amplitude que l'on pourra mesurer. Une telle méthode peut s'appliquer aussi bien au domaine spatial, qui fait l'objet de cette section, qu'au domaine spectral, qui sera discuté à la

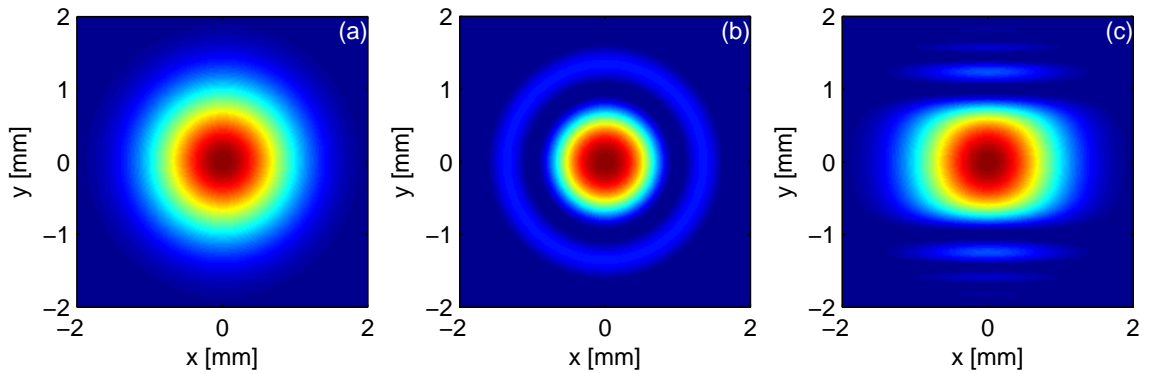
section 5.4.2. Considérons donc un faisceau de référence,  $\mathcal{E}_0(x, y)$ , dont la phase spatiale  $\varphi_0(x, y)$  est supposée connue, interférant sur une caméra avec le faisceau à mesurer  $\mathcal{E}(x, y)$ , de phase spatiale  $\varphi(x, y)$ . Le signal détecté sur la caméra s'écrit

$$S(x, y) = |\mathcal{E}_0(x, y) + \mathcal{E}(x, y)|^2 \quad (5.28)$$

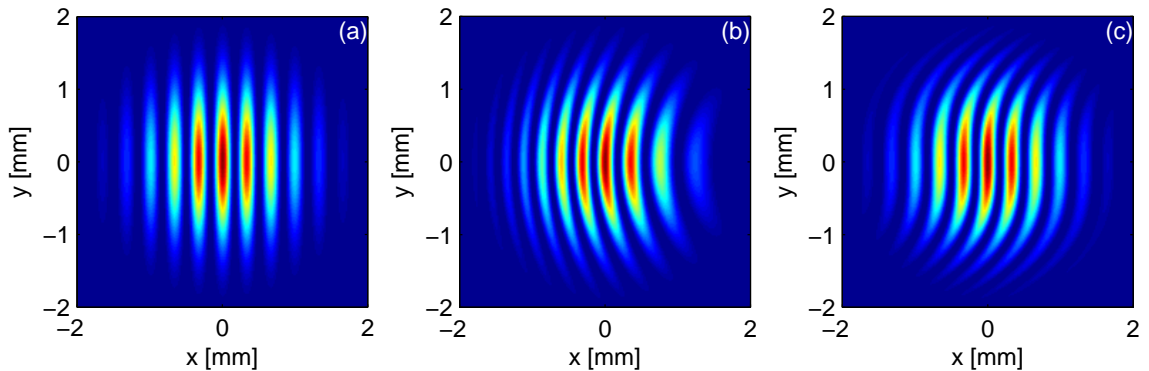
soit

$$\begin{aligned} S(x, y) &= |\mathcal{E}_0(x, y)|^2 + |\mathcal{E}(x, y)|^2 + \mathcal{E}_0^*(x, y)\mathcal{E}(x, y) + \mathcal{E}_0(x, y)\mathcal{E}^*(x, y) \\ &= |\mathcal{E}_0(x, y)|^2 + |\mathcal{E}(x, y)|^2 + 2|\mathcal{E}_0(x, y)| \cdot |\mathcal{E}(x, y)| \cos \Delta\varphi(x, y) \end{aligned} \quad (5.29)$$

où  $\Delta\varphi(x, y) = \varphi(x, y) - \varphi_0(x, y)$  est la différence de phase entre les deux faisceaux. Le troisième terme de l'équation ci-dessus est associé au processus d'interférence et sera sensible à la différence de phase recherchée  $\Delta\varphi(x, y)$ .



**Figure 5.5:** Figures d'interférence obtenues entre un faisceau de référence de phase spatiale plate et un faisceau de phase spatiale  $\varphi(x, y)$ . Les deux faisceaux sont supposés gaussiens avec  $w = 1$  mm et (a)  $\varphi(x, y) = 0$ , (b)  $\varphi(x, y) = \pi(x^2 + y^2)/w^2$  et (c)  $\varphi(x, y) = \pi y^3/w^3$ . Les deux faisceaux sont colinéaires.



**Figure 5.6:** Figures d'interférence obtenues entre deux faisceaux non colinéaires, les autres paramètres étant identiques à ceux de la figure précédente.

Les images représentées Fig. 5.5 illustrent les cas d'une différence de phase nulle (a) ou non nulle (b et c). Toutefois, la relation entre la phase et son cosinus n'étant pas univoque, la phase ne peut être correctement extraite de ce type d'images. Par exemple, l'image représentée Fig. 5.5(c) serait obtenue que la phase soit une fonction paire ou impaire de la coordonnée  $y$ , puisque dans les deux cas la fonction  $\cos \Delta\varphi(x, y)$  serait une fonction paire conforme aux interférences observées. Pour lever cette ambiguïté, il est nécessaire d'introduire un léger angle  $\theta$  entre les deux faisceaux, ce qui revient à multiplier le champ de référence par un facteur de phase  $\exp(-ik_{0x}x)$ , où  $k_{0x} \approx k\theta$ . Ainsi, la différence de phase devient  $\Delta\varphi(x, y) + k_{0x}x$  et l'éq. 5.29 doit maintenant s'écrire

$$S(x, y) = |\mathcal{E}_0(x, y)|^2 + |\mathcal{E}(x, y)|^2 + 2|\mathcal{E}_0(x, y)||\mathcal{E}(x, y)| \cos(\Delta\varphi(x, y) + k_{0x}x) \quad (5.30)$$

Si l'angle  $\theta$  est suffisant, la grandeur  $\Delta\varphi(x, y) + k_{0x}x$  sera une fonction monotone (croissante) de  $x$  et la phase pourra alors être déduite sans ambiguïté de son cosinus. Comme le montre la Fig. 5.6, l'introduction d'une porteuse spatiale permet effectivement de lever l'ambiguïté mentionnée plus haut. Dans le cas de la Fig. 5.6(c), on peut maintenant conclure que la phase  $\varphi(x, y)$  est une fonction impaire de la coordonnée  $y$ . De plus, il est possible d'extraire une information quantitative de ce type d'interférogramme en ayant recours au filtrage de Fourier décrit ci-dessous [20]. En effet, reformulons l'éq. 5.30 sous la forme suivante

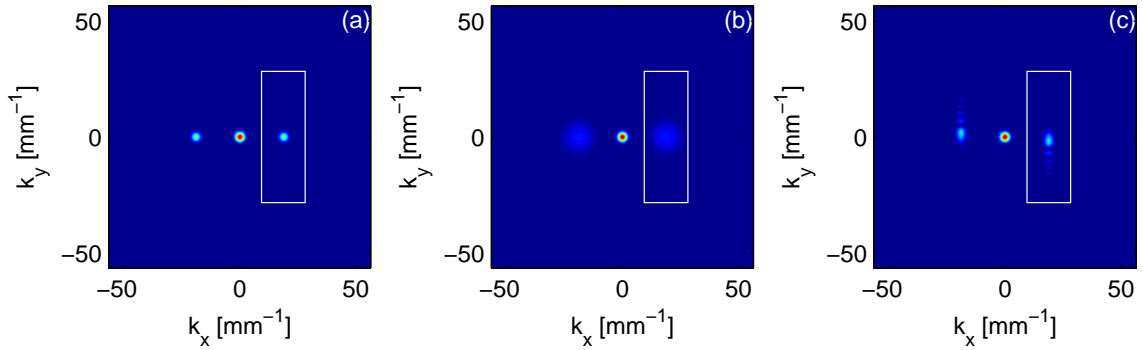
$$S(x, y) = |\mathcal{E}_0(x, y)|^2 + |\mathcal{E}(x, y)|^2 + \mathcal{E}_0^*(x, y)\mathcal{E}(x, y)e^{ik_{0x}x} + \mathcal{E}_0(x, y)\mathcal{E}^*(x, y)e^{-ik_{0x}x} \quad (5.31)$$

La transformée bidimensionnelle de l'image  $S(x, y)$  s'écrit

$$\begin{aligned} S(k_x, k_y) &= \frac{1}{4\pi^2} (\mathcal{E}_0(k_x, k_y) \otimes \mathcal{E}_0^*(-k_x, -k_y) + \mathcal{E}(k_x, k_y) \otimes \mathcal{E}^*(-k_x, -k_y) \\ &+ \mathcal{E}_0^*(-k_x + k_{0x}, -k_y) \otimes \mathcal{E}(k_x, k_y) + \mathcal{E}_0(k_x - k_{0x}, k_y) \otimes \mathcal{E}^*(-k_x, -k_y)) \end{aligned} \quad (5.32)$$

Les deux premiers termes correspondent aux fonctions d'autocorrélation des champs  $\mathcal{E}_0$  et  $\mathcal{E}$  dans l'espace de Fourier, et contribuent au pic central représenté Fig. 5.7. Le troisième terme correspond à la fonction d'intercorrélacion  $\mathcal{E}_0^*(-k_x, -k_y) \otimes \mathcal{E}(k_x, k_y)$  décalée latéralement de la fréquence spatiale de la porteuse,  $k_{0x}$ , et contribue au pic centré sur le point de coordonnées  $(k_{0x}, 0)$ . Le quatrième et dernier terme, conjugué du précédent, est décalé dans l'autre sens et contribue donc au troisième pic centré sur le point de coordonnées  $(-k_{0x}, 0)$ .

On observe sur la Fig. 5.7 que les différents termes de l'éq. 5.31, qui étaient superposés dans l'espace direct, occupent des régions disjointes de l'espace réciproque. Plus précisément, ce découplage interviendra pour une valeur de  $k_{0x}$  supérieure à la largeur du support des fonctions d'autocorrélation dans l'espace réciproque, ce qui correspond typiquement à une situation où plusieurs franges



**Figure 5.7:** Transformées de Fourier bidimensionnelles des images représentées Fig. 5.6

d'interférence apparaissent dans l'image de départ. Dans ce cas, il est aisé d'isoler le terme de corrélation en effectuant un fenêtrage dans l'espace réciproque, c'est à dire en annulant tous les pixels de l'image se trouvant à l'extérieur du rectangle blanc représenté Fig. 5.7. L'image filtrée s'écrit alors

$$S_F(k_x, k_y) = \frac{1}{4\pi^2} \mathcal{E}_0^*(-k_x + k_{0x}, -k_y) \otimes \mathcal{E}(k_x, k_y) \quad (5.33)$$

et une transformée de Fourier inverse permet de revenir à l'espace direct

$$S_F(x, y) = \mathcal{E}_0^*(x, y) \exp(ik_{0x}x) \mathcal{E}(x, y) \quad (5.34)$$

produisant une grandeur complexe dont la phase  $\Delta\varphi(x, y) + k_{0x}x$  permet d'accéder à la phase  $\varphi(x, y)$  connaissant les valeurs de  $k_{0x}$  et  $\varphi_0(x, y)$ . On peut remarquer qu'il existe une profonde analogie entre l'algorithme décrit ci-dessus

$$S(x, y) \rightarrow S(k_x, k_y) \xrightarrow{\text{Fenêtrage}} S_F(k_x, k_y) \rightarrow S_F(x, y) \quad (5.35)$$

et la transformation nous ayant permis de passer du champ réel à sa représentation analytique (voir eq. 1.7). Dans les deux cas, on peut extraire une grandeur complexe de sa partie réelle car les deux termes conjugués contribuant à la partie réelle se trouvent dans des demi-espaces de fréquences disjoints.

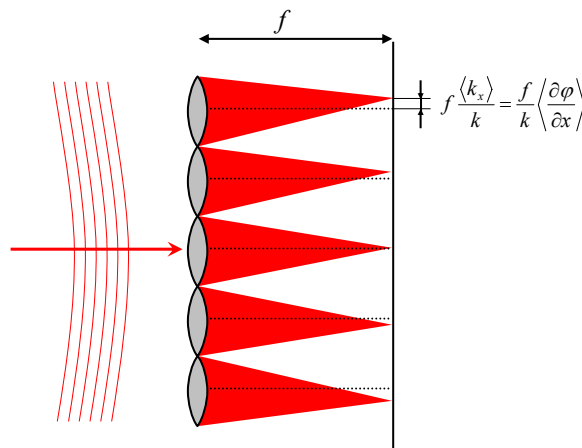
Pour conclure, le filtrage de Fourier introduit ci-dessus permet d'extraire la phase spatiale d'un faisceau lumineux à partir des franges produites par l'interférence entre ce faisceau et un faisceau de référence faisant un léger angle avec le faisceau à caractériser. Cette méthode est à la fois simple et précise, mais elle soulève naturellement la question de la mesure de la phase du



faisceau de référence. Une première option est de produire le faisceau de référence à l'aide d'un dispositif optique introduisant un grandissement très important du faisceau à caractériser puis à n'en sélectionner que le centre. La phase spatiale du faisceau ainsi produit sera la phase  $\varphi(x, y)$  dilatée d'un facteur considérable, et il sera donc raisonnable de considérer que le faisceau produit a une phase nulle. La seconde option consiste à utiliser une méthode auto-référencée comme celles décrites ci-dessous.

### 5.3.2 Méthode de Shack - Hartmann

La méthode de Shack-Hartmann consiste à placer une caméra CCD au foyer d'une matrice de  $N \times N$  micro-lentilles (voir Fig. 5.8). On suppose en outre que le nombre de pixels de la caméra est très supérieur à  $N^2$ , ce qui permet de mesurer avec une précision suffisante les coordonnées du barycentre de chacune des  $N \times N$  images produites par la matrice de micro-lentilles.



**Figure 5.8:** Schéma de principe du dispositif de Shack-Hartmann. Si la déformation du front d'onde est suffisamment faible, on peut considérer que chaque micro-lentille focalise une mini onde plane dont le vecteur d'onde transverse est simplement le gradient de la phase spatiale du faisceau, ce qui produit un déplacement proportionnel du point focal produit.

Considérons le faisceau produit par l'une de ces micro-lentilles. Nous avons établi à la section 1.5.2 que le champ au foyer d'une lentille était proportionnel à la transformée de Fourier du champ en amont de la lentille prise au point de coordonnées  $(k_x = kx/f, k_y = ky/f)$  dans l'espace réciproque, où  $k$  est le vecteur d'onde et  $f$  est la distance focale de la lentille. Les coordonnées du barycentre sont donc  $(f\langle k_x \rangle/k, f\langle k_y \rangle/k)$ , où les valeurs moyennes s'entendent sur la fonction  $u(k_x, k_y)$  prise juste avant la micro-lentille. Or, de même que nous avons établi les relations  $\langle x \rangle = -\langle \partial \varphi / \partial k_x \rangle$  (voir eq. 1.66) et  $\langle t \rangle = \langle d\varphi / d\omega \rangle$  (voir eq. A.28), on montre que

$$\langle k_x \rangle = \left\langle \frac{\partial \varphi}{\partial x} \right\rangle \quad (5.36)$$

On en déduit que les coordonnées du barycentre de l'image dans le plan focal sont

$$\left( \frac{f}{k} \left\langle \frac{\partial \varphi}{\partial x} \right\rangle, \frac{f}{k} \left\langle \frac{\partial \varphi}{\partial y} \right\rangle \right) \quad (5.37)$$

Si la micro-lentille est suffisamment petite par rapport à l'échelle de variation du gradient de la phase spatiale, on peut supposer que la valeur moyenne du gradient de phase dans la surface délimitée par la micro-lentille est simplement la valeur de ce gradient échantillonné au centre de la micro-lentille. On en conclut donc que les coordonnées des  $N \times N$  barycentres constituent un échantillonnage de la fonction  $\nabla_{\perp} \varphi(x, y) = (\partial \varphi / \partial x, \partial \varphi / \partial y)$ . La phase spatiale peut en être déduite à l'aide d'une intégration bidimensionnelle.

### 5.3.3 Interférométrie à décalage

L'interférométrie à décalage utilise la méthode interférométrique décrite à la section 5.3.1, en utilisant comme faisceau de référence le faisceau lui-même, mais décalé latéralement selon l'axe  $x$  d'une petite quantité  $\delta x$ . De cette façon, la différence de phase extraite par le filtrage de Fourier décrit plus haut s'écrit

$$\Delta \varphi(x, y) = \varphi(x, y) - \varphi(x - \delta x, y) \approx \delta x \frac{\partial \varphi}{\partial x} \quad (5.38)$$

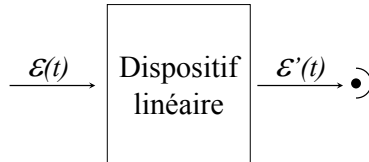
On accède ainsi à une composante cartésienne du gradient de la phase. Une seconde mesure permet d'accéder à la composante selon  $y$ , et donc au vecteur  $\nabla_{\perp} \varphi(x, y)$  comme dans le cas de la méthode de Shack - Hartmann. En pratique, les décalages transverses peuvent être obtenus à l'aide de réseaux de phase, dans des dispositifs baptisés interféromètre à décalage tri-latéral [21, 22] ou quadri-latéral [23].

## 5.4 Mesure de la phase spectrale

### 5.4.1 Spécificités du domaine spectro-temporel

L'analogie spatio-temporelle permettrait en principe d'envisager un transfert pur et simple des techniques de mesure de phase spatiale au problème de la mesure de la phase spectrale. Il existe cependant une différence notable entre les domaines spatial et temporel : comme nous l'avons vu ci-dessus, les méthodes de mesure de phase spatiale reposent souvent sur la possibilité de mesurer ou de filtrer l'intensité spatiale dans deux plans conjugués par transformée de Fourier. Or, s'il est aisé de mesurer ou de filtrer l'intensité dans le domaine spectral, il en va autrement dans le domaine temporel en raison du temps de réponse fini des détecteurs et des modulateurs disponibles. En conséquence, dans le cas d'impulsions ultra-courtes (100 fs ou moins), il sera nécessaire de développer des méthodes spécifiques.

Supposons donc que l'on ne dispose que d'un système de mesure stationnaire, c'est à dire invariant par translation dans le temps, associé à un détecteur intégrateur, donc uniquement sensible à l'énergie des impulsions produites par le dispositif. Supposons également que le dispositif de mesure n'emploie que des méthodes d'optique linéaire (séparateurs de faisceaux, réseaux de diffraction, filtres linéaires, etc.). Le montage expérimental a dans ce cas la forme générale représentée sur la figure 5.9.



**Figure 5.9:** Schéma général d'un dispositif de mesure linéaire et stationnaire

Le détecteur n'étant sensible qu'à l'énergie de l'impulsion produite par le dispositif, le signal détecté s'écrit

$$S = \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{E}'(t)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{E}'(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \quad (5.39)$$

Le dispositif étant linéaire, le champ transmis s'écrit quant à lui

$$\mathcal{E}'(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} R(t, t') \mathcal{E}(t') dt' = \int_{-\infty}^{+\infty} R(t - t') \mathcal{E}(t') dt' \quad (5.40)$$

où la réponse linéaire  $R(t, t') = R(t - t')$  a été supposée invariante par translation dans le temps. On en déduit alors la relation  $\mathcal{E}'(\omega) = R(\omega) \mathcal{E}(\omega)$ , où  $R(\omega)$  est la fonction de transfert complexe du dispositif linéaire. Le signal mesuré s'écrit finalement

$$S = \int_{-\infty}^{+\infty} |R(\omega)|^2 |\mathcal{E}(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \quad (5.41)$$

Ainsi le signal détecté est uniquement sensible à l'intensité spectrale  $|\mathcal{E}(\omega)|^2$  de l'impulsion à caractériser. On en déduit qu'il est totalement impossible de mesurer la phase spectrale d'une impulsion ultracourte à l'aide d'une méthode à la fois stationnaire et linéaire [24, 25, 26, 27].

Il existe cependant une exception notable à ce principe général lorsque l'on dispose d'une impulsion de référence de phase spectrale connue, auquel cas une méthode linéaire de type interférométrique permettra de déterminer la phase spectrale de l'impulsion inconnue (section 5.4.2). Dans le cas inverse, on parle de méthodes auto-référencées, dont l'objectif est de mesurer la phase spectrale d'une impulsion ultra-courte sans utiliser de référence. Il sera notamment nécessaire de recourir à de telles techniques pour caractériser l'impulsion de référence utilisée dans les méthodes interférométriques. D'après le résultat établi plus haut, une méthode auto-référencée de car-

actérisation d'impulsion devra naturellement être soit non stationnaire, soit non-linéaire.

### 5.4.2 Interférométrie

Nous considérons ici le cas où l'on dispose d'une impulsion de référence parfaitement caractérisée,  $E_0(t)$ , que l'on fait interférer avec l'impulsion à mesurer,  $E(t)$ . Le spectre de la superposition des deux champs,  $|E_0(\omega) + E(\omega)|^2$ , contient un terme  $f(\omega) = E_0^*(\omega)E(\omega)$  dont la phase spectrale

$$\Delta\varphi(\omega) = \varphi(\omega) - \varphi_0(\omega) \quad (5.42)$$

est la différence entre la phase de l'impulsion inconnue et celle de l'impulsion de référence. Cette dernière étant par hypothèse déjà connue, on pourra en déduire la phase spectrale de l'impulsion inconnue par une simple addition. La nature linéaire de cette méthode la rend intrinsèquement plus sensible que les approches non-linéaires et il sera donc préférable d'y avoir recours, dès lors qu'on dispose d'une impulsion de référence appropriée.

#### Interférométrie temporelle

Remarquons que la grandeur  $f(\omega)$  introduite plus haut n'est autre que la transformée de Fourier inverse de l'inter-corrélation entre les deux champs :

$$f(t) = E_0(-t) \otimes E(t) \quad (5.43)$$

Cette grandeur peut être directement mesurée expérimentalement à l'aide d'un dispositif comme celui représenté Fig. 5.10.

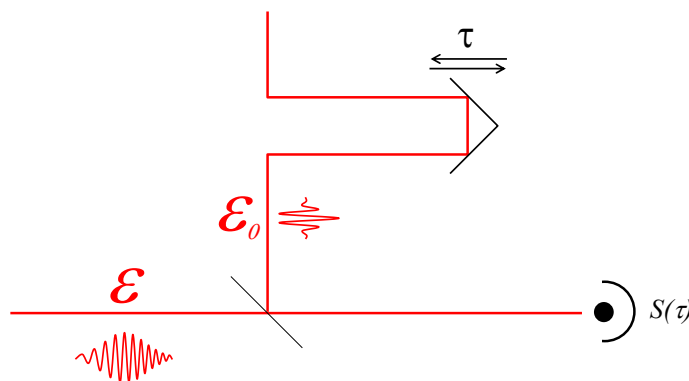


Figure 5.10: Dispositif expérimental pour interférométrie temporelle

Le signal obtenu en faisant varier le retard  $\tau$  s'écrit

$$S(\tau) = \int (E(t) + E_0(t - \tau))^2 dt \quad (5.44)$$

$$= \int (E(t)^2 + E_0(t)^2) dt + 2 \int E(t)E_0(t - \tau) dt \quad (5.45)$$

On constate que seule la seconde intégrale dépend du retard  $\tau$ , et qu'elle produit directement la fonction d'inter-corrélation  $f(\tau)$  entre les deux champs.

Une expérience d'interférométrie temporelle permet donc d'accéder simplement à la phase spectrale d'une impulsion inconnue à l'aide d'une impulsion de référence. Il s'agit en outre d'un mode de détection homodyne, et donc très sensible puisque le signal mesuré est directement proportionnel au champ électrique. Le seul inconvénient de cette méthode est qu'elle nécessite une stabilité interférométrique pendant toute la durée du balayage du retard  $\tau$ .

### Interférométrie spectrale

Une alternative à l'interférométrie temporelle est l'interférométrie spectrale [28, 29], dont le schéma expérimental est représenté Fig. 5.11. L'impulsion de référence et l'impulsion à mesurer sont décalées temporellement d'un retard  $\tau$  fixe.

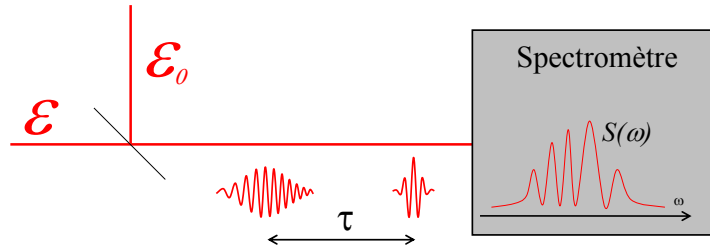


Figure 5.11: Dispositif expérimental pour interférométrie spectrale

Le signal détecté par le spectromètre s'écrit alors

$$S(\omega) = |E_0(\omega) + E(\omega) \exp(i\omega\tau)|^2 \quad (5.46)$$

où le facteur  $\exp(i\omega\tau)$  a été introduit pour tenir compte du retard  $\tau$  entre les deux impulsions. On obtient alors

$$S(\omega) = |E_0(\omega)|^2 + |E(\omega)|^2 + f(\omega) \exp(i\omega\tau) + f^*(\omega) \exp(-i\omega\tau) \quad (5.47)$$

La somme des deux derniers termes donne  $2|f(\omega)| \cos(\Delta\varphi(\omega) + \omega\tau)$ , ce qui produit un spectre dit cannelé associé à des franges spectrales de période environ égale à  $2\pi/\tau$ . Ces franges sont l'équivalent spectral des franges spatiales représentées Fig. 5.6 et permettent d'accéder à la phase

spectrale  $\Delta\varphi(\omega)$ , dont une variation non linéaire avec la fréquence se manifestera par une non équidistance des franges spectrales. Comme pour extraire un signal analytique d'une grandeur réelle ou pour traiter des franges d'interférences spatiales, un filtrage de Fourier permet d'extraire la phase de son cosinus. En effet, la transformée de Fourier de l'éq. 5.47 s'écrit

$$S(t) = E_0(-t) \otimes E_0(t) + E(-t) \otimes E(t) + f(t - \tau) + f^*(-t - \tau) \quad (5.48)$$

Les deux premiers termes sont les autocorrélations du premier ordre de chacun des champs incidents et sont donc centrés en  $t = 0$ . Le troisième terme est la fonction d'intercorrélacion entre les deux champs décalée du retard  $\tau$  et est donc centré en  $t = \tau$ , tandis que le dernier terme, retourné temporel du précédent, est centré en  $t = -\tau$ . Il suffit donc d'appliquer un fenêtrage dans l'espace des temps pour ne conserver que le terme centré en  $t = \tau$ , puis de revenir dans l'espace des fréquences à l'aide d'une transformée de Fourier inverse pour obtenir  $f(\omega) \exp(i\omega\tau)$  et donc  $\Delta\varphi(\omega)$ .

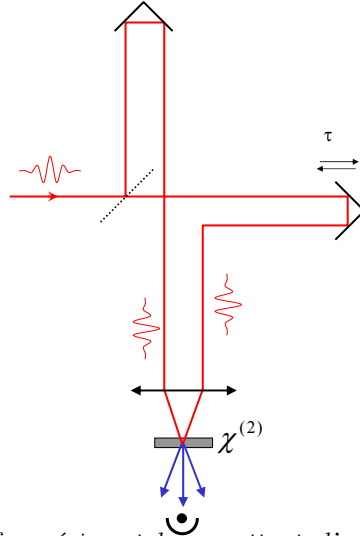
Cette méthode de mesure de phase, intitulée interférométrie spectrale par transformée de Fourier [25], est donc une technique présentant les avantages de l'interférométrie temporelle en termes de sensibilité, mais qui ne nécessite pas de balayage du retard entre les deux impulsions et qui tire parti des possibilité d'acquisition simultanée de détecteurs multicanaux comme les caméras CCD. Son implémentation expérimentale requiert toutefois des précautions liées à la calibration en fréquence du spectromètre [30, 31].

Les méthodes interférométriques, temporelles ou spectrales, décrites ci-dessus ont deux domaines d'applications. Le premier consiste à mesurer la fonction de transfert complexe  $r(\omega)$  d'un dispositif linéaire que l'on introduira dans l'un des bras d'un interféromètre, de sorte que  $E(\omega) = r(\omega)E_0(\omega)$  et  $f(\omega) = r(\omega)|E_0(\omega)|^2$ . La phase mesurée est dans ce cas directement égale à la phase de la fonction de transfert  $r(\omega)$ . On peut noter que la phase de l'impulsion n'intervient pas, ce qui signifie qu'il n'est pas nécessaire d'utiliser une impulsion femtoseconde pour une mesure de ce type : une source blanche incohérente conviendra également. Le deuxième domaine d'application concerne la mesure d'une impulsion inconnue lorsque l'on dispose d'une impulsion de référence appropriée (ce qui signifie que son support spectral doit contenir celui de l'impulsion à mesurer). Il est pour cela nécessaire de caractériser l'impulsion de référence, ce qui nécessite une méthode auto-référencée comme celles décrites ci-dessous.

### 5.4.3 Autocorrélation

Considérons le montage représenté Fig. 5.12. Comme dans un interféromètre de Michelson on divise le faisceau incident en deux parties égales, mais les deux faisceaux ne sont pas recombinaés de manière colinéaire, et on n'a donc pas de phénomène d'interférences. On dispose ainsi de deux

faisceaux parallèles, l'un pouvant être retardé par rapport à l'autre, que l'on focalise dans un cristal non-linéaire quadratique.



**Figure 5.12:** Dispositif expérimental permettant d'enregistrer l'autocorrélation de l'intensité d'une impulsion brève.

On engendre ainsi une polarisation non-linéaire dans ce cristal résultant de la superposition des deux champs  $\mathcal{E}(t) \exp(i\vec{k}_1 \cdot \vec{r})$  et  $\mathcal{E}(t - \tau) \exp(i\vec{k}_2 \cdot \vec{r})$ , où  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  sont les vecteurs d'onde des deux faisceaux incidents sur le cristal. En notation complexe, le terme de la polarisation non-linéaire correspondant à la génération de second harmonique (ou plus précisément à l'addition de fréquences) s'écrit

$$\mathcal{P}^{(2)}(\vec{r}, t) = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \left( \mathcal{E}(t) \exp(i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}) + \mathcal{E}(t - \tau) \exp(i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}) \right)^2 \quad (5.49)$$

Cette polarisation comprend des termes en  $\exp(2i\vec{k}_1 \cdot \vec{r})$  et  $\exp(2i\vec{k}_2 \cdot \vec{r})$ , qui correspondent au processus de doublage de fréquence de chacun des faisceaux incidents. Les champs rayonnés par ces termes de la polarisation produiront des faisceaux lumineux se propageant dans la direction des faisceaux incidents. Mais il y a également un terme en  $\exp(i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \cdot \vec{r})$  qui donnera naissance à un faisceau se propageant selon  $\vec{k}_1 + \vec{k}_2$ , c'est à dire selon la bissectrice, et qui correspond au processus d'addition de fréquences entre les deux faisceaux. Le terme correspondant de la polarisation s'écrit

$$\mathcal{P}^{(2)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}(t) \mathcal{E}(t - \tau) \exp(i(\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \cdot \vec{r}) \quad (5.50)$$

Le champ rayonné sera donc approximativement proportionnel au produit des deux champs, et l'intensité temporelle correspondante sera donc proportionnelle au produit des intensités temporelles des deux faisceaux incidents, respectivement  $I(t)$  et  $I(t - \tau)$ . Si l'on mesure uniquement

le faisceau émis selon la bissectrice, le signal détecté en fonction de  $\tau$  s'écrit alors

$$S(\tau) = \int I(t)I(t - \tau)dt \quad (5.51)$$

Il s'agit de la fonction d'autocorrélation de l'intensité. On ne peut en déduire *a priori* la forme exacte de l'impulsion, mais il s'agit néanmoins d'une information intéressante nous renseignant sur la durée de l'impulsion. Si l'on considère la durée au sens de la largeur à mi-hauteur, le rapport entre la largeur de la fonction d'autocorrélation et celle de l'intensité dépend naturellement de la forme de l'impulsion. On utilise souvent le facteur  $\sqrt{2}$  (correspondant à une impulsion gaussienne) ou 1.54 (correspondant à une impulsion de forme sécante hyperbolique carrée). Il est en outre possible d'obtenir des informations plus précises sur la durée de l'impulsion au sens de l'écart quadratique moyen. En effet, considérons la densité de probabilité  $s(\tau) = S(\tau)/S_0$ , où  $S_0$  est l'intégrale

$$S_0 = \int S(\tau)d\tau = \int \int I(t)I(t - \tau)dt d\tau = \left( \int I(t)dt \right)^2 \quad (5.52)$$

La fonction  $s(\tau)$  est paire donc  $\langle \tau \rangle = 0$ . Par ailleurs

$$\langle \tau^2 \rangle = \int \tau^2 s(\tau)d\tau = \frac{1}{S_0} \int \int \tau^2 I(t)I(t - \tau)dt d\tau \quad (5.53)$$

En posant  $t' = t - \tau$  et donc  $\tau^2 = (t - t')^2 = t^2 + t'^2 - 2tt'$ , on obtient

$$\langle \tau^2 \rangle = \frac{1}{S_0} \int \int (t^2 + t'^2 - 2tt')I(t)I(t')dt dt' \quad (5.54)$$

Soit  $\tau^2 = 2\langle t^2 \rangle - 2\langle t \rangle^2$ , où les valeurs moyennes sur  $t$  sont pondérées par l'intensité temporelle normalisée,  $I(t)/\sqrt{S_0}$ . On en déduit la relation

$$\Delta\tau = \sqrt{2}\Delta t \quad (5.55)$$

La durée de l'impulsion, au sens de l'écart quadratique moyen, peut donc être déduite de la mesure d'autocorrélation de l'intensité, sans avoir à formuler d'hypothèse sur la forme exacte de l'impulsion. Il existe en outre un cas particulier où il est même possible d'en déduire la forme exacte de l'impulsion, c'est celui d'une impulsion limitée par transformée de Fourier. En effet, on peut calculer à l'aide du spectre de l'impulsion la grandeur  $\Delta t_{\varphi=0}$  correspondant à la durée de l'impulsion dans le cas d'une phase spectrale nulle. Si cette durée est égale à  $\Delta\tau/\sqrt{2}$ , cela signifie que la variance du retard de groupe est nulle (voir eq. A.31), et donc que l'impulsion est limitée par transformée de Fourier. En d'autres termes, si l'autocorrélation mesurée est en bon accord avec celle calculée à partir du spectre expérimental, on peut en déduire une détermination complète



du champ électrique associé à l'impulsion. Lorsque l'impulsion n'est pas limitée par transformée de Fourier, il est cependant nécessaire d'utiliser une méthode de mesure complète comme celles décrites ci-dessous.

#### 5.4.4 Autocorrélation résolue spectralement

Une façon d'obtenir plus d'information d'un autocorrélateur du deuxième ordre comme celui représenté Fig. 5.12 consiste à remplacer le détecteur par un spectromètre, qui mesure le spectre de puissance du champ  $E(t)E(t - \tau)$ , soit

$$S(\omega, \tau) = \left| \int E(t)E(t - \tau) \exp(i\omega t) dt \right|^2 \quad (5.56)$$

Il a été montré qu'à l'aide d'un algorithme itératif, il était possible d'extraire la phase spectrale de cette grandeur [32, 33]. Cette méthode, intitulée *Frequency-resolved optical gating*, ou FROG, présente une certaine analogie avec la méthode de Shack-Hartmann : on observe ici le spectre d'une tranche temporelle du champ à caractériser, tandis que dans la méthode de Shack-Hartmann on observe l'image au foyer d'une lentille (donc dans l'espace de Fourier) d'une petite portion du faisceau incident. Cependant, dans le domaine temporel, on ne dispose pas de porte temporelle suffisamment rapide, et il faut donc utiliser l'impulsion elle-même  $E(t - \tau)$  pour échantillonner le champ  $E(t)$ . La porte temporelle n'étant pas connue, il est nécessaire d'avoir recours à un algorithme itératif.

#### 5.4.5 Interférométrie à décalage spectral

La transposition au domaine spectro-temporelle de l'interférométrie à décalage est une méthode intitulée SPIDER, pour *Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction* [34]. Elle consiste à décaler le spectre d'une impulsion par sommation de fréquence avec une impulsion étirée, de sorte que le recouvrement temporel entre l'impulsion courte et l'impulsion étirée sélectionne une fréquence pure  $\omega_1$  dans le spectre de l'impulsion étirée. Le champ produit par le processus de somme de fréquence s'écrit donc simplement  $E(\omega - \omega_1)$ , soit le champ  $E(\omega)$  décalé d'une quantité  $\omega_1$  vers les hautes fréquences. Une seconde réplique de l'impulsion courte décalée temporellement sélectionne une fréquence pure  $\omega_2$  de l'impulsion étirée, ce qui produit le champ  $E(\omega - \omega_2)$ . L'interférence spectrale entre ces deux impulsions permet alors d'en déduire  $\varphi(\omega - \omega_2) - \varphi(\omega - \omega_1) = (\omega_2 - \omega_1)d\varphi/d\omega$ , d'où l'on peut reconstruire la phase spectrale par une simple intégration. Parmi les avantages du SPIDER par rapport au FROG, on pourra notamment citer :

- un algorithme non itératif de reconstruction de la phase,

- une mesure plus rapide puisqu'un seul spectre cannelé permet de reconstruire la phase spectrale,
- par voie de conséquence une mesure monocoup plus facile à mettre en oeuvre, tant au niveau de l'acquisition que du traitement numérique des données,
- des conditions moins contraignantes sur l'acceptance spectrale du cristal non-linéaire, ce qui est particulièrement important lors de la caractérisation d'impulsions de durée inférieure à 10 fs.

Le principal inconvénient du SPIDER par rapport au FROG est la faible grandeur du signal produit, qui rend son implémentation délicate dans le cas de sources non amplifiées. En effet, le signal produit par somme de fréquence (SPIDER) est notablement plus faible qu'un simple doublage de fréquence (FROG) en raison de l'intensité crête bien moindre de l'impulsion étirée intervenant dans le processus non-linéaire. Cet inconvénient a été partiellement atténué récemment avec la mise en oeuvre du SPIDER homodyne (HOT SPIDER) où une détection homodyne du champ somme de fréquence permet d'accroître la sensibilité de la méthode, au prix modique d'un doublement du nombre de mesures à effectuer [35].

Remarquons que la méthode SPIDER peut également être implémentée dans un dispositif linéaire, mais non stationnaire, le décalage en fréquence étant introduit à l'aide d'un modulateur de phase électro-optique [36, 37].

## 5.5 Mesure de la phase spatio-temporelle

Il est naturellement possible de combiner des méthodes de mesure de phase spatiale et spectrale pour procéder à une caractérisation complète du champ électrique. Cependant, les détecteurs usuels (CCD) n'ayant que deux dimensions alors que la grandeur à mesurer  $E(x, y, \omega)$  en possédant trois, on se contente en général de caractériser une seule dimension spatiale en plus de la dimension spectrale [38, 39].



## Chapitre 6

# Applications des impulsions femtosecondes

Depuis leur apparition il y a une vingtaine d'années, les lasers femtosecondes ont effectué des progrès considérables au niveau de la durée, de l'énergie et de la qualité des impulsions produites. L'objet de ce chapitre est d'aborder brièvement ce domaine de recherche à titre d'illustration des concepts d'optique non-linéaire introduits plus haut. Le lecteur intéressé par une description plus approfondie pourra se référer aux ouvrages spécialisés [40, 15].

La production d'impulsions ultracourtes à l'aide de lasers femtosecondes a ouvert un vaste domaine d'applications dans des disciplines scientifiques aussi variées que la physique, la chimie et la biologie. Il faut également noter de nombreuses applications déjà industrielles, par exemple en usinage laser ou dans le domaine biomédical. Tout naturellement, la première caractéristique des impulsions femtosecondes que l'on a cherché à exploiter est leur extrême brièveté. La spectroscopie femtoseconde, qui fait l'objet de la section 6.1, consiste précisément à caractériser directement dans le domaine temporel la dynamique ultrarapide des nombreux processus intervenant à cette échelle de temps. On peut également adopter le point de vue fréquentiel, qui consiste à représenter la transformée de Fourier inverse de cette réponse percussive, soit la fonction  $\chi^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n)$  introduite à la section 2.1. Cette approche dans l'espace des fréquences, intitulée spectroscopie multidimensionnelle, sera décrite à la section 6.2. Au delà de la spectroscopie, dont l'objet est de caractériser le système étudié, un autre intérêt des impulsions femtosecondes est de contrôler l'état quantique du système pour atteindre un objectif spécifique. Cette démarche, dénommée contrôle cohérent (section 6.3), va de soi en physique atomique mais nécessite en phase liquide ou solide l'utilisation d'impulsions ultracourtes afin de prendre de vitesse les processus de déphasage intervenant alors à l'échelle picoseconde.

Un second aspect non moins important associé aux impulsions ultracourtes est leur formidable

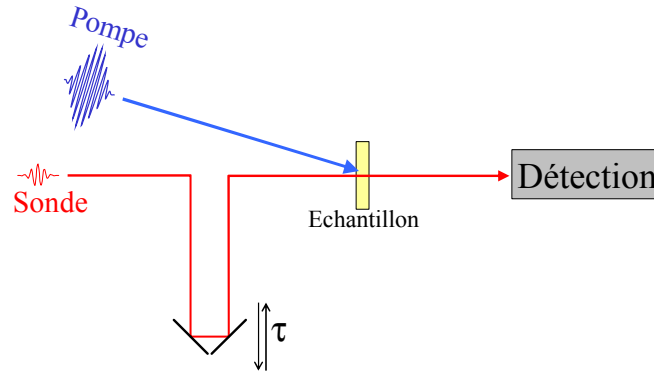
puissance crête, résultant tout simplement du fait que l'on divise une énergie donnée par une durée extraordinairement petite. Les puissances aujourd'hui obtenues peuvent aller jusqu'au PW ( $10^{15}$  W) et permettent d'atteindre le régime relativiste. Le nouveau champ de recherche ainsi rendu accessible - intitulé physique des hautes intensités - sort du cadre de ce cours. On peut néanmoins citer des applications comme la génération d'impulsions X femtosecondes ou l'accélération de particules par laser. En outre, la forte puissance des impulsions femtosecondes se manifeste également pour des énergies d'impulsions plus modérées. Pour cette raison, le domaine de l'optique non-linéaire sera particulièrement facile à atteindre avec des impulsions femtosecondes, comme cela a déjà été discuté plus haut. Le fait que l'optique non-linéaire soit accessible en régime modéré a également rendu possible ce qui aurait été impensable avec des lasers continus : observer des phénomènes non-linéaires dans des systèmes aussi fragiles que des objets biologiques, *in vitro* ou *in vivo*. C'est le domaine de la microscopie non-linéaire.

La classification effectuée ci-dessus n'est évidemment pas exhaustive. Des phénomènes aussi importants que la métrologie des fréquences ou l'usinage femtoseconde, pour n'en citer que deux, ne seront ainsi pas discutés dans ce chapitre. Le lecteur intéressé par ces domaines pourra consulter divers ouvrages plus approfondis [40].

## 6.1 Spectroscopie femtoseconde

Les impulsions femtosecondes étant les événements les plus courts que l'on sache produire, il n'est pas possible d'utiliser directement un détecteur rapide pour observer la réponse temporelle d'un échantillon à cette échelle de temps. La spectroscopie femtoseconde [41] repose donc, comme la caractérisation, sur une approche purement optique, où une séquence d'impulsions est focalisée sur l'échantillon étudié. Les énergies des impulsions transmises ou émises par l'échantillon sont alors mesurées à l'aide de détecteurs intégrateurs. La méthode la plus couramment employée reposant sur ce principe est l'expérience pompe-sonde, représentée Fig. 6.1.

Une première impulsion, dite impulsion pompe, vient déclencher dans l'échantillon un processus comme une réaction chimique ou biochimique photo-excitabile. Une seconde impulsion, dite impulsion sonde, est alors transmise par l'échantillon puis détectée à l'aide d'un détecteur intégrateur, qui peut consister par exemple en une photodiode. On peut également utiliser un spectromètre et une caméra CCD afin d'enregistrer le spectre de l'impulsion sonde transmise. En première approximation, on peut considérer que l'impulsion sonde donne ainsi directement accès à la transmission de l'échantillon un intervalle de temps  $\tau$  après l'excitation par l'impulsion pompe, ce qui permet d'en déduire la réponse impulsionnelle de l'échantillon. Comme le montre la Fig. 6.1, le retard  $\tau$  peut être varié en déplaçant une ligne à retard optique à l'aide d'une platine à translation micrométrique.



**Figure 6.1:** *Expérience pompe-sonde*

Compte tenu de la valeur de la vitesse de la lumière, un déplacement de  $0.15 \mu\text{m}$  correspondra à un retard de 1 fs. La résolution temporelle d'une telle approche est en principe uniquement limitée par les durées des impulsions pompe et sonde utilisées.

On peut modéliser l'expérience pompe-sonde en introduisant le champ sonde incident,  $\mathcal{E}_S(t)$ , et le champ rayonné par l'échantillon dans la direction de la sonde,  $\mathcal{E}_R(t)$ . Le champ transmis par l'échantillon, noté  $\mathcal{E}_T(t)$ , résulte de la superposition - ou de l'interférence - de ces deux champs. En présence de pompe, le champ rayonné est modifié et une variation de champ rayonnée notée  $\Delta\mathcal{E}_R$  s'ajoute au champ transmis. L'intensité spectrale détectée par le spectromètre en l'absence de pompe s'écrit  $I_0(\omega) = |\mathcal{E}_T(\omega)|^2$ . En présence de pompe, l'intensité spectrale devient

$$I(\omega) = |\mathcal{E}_T(\omega) + \Delta\mathcal{E}_R(\omega)|^2 \approx I_0(\omega) + 2\text{Re}\mathcal{E}_T^*(\omega)\Delta\mathcal{E}_R(\omega) \quad (6.1)$$

où l'on a négligé le terme quadratique par rapport à la variation de champ rayonné. En pratique, la variation d'intensité est normalisée par rapport à l'intensité spectrale en l'absence de pompe, ce qui signifie que l'on mesure la grandeur

$$\frac{\Delta I(\omega)}{I_0(\omega)} = \frac{I(\omega) - I_0(\omega)}{I_0(\omega)} = \frac{2\text{Re}\mathcal{E}_T^*(\omega)\Delta\mathcal{E}_R(\omega)}{|\mathcal{E}_T(\omega)|^2} = 2\text{Re}\frac{\Delta\mathcal{E}_R(\omega)}{\mathcal{E}_T(\omega)} \quad (6.2)$$

grandeur souvent appelée transmission différentielle et notée  $\Delta T/T$ . On peut également effectuer une mesure dite intégrée spectralement (sans spectromètre), auquel cas le signal mesuré est simplement l'intégrale de l'éq. 6.1

$$S = \int I(\omega) \frac{d\omega}{2\pi} \quad (6.3)$$

Le signal différentiel s'écrit alors

$$\Delta S = 2 \int \text{Re}(\mathcal{E}_T^*(\omega)\Delta\mathcal{E}_R(\omega)) \frac{d\omega}{2\pi} = 2 \int \text{Re}(\mathcal{E}_T^*(t)\Delta\mathcal{E}_R(t)) dt \quad (6.4)$$

Il reste naturellement à déterminer la variation du champ rayonné sous l'action de la pompe. Ceci peut être réalisé en utilisant le formalisme de l'optique non-linéaire introduit aux chapitres précédents. Il s'agit en effet d'une interaction entre les faisceaux pompe et sonde résultant de la réponse non-linéaire de l'échantillon utilisé. Appelons  $\vec{k}_P$  et  $\vec{k}_S$  les vecteurs d'onde associés respectivement aux champs pompe,  $\mathcal{E}_P(\vec{r}, t)$ , et sonde,  $\mathcal{E}_S(\vec{r}, t)$ . Le champ électrique total s'écrit alors

$$E(\vec{r}, t) = \frac{1}{2} (\mathcal{E}_S(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_P(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_S^*(\vec{r}, t) + \mathcal{E}_P^*(\vec{r}, t)) \quad (6.5)$$

Comme nous l'avons fait au chapitre 3, il suffit d'utiliser ce champ dans l'expression de la polarisation non-linéaire afin de déterminer la polarisation induite aux différents ordres de la théorie des perturbations, puis de calculer le champ rayonné par l'échantillon sous l'effet de cette polarisation. Cependant, à la différence des cas traités au chapitre 3, nous nous intéressons ici au cas d'une réponse non instantanée puisque l'objet de l'expérience est précisément de déterminer le temps de réponse du système. Il faut donc utiliser l'expression la plus générale de la polarisation non-linéaire, soit l'éq. 2.4 dans l'espace des temps ou encore l'éq. 2.7 dans l'espace des fréquences :

$$P^{(n)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int \frac{d\omega_1}{2\pi} \dots \int \frac{d\omega_n}{2\pi} \chi^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n) E(\vec{r}, \omega_1) \dots E(\vec{r}, \omega_n) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n)t) \quad (6.6)$$

Comme représenté Fig. 6.1, dans un montage de type pompe-sonde le détecteur ne collecte que le faisceau se propageant dans la direction du faisceau sonde <sup>1</sup>. Parmi les nombreux termes figurant dans la polarisation non-linéaire, il nous suffira de conserver ceux dont la phase spatiale est identique à celle du champ sonde, donnant ainsi lieu à un champ rayonné se propageant dans la direction de la sonde qui seule pourra atteindre le détecteur. Il s'agit donc de termes présentant une variation spatiale en  $\exp(i\vec{k}_S \cdot \vec{r})$ . Au premier ordre de la théorie des perturbations ( $n = 1$ ), le champ électrique n'apparaît qu'une seule fois dans l'expression de la polarisation. Le seul terme en  $\exp(i\vec{k}_S \cdot \vec{r})$  est donc la polarisation induite par le champ sonde lui-même : il s'agit du processus d'absorption linéaire déjà discuté à la section 1.4. On retrouve donc le fait peu surprenant qu'en optique linéaire, les faisceaux pompe et sonde se croisent sans interagir. Au second ordre de la théorie des perturbation, le champ électrique total intervient deux fois dans l'éq. 6.6. Les champs rayonnés correspondants seront associés à des vecteurs d'onde du type  $2\vec{k}_S$ ,  $2\vec{k}_P$  et  $\vec{k}_S \pm \vec{k}_P$ . Ceux-ci correspondent respectivement aux processus de doublage de fréquence de la sonde, doublage de fréquence de la pompe, addition ou différence de fréquences entre pompe et sonde. Seul le premier terme correspond à une direction de propagation adéquate lui permettant d'atteindre le détecteur. Or, comme dans le cas linéaire, ce terme ne fait pas intervenir l'impulsion pompe et pourra en outre être négligé dans le cas d'un

<sup>1</sup>Ceci peut par exemple être réalisé expérimentalement en insérant avant le détecteur un diaphragme ne laissant passer que le faisceau sonde transmis par l'échantillon.

champ sonde suffisamment peu intense.

Ce n'est donc qu'à partir du troisième ordre de la théorie des perturbations que l'on obtient un terme pertinent faisant intervenir à la fois les champs pompe et sonde et se propageant dans la direction du faisceau sonde. Ce terme, faisant intervenir la combinaison  $\vec{k}_S + \vec{k}_P - \vec{k}_P = \vec{k}_S$  est associé au produit  $\mathcal{E}_S \mathcal{E}_P \mathcal{E}_P^*$ . On retrouve ici le résultat déjà mentionné dans le cas de l'effet Kerr croisé (section 3.3.2). En tenant compte des six permutations possibles entre ces trois champs, le terme correspondant de la polarisation non-linéaire du troisième ordre s'écrit en notation complexe

$$\mathcal{P}_{ps}^{(3)}(t) = \frac{3\epsilon_0}{2} \int \chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, -\omega_3) \mathcal{E}_S(\omega_1) \mathcal{E}_P(\omega_2) \mathcal{E}_P^*(\omega_3) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3)t) \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \frac{d\omega_3}{2\pi} \quad (6.7)$$

Le terme pertinent de la polarisation non-linéaire étant identifié, il nous reste à calculer la propagation du champ ainsi rayonné, que nous noterons  $\mathcal{E}_{ps}^{(3)}(z, \omega) = \mathcal{A}_{ps}^{(3)}(z, \omega) \exp(ik_S(\omega)z)$ . L'éq. 3.6 nous donne

$$\frac{\partial \mathcal{A}_{ps}^{(3)}}{\partial z} = \frac{i\omega}{2n(\omega)\epsilon_0 c} \mathcal{P}_{ps}^{(3)}(z, \omega) \exp(-ik_S(\omega)z) \quad (6.8)$$

Afin de calculer la polarisation non-linéaire  $\mathcal{P}_{ps}^{(3)}(z, \omega)$ , considérons le cas d'un échantillon d'épaisseur  $L$  suffisamment faible pour que l'atténuation des faisceaux pompe et sonde résultant des processus d'absorption linéaire puisse être négligée ( $\alpha L \ll 1$ ). Dans ce cas, on obtient  $\mathcal{P}_{ps}^{(3)}(z, \omega)$  à l'aide de l'éq. 6.7 simplement en multipliant chacun des champs par  $\exp(ik(\omega_i)z)$ , afin de prendre en compte la dispersion dans l'échantillon. En tenant compte également du terme en  $\exp(-ik_S(\omega)z)$  dans l'éq. 6.8, la dépendance en  $z$  s'écrira finalement  $\exp(i\Delta kz)$ , avec

$$\Delta k = k_S(\omega_1) - k_S(\omega) + k_P(\omega_2) - k_P(\omega_3) \quad (6.9)$$

avec  $\omega = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$ . Pour une impulsion pompe de largeur spectrale modérée, on peut effectuer un développement limité au premier ordre, ce qui donne finalement

$$\Delta k = (k'_P - k'_S)(\omega_2 - \omega_3) \quad (6.10)$$

où  $\omega_2 - \omega_3 = \omega - \omega_1$  est confiné à l'intérieur du spectre de la pompe, et donc de l'ordre de l'inverse de la durée de la pompe. Dans le cas d'un matériau suffisamment mince, on pourra supposer que  $\Delta k L \ll 1$ , ce qui revient en fait, d'après l'éq. 6.10, à supposer que la différence de retard de groupe entre pompe et sonde suite à la propagation dans l'échantillon peut être négligée. En d'autres termes, le retard pompe - sonde doit être le même à l'entrée et à la sortie de l'échantillon. Selon cette hypothèse d'un échantillon mince, permettant de s'affranchir à la fois des problèmes



d'absorption et de dispersion, on obtient finalement

$$\frac{\partial \mathcal{A}_{ps}^{(3)}}{\partial z} = \frac{i\omega}{2n(\omega)\epsilon_0 c} \mathcal{P}_{ps}^{(3)}(\omega) \quad (6.11)$$

où  $\mathcal{P}_{ps}^{(3)}(\omega)$  est la polarisation non-linéaire à l'entrée de l'échantillon, obtenue par transformée de Fourier inverse de l'éq. 6.7. Le membre de droite de l'équation ci-dessus étant indépendant de  $z$ , on en déduit

$$\mathcal{A}_{ps}^{(3)}(L, \omega) = \frac{i\omega L}{2n(\omega)\epsilon_0 c} \mathcal{P}_{ps}^{(3)}(\omega) \quad (6.12)$$

On en déduit la variation de champ rayonné au troisième ordre de la théorie des perturbations

$$\Delta \mathcal{E}_R(\omega) = \mathcal{A}_{ps}^{(3)}(L, \omega) \exp(ik_S(\omega)L) = \frac{i\omega L}{2n(\omega)\epsilon_0 c} \mathcal{P}_{ps}^{(3)}(\omega) \exp(ik_S(\omega)L) \quad (6.13)$$

où le champ transmis s'écrit  $\mathcal{E}_T(\omega) = \mathcal{E}_S(\omega) \exp(ik_S(\omega)L)$  puisque l'absorption linéaire a été négligée ( $\alpha L \ll 1$ ). D'après l'éq. 6.2, on en déduit l'expression de la transmission différentielle

$$\frac{\Delta T}{T} = -\frac{\omega L}{n(\omega)\epsilon_0 c} \text{Im} \left( \frac{\mathcal{P}_{ps}^{(3)}(\omega)}{\mathcal{E}_S(\omega)} \right) \quad (6.14)$$

Cette expression, en association avec l'éq. 6.7 permet donc de déterminer le spectre pompe-sonde à partir de la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre. Remarquons que le retard  $\tau$  entre impulsions pompe et sonde intervient simplement comme un terme de phase en  $\omega\tau$  dans le champ pompe utilisé dans l'éq. 6.7. Dans les cas simple, c'est à dire lorsque le temps de déphasage est très court, l'expérience pompe-sonde permet d'avoir simplement accès au temps de relaxation de la population. Mais il s'agit en général d'un problème assez complexe, donnant parfois lieu à des artefacts liés à des processus cohérents faisant intervenir des mélanges de fréquences entre les composantes spectrales de la pompe et de la sonde [42]. Il est en outre assez délicat d'inverser cette relation pour en déduire la susceptibilité non-linéaire multidimensionnelle, contrairement à la méthode de spectroscopie multidimensionnelle décrite ci-dessous.

## 6.2 Spectroscopie multidimensionnelle

La spectroscopie multidimensionnelle [43, 44] est une spectroscopie non-linéaire inspirée de la résonance magnétique à deux dimensions [45]. Elle consiste à exciter l'échantillon étudié à l'aide d'une séquence d'impulsions ultracourtes séparées par des retards variables afin d'en déduire la réponse non-linéaire  $\chi^{(n)}(\omega_1, \dots, \omega_n)$  par une transformée de Fourier inverse multidimensionnelle. Considérons par exemple le cas de la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre. Celle-ci pourra être mesuré en excitant l'échantillon à l'aide de trois impulsions ultracourtes  $E_1(t)$ ,  $E_2(t - \tau_2)$  et

$E_3(t - \tau_3)$  se propageant respectivement dans les directions  $\vec{k}_1$ ,  $\vec{k}_2$  et  $\vec{k}_3$ . Comme dans le cas abordé à la section 3.3.2, l'interaction non-linéaire entre ces trois faisceaux produira un grand nombre de faisceaux diffractés dans diverses directions suite aux réseaux induits dans le matériau. Considérons le faisceau émis dans la direction  $\vec{k}_4 = -\vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{k}_3$ . Celui-ci résulte des termes de la polarisation non-linéaire en  $\mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3$ , soit

$$\mathcal{P}_{123}^{(3)}(t) = \frac{6\epsilon_0}{4} \int \int \int \chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) \mathcal{E}_1^*(-\omega_1) \mathcal{E}_2(\omega_2) \exp(i\omega_2 \tau_2) \mathcal{E}_3(\omega_3) \exp(i\omega_3 \tau_3) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)t) \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \frac{d\omega_3}{2\pi} \quad (6.15)$$

Supposons que l'on mesure en fonction du temps  $t$  et des retards  $\tau_2$  et  $\tau_3$  le champ rayonné par cette polarisation à l'aide d'une technique interférométrique de détection homodyne comme celles décrites à la section 5.4.2. Une transformée de Fourier inverse tri-dimensionnelle par rapport aux variables  $t$ ,  $\tau_2$  et  $\tau_3$  donnera alors directement accès à la grandeur

$$\chi^{(3)}(\omega - \omega_2 - \omega_3, \omega_2, \omega_3) \mathcal{E}_1^*(-\omega + \omega_2 + \omega_3) \mathcal{E}_2(\omega_2) \mathcal{E}_3(\omega_3) \quad (6.16)$$

où  $\omega$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_3$  sont les variables conjuguées par transformée de Fourier de  $t$ ,  $\tau_2$  et  $\tau_3$ . Connaissant les champs excitateurs en amplitude et en phase, on pourra ainsi en déduire la réponse non-linéaire du troisième ordre sur le support spectral correspondant aux fréquences excitatrices. Comme dans toute technique de spectroscopie par transformée de Fourier, la résolution spectrale est uniquement limitée par les valeurs maximales des retards utilisés.

## 6.3 Contrôle cohérent

L'objet de cette section est d'illustrer la transition entre régimes cohérent et incohérent lors de l'interaction entre un milieu matériel et une impulsion femtoseconde. Nous allons pour cela calculer en régime perturbatif la population dans l'état excité à l'aide du formalisme introduit au chapitre 2.

### 6.3.1 Population dans l'état excité

Remarquons tout d'abord qu'il n'y a pas de population à l'ordre 1 de la théorie des perturbations en raison de la structure même de l'équation de Bloch. En effet, l'éq. 2.24 montre qu'à chaque étape de la perturbation, un seul des deux indices de l'élément de la matrice densité change. Ainsi, au premier ordre on passera de  $\rho_{ll}^{(0)}$  à  $\rho_{nl}^{(1)}$  ou  $\rho_{ln}^{(1)}$ , et ce n'est qu'à l'ordre deux que l'on pourra atteindre  $\rho_{mn}^{(2)}$ . Ceci n'est guère surprenant : créer une population dans l'état excité signifie qu'une énergie  $\hbar\omega_{nl}$  a été prélevée au rayonnement. Dans la mesure où la densité d'énergie du champ électromagnétique est proportionnelle au carré du champ électrique, il n'est pas étonnant que ce

processus n'intervienne qu'à partir de l'ordre deux. D'après l'éq. 2.41, la population à l'ordre deux s'écrit

$$\begin{aligned} \rho_{nn}^{(2)}(t) = \sum_l G_{nn}(t) \otimes \left( E_j(t) \left( \mu_{nl}^j \mu_{ln}^k (\rho_{nn}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) G_{ln}(t) \otimes E_k(t) \right. \right. \\ \left. \left. - \mu_{ln}^j \mu_{nl}^k (\rho_{ll}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) G_{nl}(t) \otimes E_k(t) \right) \right) \end{aligned} \quad (6.17)$$

Considérons pour simplifier le cas particulier d'un système à deux niveaux initialement dans l'état fondamental  $\hat{\rho}^{(0)} = |g\rangle\langle g|$  et supposons en outre que le champ soit polarisé linéairement,  $\vec{E}(t) = E(t)\vec{e}$ . Appelons  $\hat{\mu} = \hat{\vec{\mu}} \cdot \vec{e}$  l'opérateur dipôle électrique selon cet axe. D'après l'éq. 2.30, le terme de cohérence s'écrit à l'ordre 1

$$\rho_{eg}^{(1)}(t) = \mu_{eg} G_{eg}(t) \otimes E(t) \quad (6.18)$$

A l'ordre deux, l'éq. 6.17 devient

$$\begin{aligned} \rho_{ee}^{(2)}(t) &= -|\mu_{eg}|^2 G_{ee}(t) \otimes (E(t) ((G_{eg}(t) - G_{ge}(t)) \otimes E(t))) \\ &= -|\mu_{eg}|^2 G_{ee}(t) \otimes (E(t) (G_{eg}(t) \otimes E(t))) + c.c. \end{aligned} \quad (6.19)$$

### Population après la fin de l'impulsion

Considérons ici le cas où le système est excité par une impulsion de durée finie associée au champ électrique  $E(\omega) = |E(\omega)| \exp(i\varphi(\omega))$ . On supposera de surcroît que la durée de l'impulsion est très inférieure au temps de relaxation de la population,  $T_1 = 1/\Gamma_{ee}$ . On pourra donc écrire  $G_{ee}(t) \approx i\Theta(t)/\hbar$ . Considérons la population dans l'état excité après le passage de l'impulsion, que l'on notera  $\rho_{ee}^{(2)}(+\infty)$ . Cette grandeur s'écrit

$$\begin{aligned} \rho_{ee}^{(2)}(+\infty) &= -\frac{i|\mu_{eg}|^2}{\hbar} [\Theta(t) \otimes (E(t) ((G_{eg}(t) - G_{ge}(t)) \otimes E(t)))] (t = +\infty) \\ &= -\frac{i|\mu_{eg}|^2}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) ((G_{eg}(t) - G_{ge}(t)) \otimes E(t)) \\ &= -\frac{i|\mu_{eg}|^2}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} E^*(\omega) (G_{eg}(\omega) - G_{ge}(\omega)) E(\omega) \end{aligned} \quad (6.20)$$

où l'on a utilisé le théorème de Parseval-Plancherel (éq. A.5) pour passer de l'intégrale sur le temps à l'intégrale sur la fréquence. On peut ré-exprimer l'expression ci-dessus sous la forme

$$\rho_{ee}^{(2)}(+\infty) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \alpha(\omega) |E(\omega)|^2 \quad (6.21)$$

où  $\alpha(\omega)$  est le coefficient d'absorption. Ainsi la population portée de l'état fondamental à l'état excité est, comme on pouvait s'y attendre, proportionnelle à la fraction de l'énergie du rayonnement qui a été absorbée, grandeur elle-même proportionnelle à l'intégrale de recouvrement entre le spectre d'absorption et le spectre de l'impulsion. La population portée dans l'état excité est donc indépendante de la phase spectrale  $\varphi(\omega)$  de l'impulsion et donc de sa forme temporelle exacte. A l'inverse, pendant la durée de l'impulsion, la complexité de l'éq. 6.19 montre qu'il pourra y avoir une grande richesse d'effets transitoires, appelés transitoires cohérents [46].

On peut également remarquer ici qu'un même phénomène apparaît à des ordres différents de la théorie des perturbation selon que l'on se place du point de vue du rayonnement ou de la matière. Du point de vue du rayonnement, l'absorption est un processus d'ordre 1 qui apparaît directement dans la partie imaginaire de la susceptibilité d'ordre 1 (voir éq. 1.38). Ce même processus intervient à l'ordre deux dans la population effectivement portée dans l'état excité.

### 6.3.2 Régimes incohérent et cohérent

Considérons tout d'abord un cas limite extrême de l'excitation d'un système à deux niveaux où la durée de l'impulsion excitatrice est très longue devant le temps de déphasage  $T_2 = 1/\Gamma_{eg}$ . Dans le cadre de l'approximation RWA, le terme de cohérence s'écrit  $\rho_{eg}^{(1)}(\omega) = \mu_{eg}G_{eg}(\omega)\mathcal{E}(\omega)/2 \approx \mu_{eg}G_{eg}(\omega_0)\mathcal{E}(\omega)/2$ . Donc le terme de cohérence suit directement le champ complexe  $\mathcal{E}(t)$  :

$$\rho_{eg}^{(1)}(t) = \frac{\mu_{eg}G_{eg}(\omega_0)}{2}\mathcal{E}(t) \quad (6.22)$$

On en déduit à l'ordre deux

$$\rho_{ee}^{(2)}(t) = -\frac{|\mu_{eg}|^2}{4}G_{eg}(\omega_0)G_{ee}(t) \otimes |\mathcal{E}(t)|^2 + c.c. \quad (6.23)$$

Dans le cas où le temps de relaxation de la population,  $T_1 = 1/\Gamma_{ee}$ , est très long devant la durée de l'impulsion, on en déduit que la population est proportionnelle à la primitive de l'intensité temporelle:

$$\rho_{ee}^{(2)}(t) \propto \int_{-\infty}^t |\mathcal{E}(t')|^2 dt' \quad (6.24)$$

C'est le régime dit incohérent, où les équations de Bloch se ramènent aux équations de taux.

Considérons maintenant le cas inverse où la durée de l'impulsion est très inférieure au temps de déphasage. On peut dans ce cas considérer que  $T_2$  est infini et remplacer  $G_{eg}(t)$  par la fonction  $i\Theta(t) \exp(-i\omega_{eg}t)/\hbar$ . On a alors

$$G_{eg}(t) \otimes \mathcal{E}(t) = \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dt' \Theta(t-t') \exp(-i\omega_{eg}(t-t')) \mathcal{E}(t')$$

$$= \frac{i}{\hbar} \exp(-i\omega_{eg}t) \int_{-\infty}^t \mathcal{E}(t') \exp(i\omega_{eg}t') dt' \quad (6.25)$$

La population dans l'état excité (éq. 6.19) devient alors

$$\begin{aligned} \rho_{ee}^{(2)}(t) &= - \left( \frac{i|\mu_{eg}|}{2\hbar} \right)^2 \int_{-\infty}^t dt' \mathcal{E}^*(t') \exp(-i\omega_{eg}t') \int_{-\infty}^{t'} dt'' \mathcal{E}(t'') \exp(i\omega_{eg}t'') + c.c. \\ &= + \frac{|\mu_{eg}|^2}{4\hbar^2} \int_{-\infty}^t dt' f(t')^* \int_{-\infty}^{t'} dt'' f(t'') + c.c. \end{aligned} \quad (6.26)$$

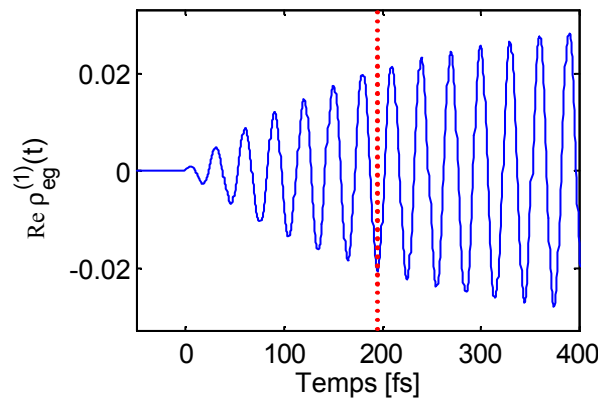
où  $f(t) = \mathcal{E}(t) \exp(i\omega_{eg}t)$ . On peut transformer l'intégrale double de la manière suivante

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^t dt' f(t')^* \int_{-\infty}^{t'} dt'' f(t'') + c.c. &= \int_{-\infty}^t \frac{d}{dt'} \left| \int_{-\infty}^{t'} dt'' f(t'') \right|^2 dt' \\ &= \left[ \left| \int_{-\infty}^{t'} dt'' f(t'') \right|^2 \right]_{-\infty}^t \\ &= \left| \int_{-\infty}^t dt' f(t') \right|^2 \end{aligned} \quad (6.27)$$

On obtient alors

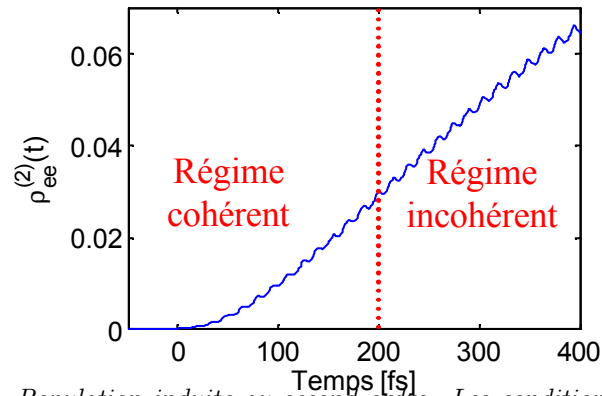
$$\rho_{ee}^{(2)}(t) = \left| \frac{\mu_{eg}}{2\hbar} \int_{-\infty}^t \mathcal{E}(t') \exp(i\omega_{eg}t') dt' \right|^2 \quad (6.28)$$

Ce résultat est identique à celui que l'on aurait obtenu en traitant le système à l'aide de l'équation de Schrödinger et de la théorie des perturbations dépendant du temps. La population dans l'état excité est simplement égale au carré du module de l'amplitude de probabilité. C'est le régime cohérent.



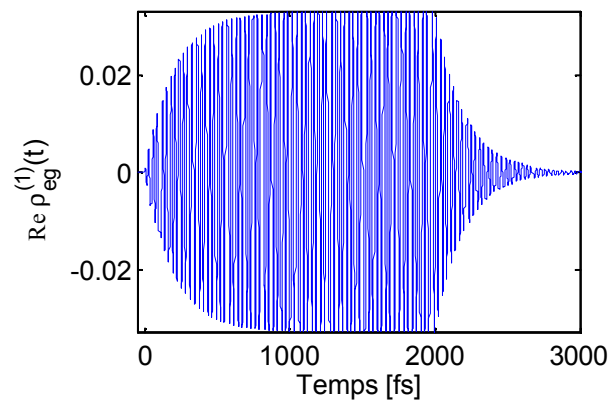
**Figure 6.2:** Cohérence induite au premier ordre dans un système à deux niveaux excité par une impulsion résonnante de forme rectangulaire et de durée 2 ps.  $T_1 = T_2 = 200$ fs.  $2\pi/\omega_{eg} = 30$ fs

Les Fig. 6.2 à 6.5 montrent les termes de cohérence et de population calculés numériquement dans le cas d'une impulsion excitatrice de forme rectangulaire. On peut observer comment le système évolue progressivement d'un régime cohérent, lorsque  $t < T_2$ , à un régime incohérent,

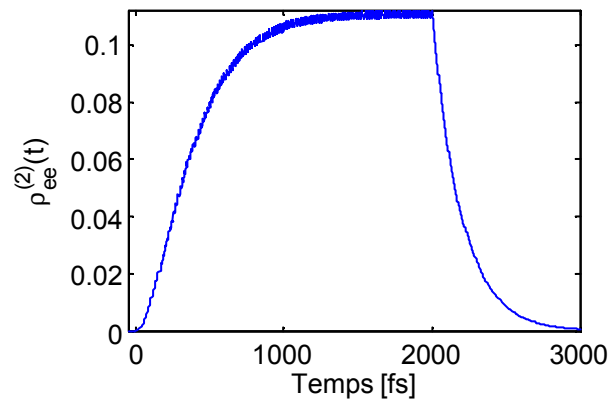


**Figure 6.3:** Population induite au second ordre. Les conditions sont les mêmes que pour la Fig. 6.2. On peut noter des oscillations de période égale à 15 fs, soit la moitié de la période optique, correspondant à la contribution de la composante complexe du champ tournant dans le mauvais sens. L'approximation RWA consiste à négliger ces oscillations dont on peut vérifier sur ce calcul numérique qu'elles sont effectivement de faible amplitude.

lorsque  $t > T_2$ .



**Figure 6.4:** Même grandeur que pour la Fig. 6.2 mais sur une autre échelle de temps.



**Figure 6.5:** Même grandeur que pour la Fig. 6.3 mais sur une autre échelle de temps.

### 6.3.3 Régime fort

Lorsque l'intensité du laser est plus importante, on sort du régime perturbatif étudié ci-dessus, ce qui permet d'atteindre en régime cohérent des états inaccessibles au régime incohérent. Il sera ainsi possible de contrôler l'état quantique du système de manière similaire à ce qui est couramment réalisé en physique atomique ou en résonance magnétique nucléaire. A titre d'exemple, on pourra porter un système à deux niveaux dans son état excité avec une probabilité égale à 1, soit à l'aide d'une demi oscillation de Rabi, soit par passage adiabatique à l'aide d'une impulsion à dérive de fréquence [14]. Ceci ne sera évidemment possible que si la durée de l'impulsion reste plus courte que le temps de déphasage du système afin de rester en régime cohérent. Dans l'approche dite du contrôle optimal [47], on utilise un algorithme itératif permettant de façonner le profil temporel de l'impulsion afin d'optimiser un objectif donné, comme par exemple le produit d'une réaction chimique.

# Appendice A

## Transformation de Fourier

### A.1 Définition

La transformée de Fourier d'une fonction dépendant de la variable  $\omega$  est définie ici par

$$f(t) = \mathcal{F}[f(\omega)](t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi}. \quad (\text{A.1})$$

La transformée de Fourier du complexe conjugué s'écrit

$$\mathcal{F}[f^*(\omega)](t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f^*(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi} = f^*(-t). \quad (\text{A.2})$$

La transformée de Fourier inverse s'écrit alors

$$f(\omega) = \mathcal{F}^{-1}[f(t)](\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t) \exp(i\omega t) dt. \quad (\text{A.3})$$

On a alors

$$\mathcal{F}^{-1}[f^*(t)](\omega) = f^*(-\omega). \quad (\text{A.4})$$

Le facteur  $2\pi$  entre transformée de Fourier et transformée de Fourier inverse peut-être réparti différemment selon les ouvrages, avec notamment une convention courante présentant l'avantage de la symétrie et consistant à utiliser un facteur  $1/\sqrt{2\pi}$  à la fois pour  $\mathcal{F}$  et  $\mathcal{F}^{-1}$ . Dans le choix effectué ici, il suffira de se souvenir que toutes les intégrales (y compris pour les produits de convolution et les valeurs moyennes ci-dessous) portent en fait sur la fréquence  $\omega/(2\pi)$  plutôt que sur la pulsation  $\omega$ .



## A.2 Propriétés utiles

La transformée de Fourier étant une isométrie, on a égalité des produits hermitiens dans l'espace direct et dans l'espace de Fourier (théorème de Parseval-Plancherel) :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} f^*(t)g(t)dt = \int_{-\infty}^{+\infty} f^*(\omega)g(\omega)\frac{d\omega}{2\pi} \quad (\text{A.5})$$

Les transformées de Fourier des dérivées s'écrivent

$$\mathcal{F}^{-1} \frac{d^n f(t)}{dt^n} = (-i\omega)^n f(\omega) \quad (\text{A.6})$$

$$\mathcal{F} \frac{d^n f(\omega)}{d\omega^n} = (it)^n f(t) \quad (\text{A.7})$$

Soit  $[f \otimes g](t)$  - également noté  $f(t) \otimes g(t)$  - le produit de convolution défini par

$$[f \otimes g](t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t')g(t-t')dt' = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t-t')g(t')dt' \quad (\text{A.8})$$

La transformée de Fourier du produit de convolution est le produit des transformées de Fourier

$$\mathcal{F}^{-1} [(f \otimes g)(t)] = f(\omega)g(\omega) \quad (\text{A.9})$$

et

$$\mathcal{F} [(f \otimes g)(\omega)] = 2\pi f(t)g(t) \quad (\text{A.10})$$

On en déduit les relations correspondantes sur les transformées de Fourier d'un produit

$$\mathcal{F}^{-1} [f(t)g(t)] = \frac{1}{2\pi} [f \otimes g](\omega) \quad (\text{A.11})$$

$$\mathcal{F} [f(\omega)g(\omega)] = [f \otimes g](t) \quad (\text{A.12})$$

## A.3 Transformées de Fourier de fonctions et distributions usuelles

$f(t)$	$f(\omega)$	
$\delta(t - t_0)$	$\exp(i\omega t_0)$	
$\exp(-i\omega_0 t)$	$2\pi\delta(\omega - \omega_0)$	
$\exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2}\right)$	$\tau\sqrt{2\pi}\exp\left(-\frac{\tau^2\omega^2}{2}\right)$	(A.13)
$\exp\left(i\frac{at^2}{2}\right)$	$e^{-i\pi/4}\sqrt{\frac{2\pi}{a}}\exp\left(-i\frac{\omega^2}{2a}\right)$	
$\Theta(t)\exp(-i\omega_0 t - \Gamma t)$	$\frac{i}{\omega - \omega_0 + i\Gamma}$	

Le tableau ci-dessus reproduit les transformées de Fourier des fonctions ou distributions qui interviendront dans ce cours.

La démonstration est immédiate pour la distribution de Dirac. Pour la gaussienne, une méthode consiste à écrire l'équation différentielle génératrice des gaussiennes :

$$f'(t) + \frac{t}{\tau^2} f(t) = 0 \tag{A.14}$$

La solution de cette équation peut s'obtenir en remarquant qu'il s'agit d'une équation aux variables séparables

$$\frac{f'(t)}{f(t)} = -\frac{t}{\tau^2} \tag{A.15}$$

dont la solution s'écrit  $\ln(f(t)/f(0)) = -t^2/(2\tau^2)$ , soit la gaussienne  $f(t) = f(0) \exp(-t^2/(2\tau^2))$ , ou encore  $\exp(-t^2/(2\tau^2))$  avec la condition initiale  $f(0) = 1$ . Pour déterminer  $f(\omega)$ , il suffit d'écrire la transformée de Fourier de l'éq.A.14. A l'aide des éq. A.6 et A.7, on obtient

$$-i\omega f(\omega) + \frac{1}{i\tau^2} f'(\omega) = 0 \tag{A.16}$$

soit

$$f'(\omega) + \omega\tau^2 f(\omega) = 0 \tag{A.17}$$

Cette équation a la même forme que l'éq. A.14 d'où l'on peut déduire que  $f(\omega)$  est également une gaussienne :

$$f(\omega) = f(\omega = 0) \exp(-\tau^2\omega^2/2) \tag{A.18}$$

Il reste à déterminer la constante d'intégration

$$\begin{aligned} f(\omega = 0) &= \int_{-\infty}^{+\infty} f(t) dt \\ &= \sqrt{\int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} f(t)f(t') dt dt'} \\ &= \sqrt{\int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{t^2 + t'^2}{2\tau^2}\right) dt dt'} \\ &= \sqrt{\int_0^{+\infty} d\rho \int_0^{2\pi} \rho d\theta \exp\left(-\frac{\rho^2}{2\tau^2}\right)} \\ &= \sqrt{2\pi \left[-\tau^2 \exp\left(-\frac{\rho^2}{2\tau^2}\right)\right]_0^{+\infty}} \\ &= \tau\sqrt{2\pi} \end{aligned}$$

d'où l'on déduit

$$f(\omega) = \mathcal{F}^{-1} \exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2}\right) = \tau\sqrt{2\pi} \exp\left(-\frac{\tau^2\omega^2}{2}\right) \tag{A.19}$$

Cette équation est valable pour  $\tau$  complexe, dès lors que les fonctions considérées sont de carré sommable, soit  $\text{Re } \tau^2 > 0$ . En fait, on peut constater que la relation ci-dessus admet une limite lorsque la partie réelle de  $\tau$  tend vers zéro. En appelant  $i/a$  la partie imaginaire de  $\tau^2$ , on en déduit la relation

$$\mathcal{F}^{-1} \exp\left(i\frac{at^2}{2}\right) = e^{-i\pi/4} \sqrt{\frac{2\pi}{a}} \exp\left(-i\frac{\omega^2}{2a}\right) \tag{A.20}$$

Les deux fonctions ci-dessus ne sont pas de carré sommable, mais elles n'en sont pas moins transformées de Fourier l'une de l'autre et jouent un rôle très important dans la propagation des faisceaux lumineux. Enfin, pour la mono-exponentielle, la

démonstration est immédiate puisque la fonction est directement intégrable:

$$\begin{aligned}
 \mathcal{F}^{-1}f(t) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \Theta(t) \exp(i(\omega - \omega_0)t - \Gamma t) dt \\
 &= \left[ \frac{\exp(i(\omega - \omega_0)t - \Gamma t)}{i(\omega - \omega_0) - \Gamma} \right]_0^{+\infty} \\
 &= \frac{-1}{i(\omega - \omega_0) - \Gamma} \\
 &= \frac{i}{\omega - \omega_0 + i\Gamma}
 \end{aligned}$$

On peut déduire des éq. A.9 et A.13 la relation utile

$$\mathcal{F}^{-1}f(t - t_0) = \mathcal{F}^{-1}[f(t) \otimes \delta(t - t_0)] = f(\omega) \exp(i\omega t_0) \quad (\text{A.21})$$

De même, d'après les éq. A.11 et A.13

$$\mathcal{F}^{-1}[f(t) \exp(-i\omega_0 t)] = \frac{1}{2\pi} [f(\omega) \otimes 2\pi\delta(\omega - \omega_0)] = f(\omega - \omega_0) \quad (\text{A.22})$$

Ainsi un décalage dans le domaine temporel correspond à une phase linéaire dans l'espace des fréquences. Inversement, une phase linéaire dans le domaine temporel correspond à un décalage dans le domaine des fréquences.

## A.4 Valeurs moyennes

Soit une fonction  $f(t)$  supposée normée :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} |f(t)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} |f(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} = 1 \quad (\text{A.23})$$

On définit les valeurs moyennes de fonctions  $u(t)$  et  $v(\omega)$  dépendant du temps ou de la fréquence en utilisant respectivement  $|f(t)|^2$  et  $|f(\omega)|^2/(2\pi)$  comme densités de probabilité :

$$\langle u(t) \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} u(t) |f(t)|^2 dt \quad (\text{A.24})$$

$$\langle v(\omega) \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} v(\omega) |f(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \quad (\text{A.25})$$

Les écarts quadratiques moyens  $\Delta t = \sqrt{\langle t^2 \rangle - \langle t \rangle^2}$  et  $\Delta \omega = \sqrt{\langle \omega^2 \rangle - \langle \omega \rangle^2}$  obéissent alors à l'inégalité

$$\Delta t \Delta \omega \geq \frac{1}{2} \quad (\text{A.26})$$

l'égalité n'étant atteinte que dans le cas d'une fonction gaussienne [48].

La démonstration du résultat ci-dessus est similaire à celle du théorème de Cauchy-Schwartz. Soit  $t_0 = \langle t \rangle$  et  $\omega_0 = \langle \omega \rangle$  les barycentres des distributions  $|f(t)|^2$  et  $|f(\omega)|^2$ . On définit la fonction  $g(t) = f(t + t_0) \exp(i\omega_0 t)$ . D'après les éq. A.21 et

A.22, sa transformée de Fourier s'écrit  $g(\omega) = f(\omega + \omega_0) \exp(i(\omega + \omega_0)t_0)$ . On remarque que les distributions de probabilité  $|g(t)|^2 = |f(t + t_0)|^2$  et  $|g(\omega)|^2 = |f(\omega + \omega_0)|^2$  sont centrées, soit

$$\int_{-\infty}^{+\infty} t|g(t)|^2 dt = 0 \quad \text{et} \quad \int_{-\infty}^{+\infty} \omega|g(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi}$$

Par ailleurs,

$$\int_{-\infty}^{+\infty} t^2|g(t)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} (t - t_0)^2|f(t)|^2 dt = \Delta t^2$$

et

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \omega^2|g(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} = \int_{-\infty}^{+\infty} (\omega - \omega_0)^2|f(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} = \Delta\omega^2$$

Considérons la quantité

$$I(\lambda) = \int_{-\infty}^{+\infty} |tg(t) + \lambda g'(t)|^2 dt$$

Il s'agit d'un polynome d'ordre 2 en  $\lambda$ . Le coefficient constant de ce polynome s'écrit

$$\int_{-\infty}^{+\infty} |tg(t)|^2 dt = \Delta t^2$$

Le coefficient de  $\lambda$  s'écrit

$$\int_{-\infty}^{+\infty} t(g^*(t)g'(t) + g'^*(t)g(t)) dt = \int_{-\infty}^{+\infty} t \frac{d|g(t)|^2}{dt} dt = - \int_{-\infty}^{+\infty} |g(t)|^2 dt = -1$$

où l'on a effectué une intégration par parties et utilisé le fait que  $|g(t)|^2 \rightarrow 0$  lorsque  $t \rightarrow \infty$ . Enfin, le coefficient de  $\lambda^2$  s'écrit

$$\int_{-\infty}^{+\infty} |g'(t)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} |-i\omega g(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} = \Delta\omega^2$$

Le polynome s'écrit donc

$$I(\lambda) = \Delta\omega^2\lambda^2 - \lambda + \Delta t^2$$

Etant défini comme l'intégrale d'une quantité positive ou nulle, ce polynome est donc lui-même positif ou nul, ce qui implique un discriminant négatif ou nul, soit

$$1 - 4\Delta t^2 \Delta\omega^2 \leq 0$$

d'où l'on déduit l'éq. A.26.

Dans le cas où l'égalité est vérifiée, soit  $\Delta t \Delta\omega = 1/2$ , alors le discriminant est nul et le polynome admet donc une racine double  $\lambda = 1/(2\Delta\omega^2) = 2\Delta t^2$ . Or l'intégrale  $I(\lambda)$  ne peut être nulle que si la fonction intégrée (positive ou nulle) est identiquement nulle, soit

$$tg(t) + 2\Delta t^2 g'(t) = 0$$

ou encore

$$g'(t) + \frac{t}{2\Delta t^2} g(t) = 0$$

On reconnaît l'équation génératrice des gaussiennes (eq. A.14) d'où l'on déduit

$$g(t) = g(0) \exp\left(-\frac{t^2}{4\Delta t^2}\right)$$

La distribution de probabilité  $|g(t)|^2$  étant normalisée, on en déduit

$$g(t) = e^{i\varphi_0} (2\pi\Delta t^2)^{-\frac{1}{4}} \exp\left(-\frac{t^2}{4\Delta t^2}\right)$$

où  $\varphi_0$  est un facteur de phase arbitraire. L'expression la plus générale pour la fonction  $f(t)$  est donc

$$f(t) = e^{i\varphi_0} (2\pi\Delta t^2)^{-\frac{1}{4}} \exp\left(-\frac{(t-t_0)^2}{4\Delta t^2}\right) \exp(-i\omega_0(t-t_0)) \quad (\text{A.27})$$

Il s'agit d'une fonction d'enveloppe gaussienne centrée à l'instant  $t_0$  et de fréquence porteuse  $\omega_0$ .

L'inégalité A.26 a des conséquences dans des domaines très divers de la physique (relation d'incertitude de Heisenberg, relation temps-énergie, relation temps-fréquence en acoustique ou en optique femtoseconde, diffraction d'un faisceau lumineux, etc.). De façon générale, elle implique qu'une fonction ne pourra être localisée dans l'espace direct ( $\Delta t$  petit) qu'à condition d'être délocalisée dans l'espace réciproque ( $\Delta\omega$  grand), et inversement. Il ne s'agit cependant évidemment pas d'une condition suffisante.

### Effet de la phase spectrale

Ecrivons la fonction  $f(\omega)$  sous la forme

$$f(\omega) = |f(\omega)| \exp(i\varphi(\omega))$$

où  $\varphi(\omega)$  est par définition la phase spectrale. La fonction  $f'(\omega)$  s'écrit alors

$$f'(\omega) = \left( \frac{d|f(\omega)|}{d\omega} + i\varphi'(\omega)|f(\omega)| \right) \exp(i\varphi(\omega))$$

Considérons la valeur moyenne  $\langle t \rangle$  :

$$\begin{aligned} \langle t \rangle &= \int_{-\infty}^{+\infty} t |f(t)|^2 dt = -i \int_{-\infty}^{+\infty} f^*(t) i t f(t) dt = -i \int_{-\infty}^{+\infty} f^*(\omega) f'(\omega) \frac{d\omega}{2\pi} \\ &= -i \int_{-\infty}^{+\infty} |f(\omega)| \frac{d|f(\omega)|}{d\omega} \frac{d\omega}{2\pi} + \int_{-\infty}^{+\infty} \varphi'(\omega) |f(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \\ &= -i \left[ \frac{1}{2} |f(\omega)|^2 \right]_{-\infty}^{+\infty} + \langle \varphi'(\omega) \rangle \end{aligned}$$

On en déduit la relation suivante

$$\langle t \rangle = \left\langle \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega} \right\rangle \quad (\text{A.28})$$

qui généralise l'éq. A.21 au cas d'une phase spectrale de forme quelconque. Plus généralement, la quantité

$$\tau_g(\omega) = \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega} \quad (\text{A.29})$$

est appelée le **retard de groupe**. Ce dernier correspond à l'instant d'arrivée d'une composante spectrale  $\omega$  donnée. Le barycentre de l'impulsion correspond ainsi simplement à la valeur moyenne du retard de groupe  $\langle t \rangle = \langle \tau_g(\omega) \rangle$ .

De même, on peut calculer le moment d'ordre 2 :

$$\begin{aligned}
 \langle t^2 \rangle &= \int_{-\infty}^{+\infty} t^2 |f(t)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} |itf(t)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} |f'(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \\
 &= \int_{-\infty}^{+\infty} \left( \frac{d|f(\omega)|}{d\omega} \right)^2 \frac{d\omega}{2\pi} + \int_{-\infty}^{+\infty} \varphi'(\omega)^2 |f(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \\
 &= \langle t^2 \rangle_{\varphi=0} + \langle \varphi'(\omega)^2 \rangle
 \end{aligned} \tag{A.30}$$

où l'on a exprimé le résultat en fonction du moment d'ordre 2 pour une phase spectrale nulle. A l'aide de cette équation et de l'éq. A.28, On en déduit la variance

$$\Delta t^2 = \Delta t_{\varphi=0}^2 + \Delta \tau_g^2 \tag{A.31}$$

où la variance du retard de groupe s'écrit

$$\Delta \tau_g^2 = \langle (\tau_g(\omega) - \langle \tau_g(\omega) \rangle)^2 \rangle = \left\langle \left( \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega} \right)^2 \right\rangle - \left\langle \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega} \right\rangle^2$$

La variance est donc la somme d'une valeur minimale, associée à une phase spectrale linéaire, et de la variance du retard de groupe : une phase spectrale variant de façon non linéaire avec la fréquence implique que les différentes composantes spectrales n'arrivent pas simultanément, ce qui provoque naturellement un allongement de l'impulsion.

### Effet de la phase temporelle

On peut de même écrire la fonction  $f(t)$  sous la forme

$$f(t) = |f(t)| \exp(i\phi(t))$$

où  $\phi(t)$  est par définition la phase temporelle (grandeur qui n'est évidemment pas transformée de Fourier de la phase spectrale  $\varphi(\omega)$ ). La fonction  $f'(t)$  s'écrit alors

$$f'(t) = \left( \frac{d|f(t)|}{dt} + i\phi'(t)|f(t)| \right) \exp(i\phi(t))$$

Considérons la valeur moyenne  $\langle \omega \rangle$  :

$$\langle \omega \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} \omega |f(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} = i \int_{-\infty}^{+\infty} f^*(\omega) (-i\omega f(\omega)) \frac{d\omega}{2\pi} = i \int_{-\infty}^{+\infty} f^*(t) f'(t) dt$$

$$\begin{aligned}
&= i \int_{-\infty}^{+\infty} |f(t)| \frac{d|f(t)|}{dt} dt - \int_{-\infty}^{+\infty} \phi'(t) |f(t)|^2 dt \\
&= i \left[ \frac{1}{2} |f(t)|^2 \right]_{-\infty}^{+\infty} - \langle \phi'(t) \rangle
\end{aligned}$$

On en déduit la relation suivante

$$\langle \omega \rangle = - \left\langle \frac{d\phi(t)}{dt} \right\rangle \quad (\text{A.32})$$

Plus généralement, la quantité

$$\Omega(t) = - \frac{d\phi(t)}{dt} \quad (\text{A.33})$$

est appelée la **fréquence instantanée**. La fréquence centrale de l'impulsion correspond ainsi à la valeur moyenne de la fréquence instantanée :  $\langle \omega \rangle = \langle \Omega(t) \rangle$ . La phase temporelle peut également s'écrire comme l'opposé de la primitive de la fréquence instantanée

$$\phi(t) = - \int_{-\infty}^t \Omega(t') dt' \quad (\text{A.34})$$

ce qui généralise la relation  $\phi(t) = -\omega_0 t$  correspondant au cas d'une fréquence constante.

Comme dans le cas de la phase spectrale discutée plus haut, on montre que la largeur spectrale dépend de la phase temporelle selon la relation

$$\Delta\omega^2 = \Delta\omega_{\phi=0}^2 + \Delta\Omega^2 \quad (\text{A.35})$$

où la variance de la fréquence instantanée s'écrit

$$\Delta\Omega^2 = \left\langle (\Omega(t) - \langle \Omega(t) \rangle)^2 \right\rangle = \left\langle \left( \frac{d\phi(t)}{dt} \right)^2 \right\rangle - \left\langle \frac{d\phi(t)}{dt} \right\rangle^2$$

## A.5 Séries de Fourier

On peut montrer [49] que toute fonction  $F(t)$  périodique de période  $T$  peut s'écrire sous la forme d'une série appelée série de Fourier

$$F(t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} C_n e^{-i\omega_n t} \quad (\text{A.36})$$

où  $\omega_n = 2\pi n/T$ . Les coefficients  $C_n$ , appelés coefficients de Fourier, peuvent être aisément déterminés en calculant l'intégrale ci-dessous

$$\int_{-T/2}^{+T/2} e^{i\omega_m t} F(t) dt = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \int_{-T/2}^{+T/2} C_n e^{-i(\omega_n - \omega_m)t} dt = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} T C_n \delta_{nm} = T C_m \quad (\text{A.37})$$

On en déduit donc

$$C_n = \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} F(t) e^{i\omega_n t} dt \quad (\text{A.38})$$

Toute fonction périodique peut ainsi s'écrire comme une superposition d'harmoniques dont les fréquences d'oscillation sont les multiples de  $1/T$ . Un cas particulier très utile de fonction périodique est le peigne de Dirac,  $\Delta_T(t)$ , défini par

$$\Delta_T(t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(t - nT). \quad (\text{A.39})$$

L'éq. A.38 nous permet de trouver immédiatement les coefficients de Fourier associés au peigne de Dirac, soit  $C_n = 1/T$ . On en déduit donc une autre formulation du peigne de Dirac

$$\Delta_T(t) = \frac{1}{T} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} e^{-i2\pi n t/T} \quad (\text{A.40})$$

On en déduit également l'expression de la transformée de Fourier inverse d'un peigne de Dirac

$$\mathcal{F}^{-1}[\Delta_T(t)](\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(t - nT) e^{i\omega t} dt = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} e^{i\omega n T} = \frac{2\pi}{T} \Delta_{2\pi/T}(\omega) \quad (\text{A.41})$$

La transformée de Fourier d'un peigne de Dirac est donc un peigne de Dirac de période inverse.

Les séries de Fourier peuvent également s'interpréter comme un cas particulier de la transformée de Fourier plus générale introduite au début de cet appendice. Considérons en effet une fonction  $f(t)$  supposée nulle à l'extérieur de l'intervalle  $[-T/2, T/2[$ . On peut alors prolonger cette fonction par périodicité de la manière suivante

$$F(t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} f(t - nT) \quad (\text{A.42})$$

ou encore

$$F(t) = \Delta_T(t) \otimes f(t) \quad (\text{A.43})$$

où  $\Delta_T(t) = \sum_n \delta(t - nT)$  est le peigne de Dirac de période  $T$ . D'après l'éq. A.9, on en déduit

$$F(\omega) = \frac{2\pi}{T} \Delta_{\frac{2\pi}{T}}(\omega) f(\omega) = \frac{2\pi}{T} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} f(\omega_n) \delta(\omega - \omega_n) \quad (\text{A.44})$$

On voit donc que du fait de la périodicité de la fonction  $F(t)$ , le spectre obtenu dans l'espace de Fourier est discret: il est constitué de pics de Dirac centrés sur les fréquences des harmoniques  $\omega_n$  intervenant dans la série de Fourier (voir Fig. A.1(d)). Enfin, si l'on remplace  $F(\omega)$  par sa valeur



ci-dessus dans l'éq. A.1, on obtient

$$\begin{aligned}
 F(t) &= \int_{-\infty}^{+\infty} F(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{2\pi}{T} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} f(\omega_n) \delta(\omega - \omega_n) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi} \\
 &= \frac{1}{T} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} f(\omega_n) \exp(-i\omega_n t)
 \end{aligned} \tag{A.45}$$

ce qui nous redonne exactement la série de Fourier, sachant que  $f(\omega_n)/T$  coïncide avec l'expression du coefficient de Fourier correspondant,  $C_n$ , puisque  $f(t)$  et  $F(t)$  sont identiques sur l'intervalle  $[-T/2, T/2[$ .

## A.6 Transformée de Fourier discrète

Intéressons nous enfin à la transformée de Fourier discrète, qui est particulièrement pertinente pour le calcul numérique de la transformée de Fourier d'une fonction  $f(t)$  donnée. En effet, un ordinateur ne pouvant contenir qu'une quantité finie d'information, il sera nécessaire en pratique de travailler sur une représentation approximative de la fonction considérée. En premier lieu, il faudra restreindre l'axe du temps à un intervalle fini  $[0, T[$ , soit en supposant que l'on a affaire à une fonction périodique de période  $T$ , soit en supposant que le support de la fonction  $f(t)$  est contenu dans un intervalle de largeur  $T$ . On considérera alors la fonction périodique  $F(t)$  construite à partir de  $f(t)$  selon l'éq. A.43. En second lieu, il sera nécessaire d'échantillonner la fonction initiale en un nombre fini de points  $t_n = n\delta t$  avec  $n = 0, 1, 2, \dots, N - 1$ , où  $N$  est le nombre total de points considérés et  $\delta t = T/N$  est le pas d'échantillonnage. En tenant compte de ces deux approximations (périodisation et discrétisation), la fonction  $G(t)$  finalement représentée dans l'ordinateur s'écrit

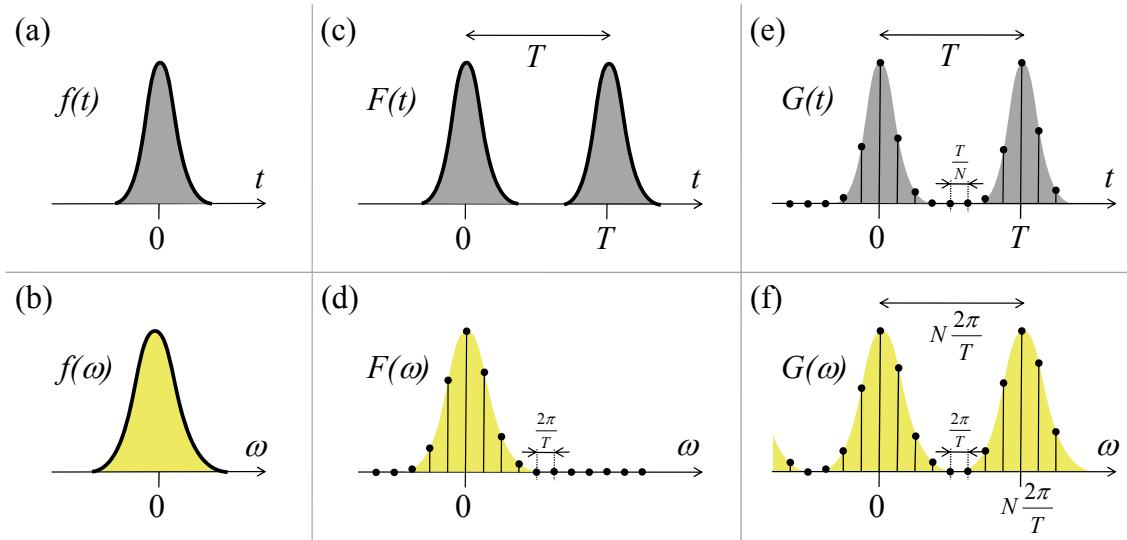
$$G(t) = \Delta_{\frac{T}{N}}(t)F(t) = \Delta_{\frac{T}{N}}(t) (\Delta_T(t) \otimes f(t)) \tag{A.46}$$

La transformée de Fourier s'écrit alors

$$G(\omega) = \frac{N}{T} \Delta_{\frac{2\pi N}{T}}(\omega) \otimes F(\omega) = \frac{2\pi N}{T^2} \Delta_{\frac{2\pi N}{T}}(\omega) \otimes \left( \Delta_{\frac{2\pi}{T}}(\omega) f(\omega) \right) \tag{A.47}$$

Les fonctions  $f$ ,  $F$  et  $G$  sont représentées schématiquement Fig. A.1 dans l'espace des temps et des fréquences. Comme dans le cas des séries de Fourier, le fait de supposer la fonction périodique a pour résultat de produire un spectre discret (Fig. A.1(d)) ne prenant de valeurs non nulles que pour les fréquences  $\omega_n = n2\pi/T$  (effet de la multiplication par le peigne de Dirac  $\Delta_{\frac{2\pi}{T}}(\omega)$  dans l'éq. A.47).

De façon symétrique, la discrétisation de la fonction  $F(t)$  avec un pas  $\delta t = T/N$  a pour



**Figure A.1:** Passage de la transformée de Fourier à la transformée de Fourier discrète. On part d'une fonction  $f(t)$  (a) et de sa transformée de Fourier inverse  $f(\omega)$  (b). On construit ensuite une fonction périodique,  $F(t)$ , de période  $T$  (c), ce qui a pour effet de discrétiser la transformée de Fourier correspondante,  $F(\omega)$ , avec un pas  $2\pi/T$  (d). Enfin, l'échantillonnage dans le domaine temporel (e) de pas  $T/N$  a pour effet de rendre le spectre périodique (f), de période  $N 2\pi/T$ .

conséquence de produire un spectre périodique de période  $2\pi/\delta t$  (convolution par la fonction  $\Delta_{\frac{2\pi N}{T}}(\omega)$  dans l'éq.A.47). Il sera donc suffisant de considérer ce spectre dans l'intervalle fini  $[0, 2\pi/\delta t]$ , ce qui signifie que l'on pourra se contenter de considérer les  $N$  valeurs de fréquences  $\omega_n = n2\pi/T$  avec  $n = 0, 1, 2, \dots, N - 1$ .

On aboutit donc à une représentation des fonctions  $f(\omega)$  et  $f(t)$  sous la forme de deux tableaux de  $N$  points  $\{a_n\}$  et  $\{b_k\}$ . Pour que ces représentations soient fidèles, il est nécessaire que la périodisation ne conduise pas à une perte d'information suite à une superposition des motifs reproduits périodiquement. Dans le domaine temporel, cela correspond à la condition déjà évoquée d'un support de la fonction  $f(t)$  de largeur inférieure à  $T$ . Dans le domaine spectral, il est nécessaire que le support de la fonction  $f(\omega)$  soit de largeur inférieure à  $2\pi/\delta t$ . Pour une fonction  $f(t)$  réelle, on sait que  $|f(\omega)|$  est une fonction paire, ce qui signifie que la largeur du support de  $f(\omega)$  est égale à  $2\omega_{\max}$ , où  $\omega_{\max}$  est la fréquence maximale pour laquelle  $f(\omega)$  prend des valeurs non négligeables. La condition s'exprime alors

$$2\omega_{\max} < \frac{2\pi}{\delta t} \quad (\text{A.48})$$

C'est le théorème d'échantillonnage de Nyquist-Shannon : pour une reproduction fidèle de la fonction, la fréquence d'échantillonnage doit être supérieure au double de la fréquence maximale du signal. En d'autres termes, il faut un minimum de deux points d'échantillonnage par période d'oscillation du signal.

Dans la suite, nous poserons

$$a_n = f(\omega_n) \quad n = 0, 1, 2, \dots, N-1 \quad (\text{A.49})$$

$$b_k = f(t_k) \quad k = 0, 1, 2, \dots, N-1 \quad (\text{A.50})$$

où, comme ci-dessus,  $\omega_n = n2\pi/T$  et  $t_k = k\delta t = kT/N$ . Les tableaux de  $N$  points  $a_n$  et  $b_k$  constituent les représentations échantillonnées des fonctions  $f(t)$  et  $f(\omega)$ . La fonction échantillonnée et périodisée  $G$  s'écrit alors

$$G(t) = \sum_{k=0}^{N-1} b_k \Delta_T(t - t_k) \quad (\text{A.51})$$

ou encore, dans l'espace des fréquences (d'après l'éq. A.47),

$$G(\omega) = \frac{2\pi N}{T^2} \sum_{n=0}^{N-1} a_n \Delta_{\frac{2\pi}{\delta t}}(\omega - \omega_n) \quad (\text{A.52})$$

Sachant que la transformée d'un peigne de Dirac est un peigne de Dirac de pas inverse (eq. A.41), la transformée de Fourier inverse de l'éq. A.51 donne

$$G(\omega) = \frac{2\pi}{T} \sum_{k=0}^{N-1} b_k \Delta_{\frac{2\pi}{T}}(\omega) \exp(i\omega t_k) \quad (\text{A.53})$$

Par ailleurs, on peut écrire

$$\Delta_{\frac{2\pi}{T}}(\omega) = \sum_{n=0}^{N-1} \Delta_{\frac{2\pi}{\delta t}}(\omega - \omega_n) \quad (\text{A.54})$$

On en déduit

$$G(\omega) = \frac{2\pi}{T} \sum_{n=0}^{N-1} \left( \sum_{k=0}^{N-1} b_k \exp(i\omega_n t_k) \right) \Delta_{\frac{2\pi}{\delta t}}(\omega - \omega_n) \quad (\text{A.55})$$

où l'on a utilisé le fait que  $\omega t_k$  est congru à  $\omega_n t_k$  modulo  $2\pi$  pour tous les pics du peigne de Dirac  $\Delta_{\frac{2\pi}{\delta t}}(\omega - \omega_n)$ . En identifiant l'éq. A.55 avec l'éq. A.52, on en déduit

$$a_n = T \frac{1}{N} \sum_{k=0}^{N-1} b_k \exp\left(i \frac{2\pi}{N} nk\right) \quad (\text{A.56})$$

En prenant la transformée de Fourier de l'éq. A.52 et en identifiant avec l'éq. A.51, on démontre de la même façon que

$$b_k = \frac{1}{T} \sum_{n=0}^{N-1} a_n \exp\left(-i \frac{2\pi}{N} nk\right) \quad (\text{A.57})$$

Ces relations sont très similaires à la définition mathématique de la transformée de Fourier discrète,

reliant deux suites de  $N$  nombres  $\{x_n\}$  et  $\{X_k\}$  selon les relations

$$X_k = \sum_{n=0}^{N-1} x_n \exp\left(-i \frac{2\pi}{N} nk\right) \quad (\text{A.58})$$

$$x_n = \frac{1}{N} \sum_{k=0}^{N-1} X_k \exp\left(i \frac{2\pi}{N} nk\right) \quad (\text{A.59})$$

La seule différence tient au facteur multiplicatif  $T$ , qui résulte du fait que les intégrales définissant la transformée de Fourier (eq. A.1 et A.3) font intervenir des grandeurs dimensionnées comme le temps et la fréquence, ce qui fait que la période d'intégration  $T$  intervient explicitement lorsque l'on exprime ces intégrales à partir de la transformée de Fourier discrète. La transformée de Fourier pourra donc être facilement calculée numériquement à l'aide de la transformée de Fourier discrète. En pratique, ce calcul est rendu extrêmement rapide grâce à l'utilisation de l'algorithme de transformée de Fourier rapide [50], dont le temps de calcul est proportionnel à  $N \log_2 N$  alors qu'une application directe des eq. A.58 et A.59 donnerait lieu à un temps de calcul en  $N^2$  ( $N$  sommes de  $N$  termes).

Enfin, remarquons que les eq. A.56 et A.57 peuvent également s'interpréter comme les expressions approximatives des eq. A.3 et A.1 en remplaçant les intégrales par des sommes discrètes. Toutefois, la démonstration ci-dessus à l'aide de peignes de Dirac présente l'intérêt de montrer qu'il ne s'agit pas d'une approximation mais bien d'une évaluation exacte des transformées de Fourier des fonctions discrétisées et périodisées.



## Appendice B

# Représentations temps-fréquence

Temps et fréquence sont deux variables conjuguées par transformée de Fourier, ce qui implique *a priori* que l'on travaille soit dans l'espace des temps, soit dans l'espace des fréquences. Il peut donc paraître surprenant de vouloir manipuler simultanément ces deux grandeurs à l'aide des représentations temps-fréquence abordées dans cet appendice. C'est pourtant ce que nous sommes quotidiennement amenés à faire lorsque notre cerveau interprète l'information produite par notre système auditif, qui est parfaitement capable de gérer un spectre dépendant du temps, grandeur encore appelée spectrogramme. Nous aborderons aussi dans cet appendice la distribution de Wigner, grandeur introduite initialement pour la mécanique quantique mais qui est également intéressante dans le domaine spectro-temporel.

### B.1 Spectrogramme et sonogramme

Le spectrogramme, version mathématique de la portée musicale, est défini comme la succession des spectres de tranches temporelles du champ à mesurer. Plus précisément, on définit la grandeur  $S(t, \omega)$ , fonction continue des variables  $t$  et  $\omega$  qui correspond au spectre - en fonction de  $\omega$  - d'une tranche centrée à l'instant  $t$  du signal à caractériser. Pour construire cette tranche temporelle, on multiplie le champ électrique  $\mathcal{E}(t')$  par une porte temporelle  $g(t' - t)$ , où la fonction  $g(t')$  - centrée en  $t' = 0$  - pourra par exemple être de forme gaussienne. On obtient donc

$$S(t, \omega) = \left| \int \mathcal{E}(t') g(t' - t) \exp(i\omega t') dt' \right|^2 \quad (\text{B.1})$$

De façon symétrique, le sonogramme est défini comme le profil temporel d'une tranche spectrale. Il est donc obtenu en écrivant la transformée de Fourier du produit du champ  $\mathcal{E}(\omega)$  par un filtre

$h(\omega)$  que l'on fera glisser le long de l'axe des fréquences

$$s(t, \omega) = \left| \int \mathcal{E}(\omega') h(\omega' - \omega) \exp(-i\omega' t) \frac{d\omega'}{2\pi} \right|^2 \quad (\text{B.2})$$

Sonogramme et spectrogramme sont intimement liés. En effet,

$$\begin{aligned} s(t, \omega) &= \left| \int \left( \int \mathcal{E}(t') e^{i\omega' t'} dt' \right) h(\omega' - \omega) \exp(-i\omega' t) \frac{d\omega'}{2\pi} \right|^2 \\ &= \left| \int \mathcal{E}(t') \left( \int h(\omega' - \omega) \exp(i\omega'(t' - t)) \frac{d\omega'}{2\pi} \right) dt' \right|^2 \\ &= \left| \int \mathcal{E}(t') h(t' - t) \exp(i\omega(t' - t)) dt' \right|^2 \\ &= \left| e^{-i\omega t} \int \mathcal{E}(t') h(t' - t) \exp(i\omega t') dt' \right|^2 \\ &= S(t, \omega) \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

où  $S(t, \omega)$  est le spectrogramme calculé en utilisant comme porte temporelle la fonction  $g(t') = h(t')$ , transformée de Fourier du filtre utilisé dans l'espace des fréquences pour déterminer le sonogramme. Le spectrogramme et le sonogramme sont donc deux grandeurs rigoureusement identiques, associées respectivement à une porte temporelle et un filtre spectral conjugués par transformée de Fourier.

Mentionnons enfin qu'une représentation temps-fréquence comme le spectrogramme est analogue à la représentation Q de Husimi [51, 52] utilisée en mécanique quantique pour représenter des quantités conjuguées par transformée de Fourier comme position et impulsion pour une particule, ou encore les deux quadratures du champ en optique quantique.

## B.2 Représentation de Wigner

Initialement introduite en mécanique quantique [53], la distribution de Wigner est également utilisée dans le domaine spectro-temporel où on peut l'appeler représentation de Wigner - Ville ou représentation chronocyclique [54]. Elle est définie par la relation

$$W(t, \omega) = \int \mathcal{E}^*(t - \frac{t'}{2}) \mathcal{E}(t + \frac{t'}{2}) \exp(i\omega t') dt' \quad (\text{B.4})$$

$$= \int \mathcal{E}^*(\omega - \frac{\omega'}{2}) \mathcal{E}(\omega + \frac{\omega'}{2}) \exp(-i\omega' t) \frac{d\omega'}{2\pi} \quad (\text{B.5})$$

La distribution de Wigner est réelle mais elle peut prendre des valeurs négatives.

### B.2.1 Distributions marginales

Les distributions marginales de la fonction de Wigner peuvent être obtenues en la projetant soit selon l'axe des temps, soit selon l'axe des fréquences. Par exemple, par définition de la transformée de Fourier, l'intégrale selon  $t$  de la fonction de Wigner  $W(t, \omega)$  est égale à la valeur de sa transformée de Fourier en  $\omega' = 0$ , que nous obtenons à l'aide de l'éq. B.5 :

$$\int W(t, \omega) dt = |\mathcal{E}(\omega)|^2 \quad (\text{B.6})$$

De même,

$$\int W(t, \omega) \frac{d\omega}{2\pi} = |\mathcal{E}(t)|^2 \quad (\text{B.7})$$

Les distributions marginales de la fonction de Wigner sont donc respectivement l'intensité spectrale et l'intensité temporelle.

### B.2.2 Effet d'une modulation temporelle

Supposons que l'on effectue une modulation temporelle du champ, c'est à dire qu'on le multiplie par une fonction  $f(t)$  :

$$\mathcal{E}_2(t) = f(t)\mathcal{E}_1(t) \quad (\text{B.8})$$

soit

$$\mathcal{E}_2(\omega) = \int f(\omega') \mathcal{E}_1(\omega - \omega') \frac{d\omega'}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} f(\omega) \otimes \mathcal{E}_1(\omega) \quad (\text{B.9})$$

On montre alors aisément que

$$W_2(t, \omega) = W_f(t, \omega) \otimes_{\omega} W_1(t, \omega) \quad (\text{B.10})$$

La fonction de Wigner d'un produit de deux fonctions dans le domaine temporel est le produit de convolution par rapport à une variable (la fréquence) des deux fonctions de Wigner.

### B.2.3 Effet d'un filtrage spectral

Supposons que l'on multiplie le champ par une fonction  $g(\omega)$ .

$$\mathcal{E}_2(\omega) = g(\omega)\mathcal{E}_1(\omega) \quad (\text{B.11})$$

On sait qu'un produit dans le domaine spectral correspond à un produit de convolution dans le domaine temporel

$$\mathcal{E}_2(t) = \int g(t') \mathcal{E}_1(t - t') = g(t) \otimes \mathcal{E}_1(t) \quad (\text{B.12})$$



alors on montre

$$W_2(t, \omega) = W_g(t, \omega) \otimes_t W_1(t, \omega) \quad (\text{B.13})$$

#### B.2.4 Lien entre spectrogramme et fonction de Wigner

Pour une valeur donnée de  $t$ , le spectrogramme  $S(t, \omega)$  est le spectre du produit entre le champ  $\mathcal{E}(t')$  et une porte temporelle  $g(t' - t)$ . D'après ce que nous venons de voir, la fonction de Wigner correspondant à ce produit s'écrit

$$W_2(t', \omega) = W_g(t' - t, \omega) \otimes_\omega W(t', \omega) \quad (\text{B.14})$$

Nous savons que le spectre de ce produit peut s'écrire comme la distribution marginale de la fonction de Wigner ci-dessus, qu'il suffit donc d'intégrer par rapport au temps  $t'$

$$S(t, \omega) = \int W_g(t' - t, \omega) \otimes_\omega W(t', \omega) dt' = W_g(-t, \omega) \otimes W(t, \omega) \quad (\text{B.15})$$

C'est donc le produit de convolution bidimensionnel entre la fonction de Wigner du champ et celle de la porte temporelle retournée temporellement. Le spectrogramme n'est autre qu'une fonction de Wigner lissée par la fonction de Wigner de la porte temporelle. C'est ce lissage qui gomme les parties négatives de la fonction de Wigner.

#### B.2.5 Effet d'une phase spectrale quadratique

Considérons un champ  $\mathcal{E}_2$  produit à partir d'un champ  $\mathcal{E}_1$  par l'application d'une phase spectrale quadratique (comme par exemple lors de la propagation d'une impulsion dans un matériau dispersif) :

$$\mathcal{E}_2(\omega) = \mathcal{E}_1(\omega) \exp\left(i\frac{\varphi''}{2}(\omega - \omega_0)^2\right) \quad (\text{B.16})$$

On appelle  $\Delta\tau_g(\omega) = \varphi''(\omega - \omega_0)$  le retard de groupe correspondant à cette phase spectrale quadratique. On obtient alors

$$\begin{aligned} W_2(t, \omega) &= \int \mathcal{E}_1^*\left(\omega - \frac{\omega'}{2}\right) \mathcal{E}_1\left(\omega + \frac{\omega'}{2}\right) e^{i\frac{\varphi''}{2}\left((\omega - \omega_0 + \frac{\omega'}{2})^2 - (\omega - \omega_0 - \frac{\omega'}{2})^2\right)} \exp(-i\omega't) \frac{d\omega'}{2\pi} \\ &= \int \mathcal{E}_1^*\left(\omega - \frac{\omega'}{2}\right) \mathcal{E}_1\left(\omega + \frac{\omega'}{2}\right) \exp(i\varphi''(\omega - \omega_0)\omega') \exp(-i\omega't) \frac{d\omega'}{2\pi} \\ &= W_1(t - \varphi''(\omega - \omega_0), \omega) \\ &= W_1(t - \Delta\tau_g(\omega), \omega) \end{aligned}$$

On obtient donc un résultat parfaitement intuitif. La fonction de Wigner est simplement déformée en décalant chaque composante spectrale dans le temps d'une quantité  $\Delta\tau_g(\omega)$ .

### B.3 Conclusion

Nous avons brièvement évoqué dans cet appendice deux représentations temps-fréquence, le spectrogramme et la fonction de Wigner. Le spectrogramme est très intuitif et correspond directement à l'image de la portée musicale en acoustique. Son seul inconvénient est d'être associé à une perte de résolution à la fois spectrale et temporelle. Il sera bien adapté pour des impulsions pour lesquelles  $\Delta t \Delta \omega \gg 1/2$ , auquel cas la perte de résolution aura peu de conséquence. A titre d'exemple, si l'on considère une pièce musicale dont la durée est de 1h, on a  $\Delta t = 3600\text{s}$  et  $\Delta \omega / (2\pi) \approx 10\text{kHz}$  soit  $\Delta t \Delta \omega \approx 2.10^8$  : le spectrogramme, associé à la partition musicale, est donc une représentation bien adaptée dans ce cas. A l'inverse, la fonction de Wigner produit des représentations souvent étranges mais n'introduit pas de perte de résolution spectrale ou temporelle : les distributions marginales sont parfaitement égales à l'intensité spectrale ou à l'intensité temporelle. Cette distribution sera surtout utile pour ses propriétés mathématiques.



# Bibliographie

- [1] J. D. JACKSON, *Classical electrodynamics*, John Wiley and Sons, New York, 1975.
- [2] A. MONMAYRANT, Façonnage et caractérisation d'impulsions ultracourtes. Contrôle cohérent de systèmes simples., (2005).
- [3] K. LEE, K. KUBARYCH, A. BONVALET, et M. JOFFRE, Characterization of mid-infrared femtosecond pulses, *J. Opt. Soc. Am. B* **25**, A54 (2008).
- [4] M. JOFFRE, Optique non-linéaire en régimes continu et femtoseconde, *DEA de Physique Quantique* (2007).
- [5] M. J. NEE, R. MCCANNE, K. J. KUBARYCH, et M. JOFFRE, Two-dimensional infrared spectroscopy detected by chirped pulse upconversion, *Opt. Lett.* **32**, 713 (2007).
- [6] C. FABRE, *Atomes et lumière - interaction matière rayonnement*, Cours du DEA de physique quantique, 2003, <http://cel.ccsd.cnrs.fr/cours/cel-24/cel-24.html>.
- [7] A. ASPECT et P. GRANGIER, *Optique Quantique 2*, Ecole Polytechnique, 2005.
- [8] S. MUKAMEL, *Principles of Nonlinear Optical Spectroscopy*, Oxford University Press, New York (USA), 1995.
- [9] R. W. BOYD, *Nonlinear Optics*, Academic Press, 2003.
- [10] P. N. BUTCHER et D. COTTER, *The elements of nonlinear optics*, Cambridge University Press, Cambridge (UK), 1990.
- [11] P. A. FRANKEN, A. E. HILL, C. W. PETERS, et G. WEINREICH, Generation of Optical Harmonics, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118 (1961).
- [12] A. SIEGMAN, *Lasers*, University Science Books, California, 1986.
- [13] M. PESSOT, P. MAINE, et G. MOUROU, 1000 times expansion/compression of optical pulses for chirped pulse amplification, *Opt. Comm.* **62**, 419 (1987).

- [14] C. VENTALON, *Ascension vibrationnelle dans les hémoprotéines à l'aide d'impulsions infrarouges intenses à dérive de fréquence*, Ecole Polytechnique, 2004, <http://www.lob.polytechnique.fr/theses/ventalon-couleur.pdf>.
- [15] *Femtosecond laser pulses (second edition)*, Springer Verlag, Claude Rullière Ed., 2003.
- [16] D. GRISCHKOWSKY, S. KEIDING, M. VANEXTER, et C. FATTINGER, Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 2006 (1990).
- [17] E. GOULIELMAKIS, M. UIBERACKER, R. KIENBERGER, A. BALTUSKA, V. YAKOVLEV, A. SCRINZI, T. WESTERWALBESLOH, U. KLEINEBERG, U. HEINZMANN, M. DRESCHER, et F. KRAUSZ, Direct measurement of light waves, *Science* **305**, 1267 (2004).
- [18] P. R. GRIFFITHS et J. A. DE HASETH, *Fourier transform infrared spectrometry*, volume 83, Wiley, New York (USA), 1986.
- [19] A. ASPECT, *Optique quantique 1 : lasers - Tome 2*, (2005).
- [20] M. TAKEDA, H. INA, et S. KOBAYASHI, Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry, *J. Opt. Soc. Am.* **72**, 156 (1982).
- [21] J. PRIMOT et L. SOGNOT, Achromatic three-wave (or more) lateral shearing interferometer, *J. Opt. Soc. Am. A* **12**, 2679 (1995).
- [22] J.-C. CHANTELOUP, *Contrôle et mise en forme des fronts de phase et d'énergie*, Ecole Polytechnique, 1998, <http://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00003140>.
- [23] S. VELGHE, J. PRIMOT, N. GU?RINEAU, M. COHEN, et B. WATTELLIER, Wave-front reconstruction from multidirectional phase derivatives generated by multilateral shearing interferometers, *Opt. Lett.* **30**, 245 (2005).
- [24] V. WONG et I. WALMSLEY, Analysis of ultrashort pulse-shape measurement using linear interferometers, *Opt. Lett.* **19**, 287 (1994).
- [25] L. LEPETIT, G. CHERIAUX, et M. JOFFRE, Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 2467 (1995).
- [26] C. DORRER et M. JOFFRE, Characterization of the spectral phase of ultrashort light pulses, *Compt. Rend. Acad. Sci.* **2**, 1415 (2001).

- [27] C. DORRER, Comment on: Novel method for ultrashort laser pulse-width measurement based on the self-diffraction effect, *Opt. Express* **11**, 79 (2003).
- [28] C. FROEHLI, A. LACOURT, et J.-C. VIÊNOT, Notion de réponse impulsionnelle et de fonction de transfert temporelles des pupilles optiques, justifications expérimentales et applications, *Nouv. Rev. Opt.* **4**, 183 (1973).
- [29] F. REYNAUD, F. SALIN, et A. BARTHELEMY, Measurement of phase shifts introduced by nonlinear optical phenomena on subpicosecond pulses, *Opt. Lett.* **14**, 275 (1989).
- [30] C. DORRER, Influence of the calibration of the detector on spectral interferometry, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 1160 (1999).
- [31] C. DORRER, N. BELABAS, J. LIKFORMAN, et M. JOFFRE, Spectral resolution and sampling issues in Fourier-transform spectral interferometry, *J. Opt. Soc. Am. B* **17**, 1795 (2000).
- [32] J. PAYE, M. RAMASWAMY, J. FUJIMOTO, et E. IPPEN, Measurement of the amplitude and phase of ultrashort light-pulses from spectrally resolved autocorrelation, *Opt. Lett.* **18**, 1946 (1993).
- [33] R. TREBINO, K. DELONG, D. FITTINGHOFF, J. SWEETSER, M. KRUMBUGEL, B. RICHMAN, et D. KANE, Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating, *Rev. Sci. Instr.* **68**, 3277 (1997).
- [34] C. IACONIS et I. WALMSLEY, Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses, *Opt. Lett.* **23**, 792 (1998).
- [35] C. DORRER, P. LONDERO, et I. WALMSLEY, Homodyne detection in spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction, *Opt. Lett.* **26**, 1510 (2001).
- [36] C. DORRER et I. KANG, Highly sensitive direct characterization of femtosecond pulses by electro-optic spectral shearing interferometry, *Opt. Lett.* **28**, 477 (2003).
- [37] I. KANG, C. DORRER, et F. QUOCHI, Implementation of electro-optic spectral shearing interferometry for ultrashort pulse characterization, *Opt. Lett.* **28**, 2264 (2003).
- [38] C. DORRER, E. KOSIK, et I. WALMSLEY, Direct space-time characterization of the electric fields of ultrashort optical pulses, *Opt. Lett.* **27**, 548 (2002).
- [39] E. KOSIK, A. RADUNSKY, I. WALMSLEY, et C. DORRER, Interferometric technique for measuring broadband ultrashort pulses at the sampling limit, *Opt. Lett.* **30**, 326 (2005).

- [40] *Systèmes femtosecondes*, P. Laporte et F. Salin Eds, Publications de l'Université de Saint-Etienne, 2001.
- [41] C. RULLIÈRE, T. AMAND, et X. MARIE, *Femtosecond laser pulses (second edition)*, Chapter 8 : Spectroscopic methods for analysis of sample dynamics, pp. 223–282, Springer Verlag, Claude Rullière Ed., 2003.
- [42] M. JOFFRE, *Femtosecond laser pulses (second edition)*, Chapter 9 : Coherent effects in femtosecond spectroscopy : a simple picture using the Bloch equation, pp. 283–308, Springer Verlag, Claude Rullière Ed., 2003.
- [43] N. BELABAS, *Spectroscopie femtoseconde cohérente bidimensionnelle dans l'infrarouge*, Ecole Polytechnique, 2002, <http://tel.ccsd.cnrs.fr/documents/archives0/00/00/74/55/>.
- [44] D. M. JONAS, Two-Dimensional Femtosecond Spectroscopy, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **54**, 425 (2003).
- [45] R. ERNST, G. BAUDENHAUSEN, et A. WOKAUN, *Principle of Nuclear Magnetic Resonance in One and Two Dimensions*, Clarendon Press, Oxford (UK), 1997.
- [46] S. ZAMITH, *Dynamique femtoseconde dans des atomes et molécules - Précession de spin et dynamique de photoélectrons - transitoires cohérents - dynamique des états excités de l'acétylène*, Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2001, [http://tel.ccsd.cnrs.fr/documents/archives0/00/00/12/09/index\\_fr.html](http://tel.ccsd.cnrs.fr/documents/archives0/00/00/12/09/index_fr.html).
- [47] T. AMAND, V. BLANCHET, B. GIRARD, et X. MARIE, *Femtosecond laser pulses (second edition)*, Chapter 11 : Coherent control in atoms, molecules and solids, pp. 333–394, Springer Verlag, Claude Rullière Ed., 2003.
- [48] J.-L. BASDEVANT et J. DALIBARD, *Mécanique Quantique*, Editions de l'Ecole Polytechnique, Palaiseau, 2001.
- [49] L. SCHWARTZ, *Méthodes mathématiques pour les sciences physiques*, (1983).
- [50] J. COOLEY et J. TUKEY, An algorithm for machine calculation of complex fourier series, *Math. Comput.* **19**, 297 (1965).
- [51] K. HUSIMI, *Proc. Phys. Math. Soc. Jpn.* **22**, 264 (1940).
- [52] K. CAHILL et R. GLAUBER, Density operators and quasiprobability distributions, *Phys. Rev.* **177**, 1882 (1969).

- [53] E. WIGNER, On the quantum correction for thermodynamic equilibrium, *Phys. Rev.* **40**, 749 (1932).
- [54] J. PAYE, The chronocyclic representation of ultrashort light-pulses, *IEEE J. Quant. Electr.* **28**, 2262 (1992).
- [55] D. A. KLEINMAN, Theory of second harmonic generation of light, *Phys. Rev.* **128**, 1762 (1962).
- [56] J. F. WARD et G. H. C. NEW, Optical third harmonic generation in gases by a focused laser beam, *Phys. Rev.* **185**, 57 (1969).
- [57] I. PASTIRK, J. D. CRUZ, K. WALOWICZ, V. LOZOVY, et M. DANTUS, Selective two-photon microscopy with shaped femtosecond pulses, *Opt. Express* **11**, 1695 (2003).
- [58] J. P. OGILVIE, D. DEBARRE, X. SOLINAS, J.-L. MARTIN, E. BEAUREPAIRE, et M. JOFFRE, Use of coherent control for selective two-photon fluorescence microscopy in live organisms, *Opt. Express* **14**, 759 (2006).