

Optique non-linéaire en régimes continu et femtoseconde

Manuel Joffre

▶ **To cite this version:**

Manuel Joffre. Optique non-linéaire en régimes continu et femtoseconde. DEA. Ce cours est enseigné au master Concepts fondamentaux de la Physique (ENS - Ecole Polytechnique - Paris VI - Paris XI)., 2010, pp.229. cel-00092964v3

HAL Id: cel-00092964

https://cel.hal.science/cel-00092964v3

Submitted on 8 Mar 2010 (v3), last revised 21 Feb 2014 (v4)

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.

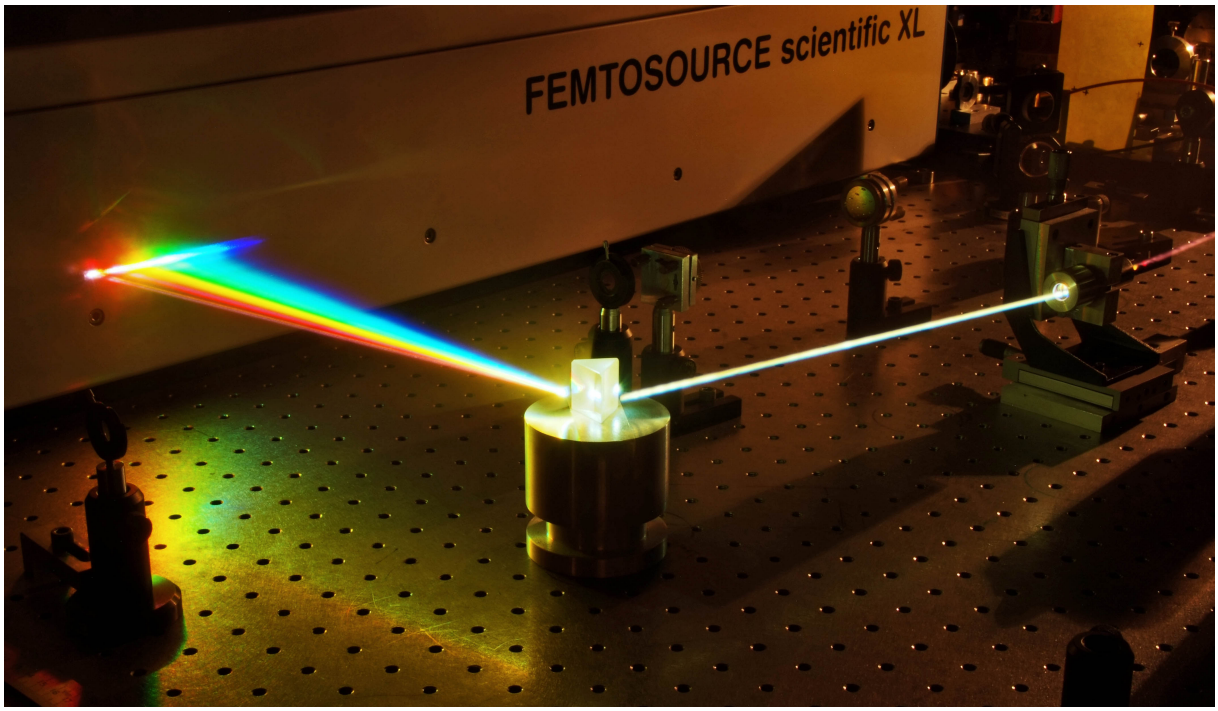
L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Ecole Polytechnique - Ecole Normale Supérieure - Université Pierre et Marie Curie - Université Paris Sud

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

Octobre 2009

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 Lavialle (Ecole Polytechnique).

Table des matières

1 Rappels d'optique linéaire **9**

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

2 Modèle semi-classique de la réponse non-linéaire **31**

2.1 Développement non-linéaire de la polarisation induite 31

2.2 Principe du calcul de la polarisation non-linéaire 32

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

3 Quelques phénomènes d'optique non-linéaire **49**

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

4 Des lasers continus aux lasers femtosecondes 65
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

5 Caractérisation spatio-temporelle 81
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

6 Applications des impulsions femtosecondes 107
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

A Transformation de Fourier 119
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 Représentations temps-fréquence 133
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

C Simulations numériques **139**

C.1 Scilab : kit de survie . . . 139

C.2 Bibliothèque de quelques fonctions utiles (femto.sci) . . . 140

C.3 Exercices . . . 144

C.3.1 Effet d'une phase spectrale linéaire, quadratique ou cubique . . . 144

C.3.2 Propagation linéaire d'une impulsion courte . . . 148

C.3.3 Propagation non-linéaire dans un milieu non dispersif . . . 150

C.3.4 Propagation non-linéaire en régime soliton . . . 152

C.3.5 Conditions d'accord de phase dans un cristal non-linéaire . . . 155

C.3.6 Interférométrie spectrale . . . 158

D Problèmes corrigés **163**

D.1 Cascade d'effets non-linéaires du second ordre (2001) . . . 163

D.2 Quasi-accord de phase (2002) . . . 168

D.3 Doublage d'une impulsion femtoseconde (2003) . . . 172

D.4 Génération de troisième harmonique (2004) . . . 177

D.5 Addition de photons jumeaux (2006) . . . 184

D.6 Absorption à deux photons (2007) . . . 197

D.7 Oscillateur femtoseconde (2008) . . . 203

D.8 Façonnage d'impulsion (2009) . . . 213

Introduction

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 0.4μm (violet) et 0.8μm (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 ici mais dans le cours d'optique quantique de Jean-Michel Courty, qui suivra celui-ci. 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 assure les travaux dirigés associés à ce cours et qui contribue régulièrement à l'indispensable débogage des problèmes annuels reportés en appendice,*
- *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. Je remercie notamment Cédric Roux 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 décomposer ce champ en ondes monochromatiques

$$E(t) = \int E(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi} \tag{1.1}$$

avec

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

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

$$E(\omega) = |E(\omega)| \exp(i\varphi(\omega)) \tag{1.3}$$

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

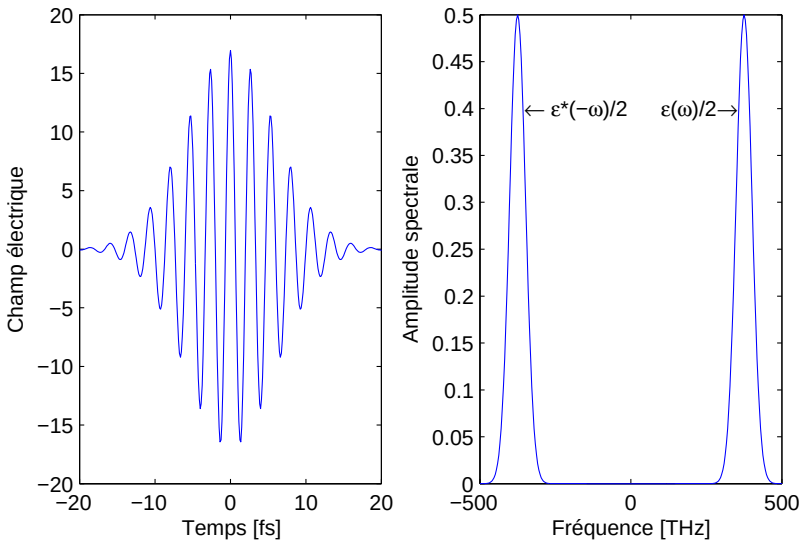


Figure 1.1: *Profil temporel et spectral d'une impulsion gaussienne. La fréquence centrale est de 375 THz, ce qui correspond à une longueur d'onde de 800 nm. La largeur à mi-hauteur de l'intensité temporelle est de 10 fs.*

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

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

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

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

Par transformée de Fourier inverse, on en déduit

$$E(t) = \frac{1}{2}\left(\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}^*(t)\right) = Re\mathcal{E}(t) \tag{1.6}$$

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

$$E(t) \overset{\mathcal{F}^{-1}}{\rightarrow} E(\omega) \overset{\times 2\Theta(\omega)}{\longrightarrow} \mathcal{E}(\omega) \overset{\mathcal{F}}{\rightarrow} \mathcal{E}(t) \tag{1.7}$$

que l'on peut encore exprimer sous la forme

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

soit

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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' :

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

où $R_{ij}(t,t')$ est, par définition, la fonction réponse. Par convention, on sommera 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'autre 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.

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

soit

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

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

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

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 :

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

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

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

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 de la fonction réponse $R_{ij}(\tau)$:

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

D'après l'éq. A.9, l'éq. 1.19 devient

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

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

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

1.3 Equation de propagation

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

$$\vec{\nabla}\vec{D} = 0 \tag{1.24}$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \tag{1.25}$$

$$\vec{\nabla}\vec{B} = 0 \tag{1.26}$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \tag{1.27}$$

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 :

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

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

$$-k^2\vec{E}(\vec{k},\omega) + \vec{k}.\left(\vec{k}.\vec{E}(\vec{k},\omega)\right) + \frac{\omega^2}{c^2}\vec{E}(\vec{k},\omega) = -\mu_0\omega^2\vec{P}(\vec{k},\omega) \tag{1.29}$$

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 :

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

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 : $\vec{k}.\vec{E}(\vec{k}, \omega) = 0$ ou encore $\vec{\nabla}\vec{E}(\vec{r}, \omega) = 0$. L'éq. 1.30 peut alors s'écrire

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

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

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

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

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

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 ω/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 $\vec{k}.\vec{E}(\vec{k}, \omega)$. 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 $\vec{\mathcal{E}}(\vec{k}, \omega)$ 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 :

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

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

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

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

$$\alpha(\omega) = 2\kappa''(\omega) = 2\mathrm{Im}k(\omega) \tag{1.36}$$

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

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

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

$$\alpha(\omega) = \frac{\omega}{c}\mathrm{Im}\chi(\omega) \tag{1.38}$$

De même, l'indice de réfraction s'écrit

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

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 de 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

$$\varphi(z,\omega) = \varphi(0,\omega) + k(\omega)z. \tag{1.40}$$

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

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

On en déduit la relation

$$\langle t\rangle_z = \langle t\rangle_{z=0} + \langle\frac{dk}{d\omega}\rangle z \tag{1.42}$$

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

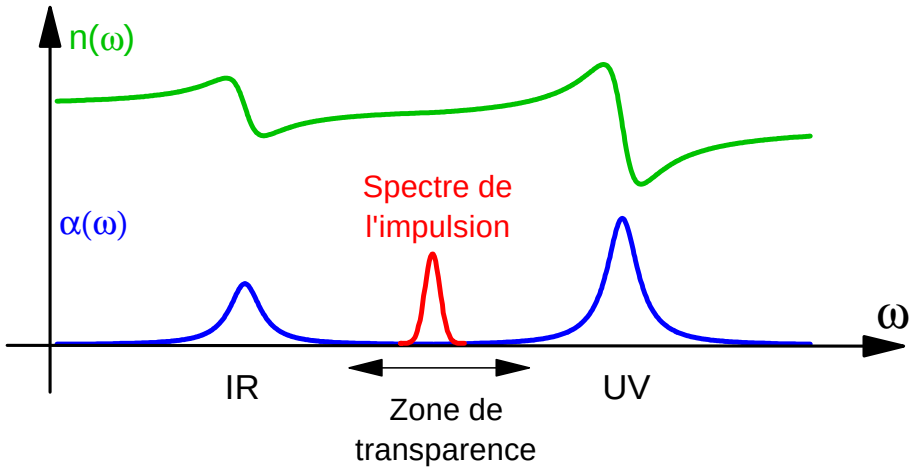


Figure 1.2: *Tout milieu matériel comporte des pics d'absorption dans l'infrarouge et dans l'ultraviolet, résultant respectivement de transitions vibrationnelles et électroniques. En conséquence, l'indice de réfraction croît avec la fréquence dans la zone de transparence (dispersion normale). Il en résulte 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,

$$\Delta\tau_g(z)^2 = \langle(\tau_g(z,\omega) - \langle\tau_g(z,\omega)\rangle)^2\rangle = \langle\left(\tau_g(0,\omega) - \langle\tau_g(0,\omega)\rangle + \left(k'(\omega) - \langle k'(\omega)\rangle\right)z\right)^2\rangle \tag{1.43}$$

La variance du retard de groupe est donc un polynome du second ordre en z, le coefficient de z^2 étant simplement $\Delta k'^2$. D'après l'éq. A.31, la variance $\Delta t(z)^2 = \Delta t^2_{\varphi=0} + \Delta\tau_g^2$ est donc également un polynome du second ordre en z. En choisissant bien l'origne 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 :

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

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'onde en mécanique quantique, ou à la diffraction d'un faisceau lumineux (voir Fig. 1.3).

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 ω_0 de l'impulsion, on obtient

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

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. 0n en déduit

$$k'(\omega) = k_0' + (\omega - \omega_0)k_0'' \tag{1.46}$$

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

$$\Delta k'^2 = \langle \left(k'(\omega) - k_0'\right)^2 \rangle = \langle (\omega - \omega_0)^2 k_0''^2 = \Delta\omega^2 k_0''^2 \tag{1.47}$$

La durée de l'impulsion s'écrit alors

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

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 $z \to +\infty$ 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

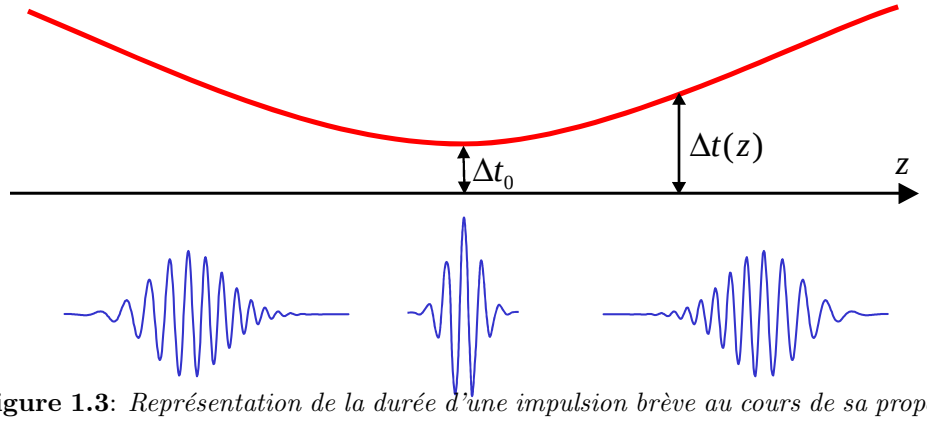


Figure 1.3: *Représentation de la durée d'une impulsion brève au cours de sa propagation, montrant une variation hyperbolique, en parfaite analogie avec le diamètre d'un faisceau lumineux. La dispersion joue un rôle analogue à la diffraction.*

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.

1.5 Approximation paraxiale

On considère dans cette section la propagation d'un faisceau monochromatique de fréquence ω dans un milieu homogène et isotrope. La fréquence ω 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 $\exp(ikz)$.

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

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

$$\int |u(x, y, 0)|^2 \, dxdy = 1 \tag{1.50}$$

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

$$\Delta \left(u(x,y,z)\exp(ikz)\right) + k^2 u(x,y,z)\exp(ikz) = 0 \tag{1.51}$$

soit

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

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

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

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

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

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

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

soit

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

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 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 de l'éq. 1.56 s'écrit donc

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

soit

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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 :

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

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 $\langle k_x^2\rangle$ 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

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

Il s'agit d'un polynome 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 polynome du second degré. On en déduit donc

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

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

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

De même selon l'axe y

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

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.

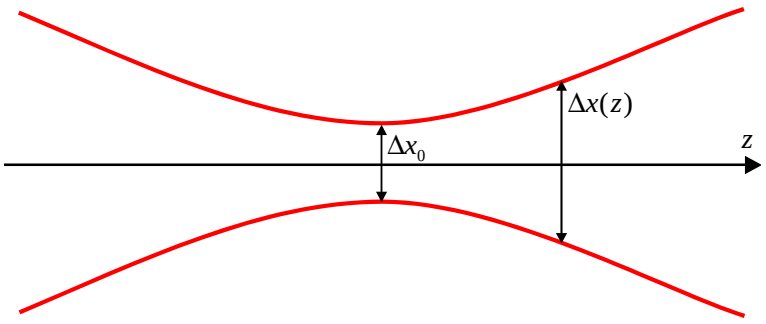


Figure 1.4: *Propagation d'un faisceau lumineux*

1.5.4 Propagation d'un faisceau gaussien

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

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

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

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

d'où, à l'aide de l'éq. 1.56

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

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

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

On écrit habituellement

$$\frac{1}{\tilde{q}(z)} = \frac{1}{R(z)} + i \frac{2}{k w(z)^2} \tag{1.77}$$

où

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

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

$$z_R = \frac{k w_0^2}{2} = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \tag{1.80}$$

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

L'éq. 1.76 devient alors

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

ou encore

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

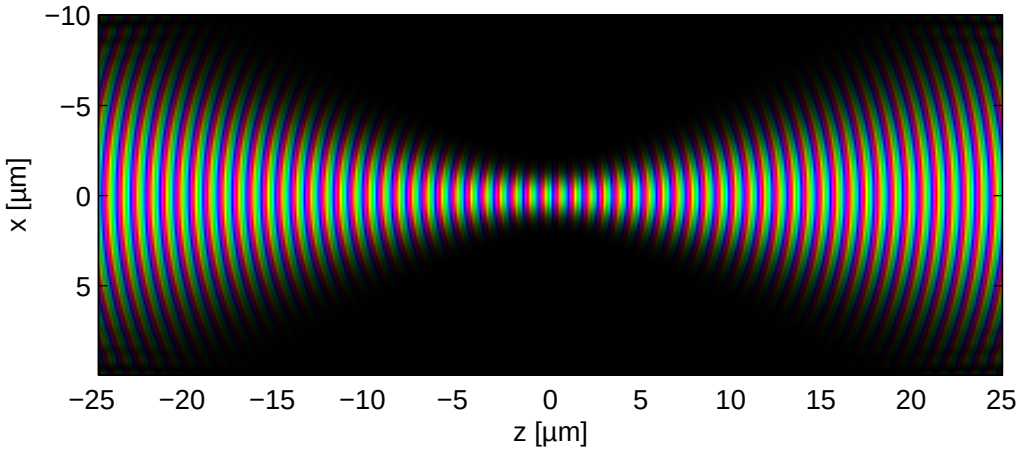


Figure 1.5: *Coupe longitudinale d'un faisceau gaussien. Les paramètres du faisceau sont* $\lambda = 0.8$ μm, $w_0 = 1$ μm.

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.

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

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

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

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

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

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

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

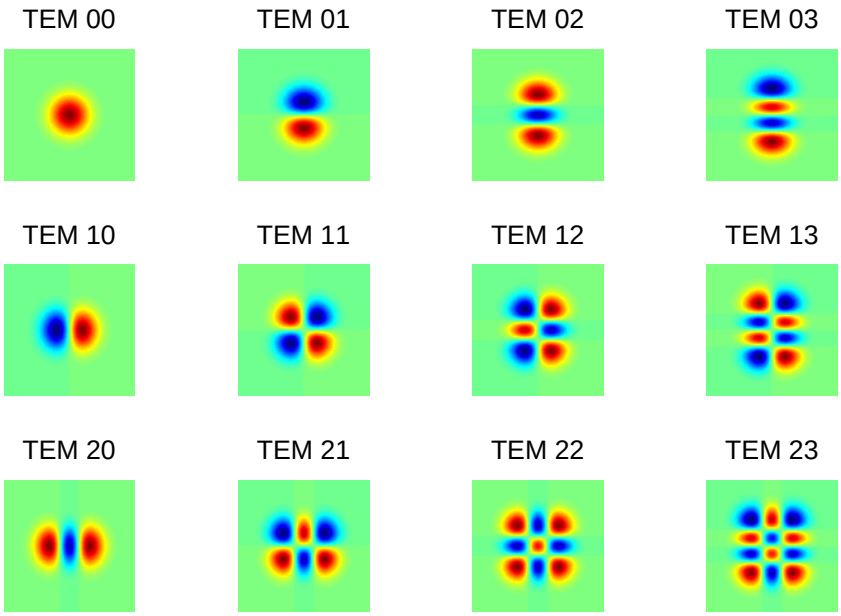


Figure 1.6: *Profils transverses de faisceaux gaussiens d'ordre multiple.*

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 $\mathcal{L}^2(R^2)$, exactement comme en mécanique quantique pour les fonctions propres du hamiltonien d'un oscillateur harmonique à deux dimensions. On pourra donc écrire

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

avec

$$C_{nm} = \int\int u^*_{nm}(x, y) u_0(x, y) dxdy \tag{1.89}$$

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

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

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 χ_{ij} est un tenseur symétrique donc diagonalisable. Si l'on suppose que les axes x, y et z sont choisis de sorte que χ_{ij} soit diagonal, on peut écrire

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

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

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

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

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

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

$$\left(n_i^2 - n^2\right) E_i + n^2 s_i \sum_j s_j E_j = 0 \tag{1.94}$$

On en déduit

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

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

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

soit,

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

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 surface, 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 $n_e(\theta)$. θ est l'angle

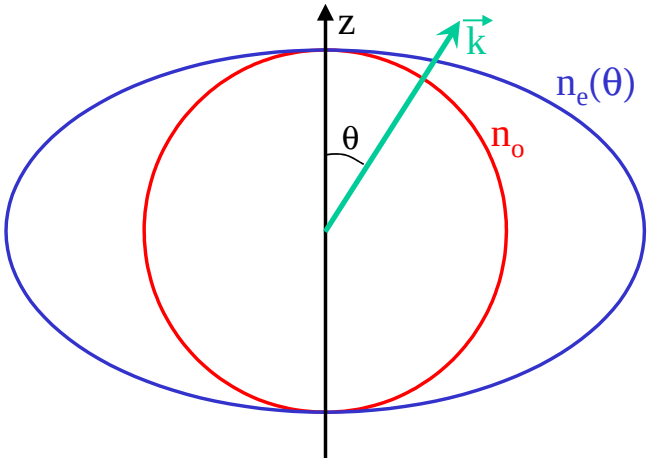


Figure 1.7: *Représentation de la surface des indices pour un matériau uniaxe*

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

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

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

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

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

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

d'où l'on déduit l'éq. 1.98.

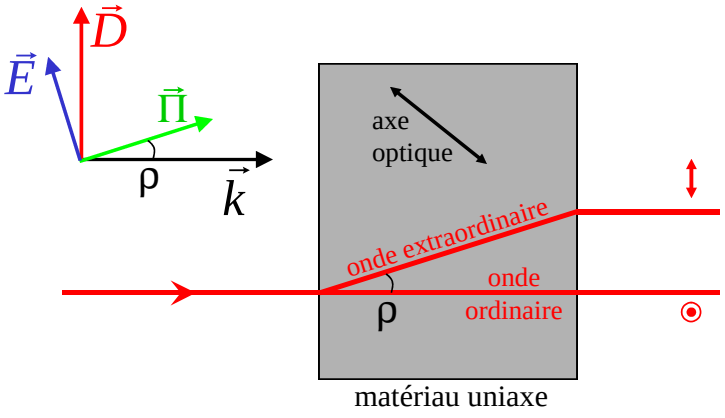


Figure 1.8: *Illustration du phénomène de double réfraction*

Pour une valeur donnée de θ, 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, il ne sont alors pas exactement colinéaires mais forment un petit angle ρ 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 ρ, 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 ρ : 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 :

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

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

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

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

$$P_i^{(n)}(\vec{r},t) = \epsilon_0 \int dt_1 ... \int dt_n T^{(n)}_{ii_1...i_n}(t;t_1,...,t_n) E_{i_1}(\vec{r},t_1)...E_{i_n}(\vec{r},t_n) \tag{2.3}$$

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

$$P_i^{(n)}(\vec{r},t) = \epsilon_0 \int d\tau_1 ... \int d\tau_n R^{(n)}_{ii_1...i_n}(\tau_1,...,\tau_n) E_{i_1}(\vec{r},t-\tau_1)...E_{i_n}(\vec{r},t-\tau_n) \tag{2.4}$$

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

Fourier, on peut écrire

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

Soit $\chi^{(n)}_{ii_1...i_n}(\omega_1,...,\omega_n)$ la transformée de Fourier multidimensionnelle de la réponse temporelle :

$$\chi^{(n)}_{ii_1...i_n}(\omega_1,...,\omega_n) = \int d\tau_1 ... \int d\tau_n R^{(n)}_{ii_1...i_n}(\tau_1,...,\tau_n) \exp(i(\omega_1\tau_1 + ... + \omega_n\tau_n)) \quad (2.6)$$

L'éq. 2.5 peut alors s'écrire

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

$\chi^{(n)}$ 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 $\{(i_1,\omega_1),...,(i_n,\omega_n)\}$, ce qui revient à permuter les champs dans l'intégrale.

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

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

$$\chi^{(n)}_{ii_1...i_n}(-\omega_1,...,-\omega_n) = \chi^{(n)}_{ii_1...i_n}(\omega_1,...,\omega_n)^* \quad (2.8)$$

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 $\chi^{(n)}_{ii_1...i_n}(\omega_1,...,\omega_n) \approx \chi^{(n)}_{ii_1...i_n}$ et

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

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 excitateur.

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

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

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

$$\hat{H}_0|n\rangle = \hbar\omega_n|n\rangle \tag{2.11}$$

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

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

où Γ_{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 $n = m$. $\rho^{(0)}_{nm}$ 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 $\hat{W}(t) = -\hat{\vec{\mu}}.\vec{E}(t) = -\hat{\mu}^i E_i(t)$, où $\hat{\vec{\mu}}$ est l'opérateur dipôle électrique. L'équation de Bloch en présence du champ devient alors

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

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

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

et

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

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

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

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 $\delta(t)$

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

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

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

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

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

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

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

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

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

Par transformée de Fourier inverse, on en déduit

$$\rho_{nm}(t) = \rho^{(0)}_{nm} \; + \; G_{nm}(t) \otimes \left(E_i(t)\sum_l(\mu^i_{nl}\rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t)\mu^i_{lm})\right) \tag{2.22}$$

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

$$\hat{\rho} = \hat{\rho}^{(0)} + \hat{\rho}^{(1)} + \hat{\rho}^{(2)} + ... \tag{2.23}$$

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

$$\rho^{(p+1)}_{nm}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left(E_i(t)\sum_l(\mu^i_{nl}\rho^{(p)}_{lm}(t) - \rho^{(p)}_{nl}(t)\mu^i_{lm})\right) \tag{2.24}$$

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.

$$\rho^{(1)}_{nm}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left(E_i(t)\sum_l(\mu^i_{nl}\rho^{(0)}_{lm} - \rho^{(0)}_{nl}\mu^i_{lm})\right) \tag{2.25}$$

$$\rho^{(2)}_{nm}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left(E_i(t)\sum_l(\mu^i_{nl}\rho^{(1)}_{lm}(t) - \rho^{(1)}_{nl}(t)\mu^i_{lm})\right) \tag{2.26}$$

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

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 transformée de Fourier, de produits, et de transformées de Fourier inverses.

2.2.3 Expression de la polarisation

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

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

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

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

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

$$\begin{aligned} \rho_{nm}^{(1)}(t) &= G_{nm}(t) \otimes \left(E_i(t) (\mu_{nm}^i \rho_{mm}^{(0)}(t) - \rho_{nn}^{(0)}(t) \mu_{nm}^i) \right) \\ &= \mu_{nm}^i \left(\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)} \right) \ G_{nm}(t) \otimes E_i(t) \end{aligned} \tag{2.30}$$

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

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

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

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

On en déduit ainsi l'expression de la susceptibilité linéaire

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

Dans le cas ou 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

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

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

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

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

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

On retrouve ainsi le fait que le spectre d'absorption est constitué d'une assemblée de Lorentziennes centrées sur les fréquences de résonance ω_{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 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.

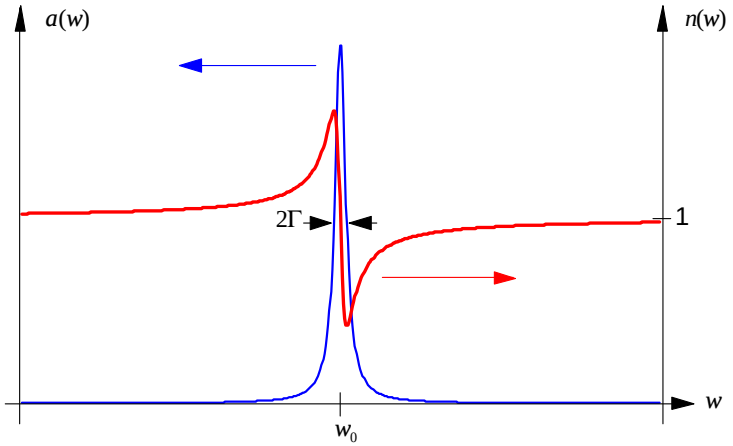


Figure 2.1: *Représentation de l'absorption et de l'indice de réfraction obtenus à partir des éq. 2.35 et 2.36 dans le cas d'un système à deux niveaux de fréquence de transition* $\omega_0 = \omega_{eg}$ *et de taux de déphasage* $\Gamma = \Gamma_{eg}$.

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

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

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

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

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 ω_{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

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

soit, dans le domaine temporel

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

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].

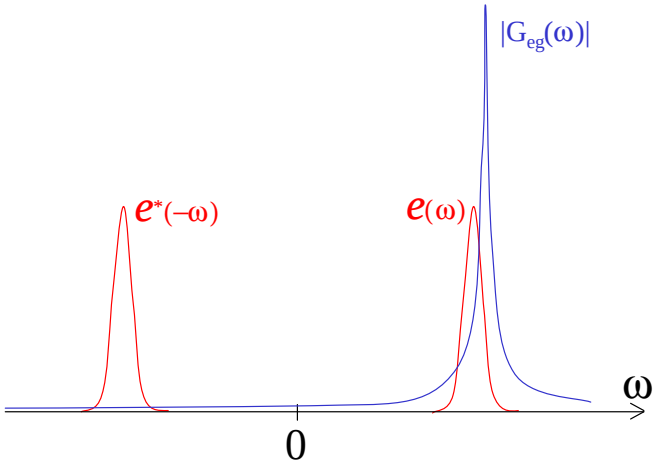


Figure 2.2: *Représentation de $|G_{eg}(\omega)|$ (trait plein) et de $|E(\omega)|^2$ (trait pointillé)*

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

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

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

$$\begin{aligned}
P_i^{(2)}(t) &= \mathcal{N} \sum_{nm} \mu_{mn}^i \rho_{nm}^{(2)}(t) \\
&= \mathcal{N} \sum_{nml} \Big(\mu_{mn}^i \mu_{nl}^j \mu_{lm}^k (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) G_{nm}(t) \otimes (E_j(t)(G_{lm}(t) \otimes E_k(t))) \\
&\qquad + \mu_{mn}^i \mu_{nl}^k \mu_{lm}^j (\rho_{nn}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) G_{nm}(t) \otimes (E_j(t)(G_{nl}(t) \otimes E_k(t))) \Big)
\end{aligned} \tag{2.42}$$

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

$$G_1(t) \otimes (E_j(t)(G_2(t) \otimes E_k(t))) \tag{2.43}$$
$$= \mathcal{F}^{-1}\left(G_1(\omega)\left(\frac{1}{2\pi}E_j(\omega) \otimes (G_2(\omega)E_k(\omega))\right)\right) \tag{2.44}$$
$$= \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} e^{-i\omega t} G_1(\omega) \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega_1}{2\pi} E_j(\omega_1) G_2(\omega - \omega_1) E_k(\omega - \omega_1) \tag{2.45}$$
$$= \int \frac{d\omega_1}{2\pi}\frac{d\omega_2}{2\pi} G_1(\omega_1 + \omega_2) G_2(\omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) \tag{2.46}$$

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

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

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

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

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

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

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, ω_1) et (k, ω_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 $\chi_{ii_1...i_n}^{(n)}(\omega_1, ..., \omega_n)$ est par convention supposé invariant par toute permutation des couples (i_1, ω_1), ..., (i_n, ω_n). Ici, cela signifie que $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1, \omega_2)$ doit être invariant par échange des couples (j, ω_1) et (k, ω_2), ce qui n'est pas le cas du tenseur $X_{ikj}^{(2)}(\omega_2, \omega_1)$. On écrira donc

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

où l'opérateur $\mathcal{P}_2$ effectue la moyenne sur les deux échanges possibles de (j,ω_1) et (k,ω_2), soit

$$\chi^{(2)}_{ijk}(\omega_1,\omega_2) = \frac{1}{2}\left(X^{(2)}_{ijk}(\omega_1,\omega_2) + X^{(2)}_{ikj}(\omega_2,\omega_1)\right) \tag{2.51}$$

On en déduit

$$\begin{aligned}\chi^{(2)}_{ijk}(\omega_1,\omega_2) = \frac{\mathcal{N}}{2\epsilon_0}\sum_{nml}\left(\rho^{(0)}_{mm}-\rho^{(0)}_{ll}\right)\Big(&\mu^i_{mn}\mu^j_{nl}\mu^k_{lm}G_{nm}(\omega_1+\omega_2)G_{lm}(\omega_2)\\ &+\mu^i_{nm}\mu^j_{ln}\mu^k_{ml}G_{mn}(\omega_1+\omega_2)G_{ml}(\omega_2)\\ &+\mu^i_{mn}\mu^k_{nl}\mu^j_{lm}G_{nm}(\omega_1+\omega_2)G_{lm}(\omega_1)\\ &+\mu^i_{nm}\mu^k_{ln}\mu^j_{ml}G_{mn}(\omega_1+\omega_2)G_{ml}(\omega_1)\Big)\end{aligned} \tag{2.52}$$

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

$$\begin{aligned}\chi^{(2)}_{ijk}(\omega_1,\omega_2) = \frac{\mathcal{N}}{2\epsilon_0}\sum_{lmn}\rho^{(0)}_{ll}\Big(&\mu^i_{ln}\mu^j_{nm}\mu^k_{ml}\;G_{nl}(\omega_1+\omega_2)G_{ml}(\omega_2)\\ &+\mu^k_{lm}\mu^j_{mn}\mu^i_{nl}\;G_{ln}(\omega_1+\omega_2)G_{lm}(\omega_2)\\ &+\mu^i_{ln}\mu^k_{nm}\mu^j_{ml}\;G_{nl}(\omega_1+\omega_2)G_{ml}(\omega_1)\\ &+\mu^j_{lm}\mu^k_{mn}\mu^i_{nl}\;G_{ln}(\omega_1+\omega_2)G_{lm}(\omega_1)\\ &-\mu^k_{lm}\mu^i_{mn}\mu^j_{nl}\;G_{nm}(\omega_1+\omega_2)G_{lm}(\omega_2)\\ &-\mu^j_{ln}\mu^i_{nm}\mu^k_{ml}\;G_{mn}(\omega_1+\omega_2)G_{ml}(\omega_2)\\ &-\mu^j_{lm}\mu^i_{mn}\mu^k_{nl}\;G_{nm}(\omega_1+\omega_2)G_{lm}(\omega_1)\\ &-\mu^k_{ln}\mu^i_{nm}\mu^j_{ml}\;G_{mn}(\omega_1+\omega_2)G_{ml}(\omega_1)\Big)\end{aligned} \tag{2.53}$$

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

$$\begin{aligned}\chi^{(2)}_{ijk}(\omega_1,\omega_2) = \frac{\mathcal{N}}{2\epsilon_0\hbar^2}\sum_{lmn}\rho^{(0)}_{ll}\Bigg[&\frac{\mu^i_{ln}\mu^j_{nm}\mu^k_{ml}}{(\omega_3-\omega_{nl}+i\Gamma_{nl})(\omega_2-\omega_{ml}+i\Gamma_{ml})}+\frac{\mu^k_{lm}\mu^j_{mn}\mu^i_{nl}}{(\omega_3-\omega_{ln}+i\Gamma_{ln})(\omega_2-\omega_{lm}+i\Gamma_{lm})}\\ &+\frac{\mu^i_{ln}\mu^k_{nm}\mu^j_{ml}}{(\omega_3-\omega_{nl}+i\Gamma_{nl})(\omega_1-\omega_{ml}+i\Gamma_{ml})}+\frac{\mu^j_{lm}\mu^k_{mn}\mu^i_{nl}}{(\omega_3-\omega_{ln}+i\Gamma_{ln})(\omega_1-\omega_{lm}+i\Gamma_{lm})}\\ &-\frac{\mu^k_{lm}\mu^i_{mn}\mu^j_{nl}}{(\omega_3-\omega_{nm}+i\Gamma_{nm})(\omega_2-\omega_{lm}+i\Gamma_{lm})}-\frac{\mu^j_{ln}\mu^i_{nm}\mu^k_{ml}}{(\omega_3-\omega_{mn}+i\Gamma_{mn})(\omega_2-\omega_{ml}+i\Gamma_{ml})}\\ &-\frac{\mu^j_{lm}\mu^i_{mn}\mu^k_{nl}}{(\omega_3-\omega_{nm}+i\Gamma_{nm})(\omega_1-\omega_{lm}+i\Gamma_{lm})}-\frac{\mu^k_{ln}\mu^i_{nm}\mu^j_{ml}}{(\omega_3-\omega_{mn}+i\Gamma_{mn})(\omega_1-\omega_{ml}+i\Gamma_{ml})}\Bigg]\end{aligned} \tag{2.54}$$

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 $\chi^{(2)}_{ijk}(\omega_1,\omega_2)$, 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, ω_1) et (k, ω_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

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

Ce terme peut être interprété à l'aide de la relation de récurrence faisant passer de $\hat{\rho}^{(p)}$ à $\hat{\rho}^{(p+1)}$ (éq. 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 ω_1 est proche de ω_{ml}, la fréquence propre d'oscillation de $\rho_{ml}^{(1)}$, et une deuxième résonance lorsque la fréquence à laquelle est induite la polarisation, ω_3, est proche de la fréquence propre ω_{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

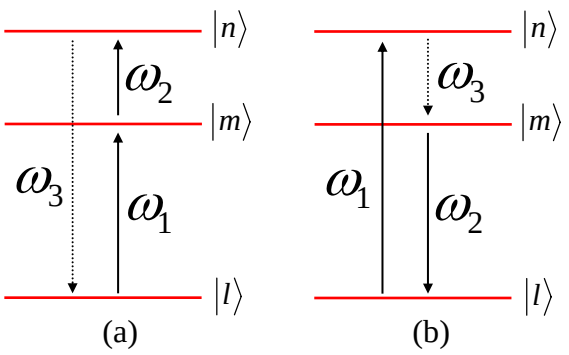


Figure 2.3: *Deux diagrammes intervenant dans la susceptibilité non-linéaire du deuxième ordre.*

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

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

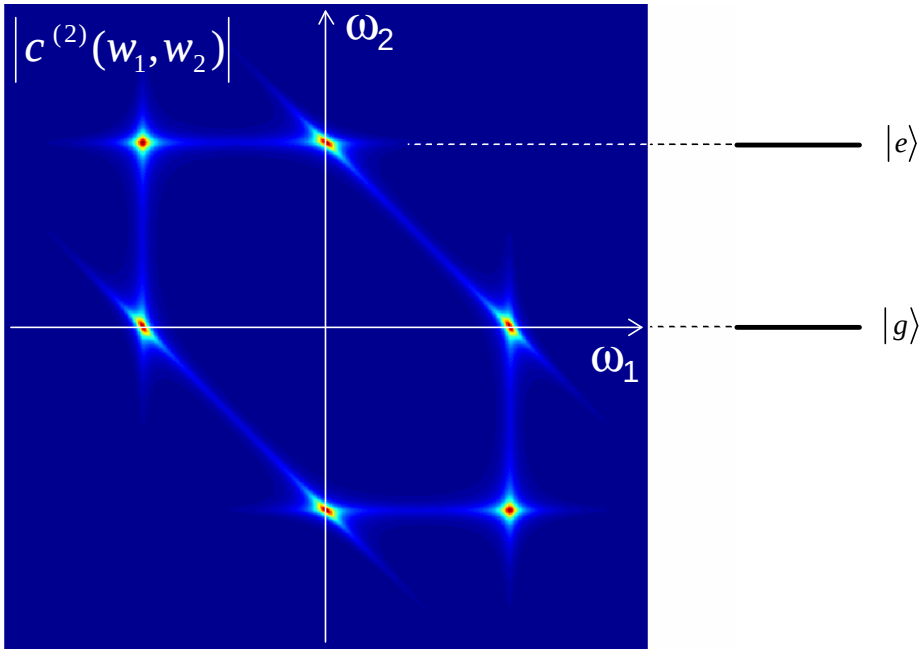


Figure 2.4: *Représentation du spectre bidimensionnel de susceptibilité non-linéaire du deuxième ordre pour un système à deux niveaux.*

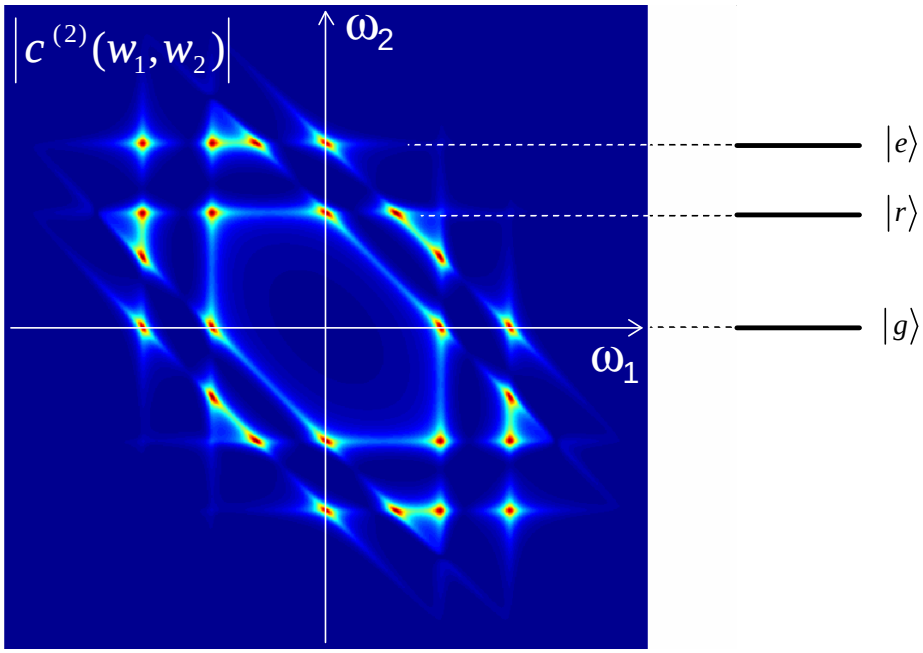


Figure 2.5: *Représentation du spectre bidimensionnel de susceptibilité non-linéaire du deuxième ordre pour un système à trois niveaux.*

$\rho_{nl}^{(1)}$ 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 ω_3 est proche de ω_{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 ω_{nl} et ω_{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 ω_{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, $\{|g\rangle, |r\rangle$ 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 croit 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 ω_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 ($|\omega_l - \omega_{ba}| << \omega_{ba}$). 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

$$\hat{\vec{\mu}}.\vec{\epsilon} = \begin{pmatrix} 0 & \mu \\ \mu & 0 \end{pmatrix} \tag{2.57}$$

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

et

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

d'où l'on déduit

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

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

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

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 $\tilde{\rho}_{ba}$, ρ_{aa} et ρ_{bb} constants. Les trois équations ci-dessus deviennent

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

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

Posons

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

et

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

L'éq. 2.67 devient

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

d'où l'on déduit la différence des populations

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

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

La différence de populations peut encore s'écrire

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

où I est l'intensité du faisceau, proportionnelle à Ω_1^2, et I_S est l'intensité de saturation.

La polarisation induite dans le matériau s'écrit

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

soit, en notation complexe

$$\mathcal{P}(t) = 2\mathcal{N}\mu\tilde{\rho}_{ba} exp(-i\omega_l t)$$

$$= \frac{\mathcal{N}\mu^2}{\hbar} \frac{1}{\omega_l - \omega_{ba} + i\Gamma_{ba}} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) E_0 exp(-i\omega_l t)$$

Ceci peut se mettre sous la forme

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

avec

$$\chi = \chi^{(1)}(\omega_l) \frac{\rho_{aa} - \rho_{bb}}{\rho_{aa}^{(0)} - \rho_{bb}^{(0)}}$$

$$= \frac{\chi^{(1)}(\omega_l)}{1 + I/I_S} \tag{2.76}$$

χ 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

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

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 $\vec{\nabla}(\vec{\nabla}\vec{E})$ dans l'équation de propagation. En utilisant la notation complexe comme définie au chapitre 1, l'équation de propagation devient alors

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

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

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

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

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

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 du membre de droite de l'éq. 3.2. On obtient alors

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

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. A l'exception du problème 2004 consacré à la génération de troisième harmonique en géométrie focalisée (appendice D.4), on se contentera par la suite de la version unidimensionnelle de l'équation de propagation, valable pour des ondes planes. On écrit alors

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

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

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

soit

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

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

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

En remplaçant dans l'éq. 3.6, on obtient

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

En identifiant les coefficients des distributions de Dirac pour chaque onde de fréquence ω_i, on

obtient un système non-linéaire d'équations différentielles couplées

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

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

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

3.2.1 Importance de la symétrie

Dans une transformation $\vec{r} \to -\vec{r}$, les vecteurs sont transformés en leurs opposés, soit $\vec{E} \to -\vec{E}$ et $\vec{P} \to -\vec{P}$. D'après l'éq. 3.12, on peut donc en déduire que $\chi^{(2)} \to -\chi^{(2)}$ 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 symétrique ponctuelle $\vec{r} \to -\vec{r}$. 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 ω_1 et ω_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 ω_1 et ω_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

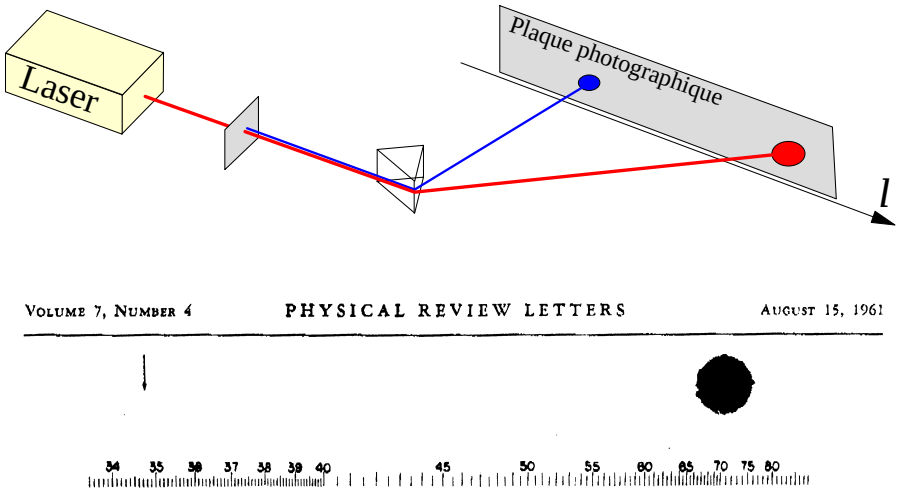


Figure 3.1: *Première observation du phénomène de doublage de fréquence [11]. Le faisceau transmis par le cristal non-linéaire est dispersé à l'aide d'un prisme afin d'isoler la composante à 2ω. L'image du faisceau doublé, normalement présente sous la flèche, a malencontreusement été effacée car confondue 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 ω_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

$$\mathcal{P}_2^{(2)} = \frac{\epsilon_0\chi^{(2)}}{2}\,\mathcal{E}_1^2 = \frac{\epsilon_0\chi^{(2)}}{2}\,\mathcal{A}_1(z)^2\exp(2ik_1z) \tag{3.14}$$

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

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

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 ω_1. On obtient donc un système de deux équations différentielles couplées, dont on pourra trouver une solution à l'appendice D.1. 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 :

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

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 θ 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 π à chaque interface

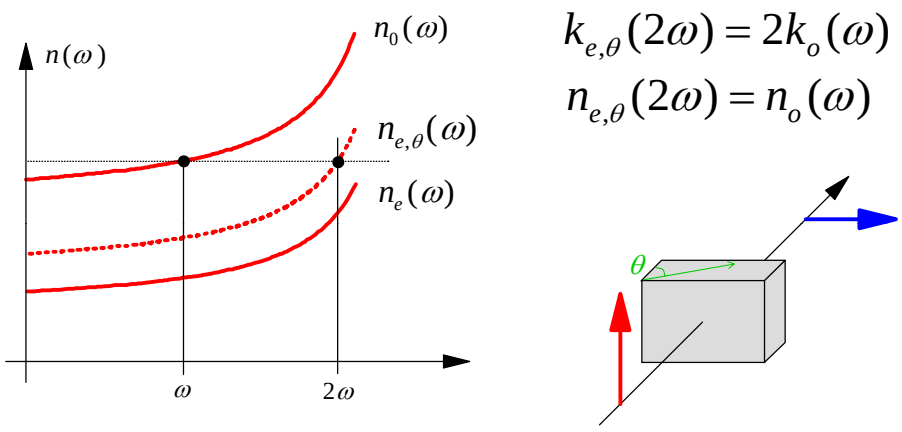


Figure 3.2: *Accord de phase par biréfringence*

qui vient exactement compenser le déphasage $\Delta k L_C = \pi$ résultant de la propagation. En pratique, le renversement du $\chi^{(2)}$ résulte de l'inversion de domaines ferro-électriques. On pourra approfondir l'approche du quasi accord de phase en consultant le problème 2002 (appendice D.2).

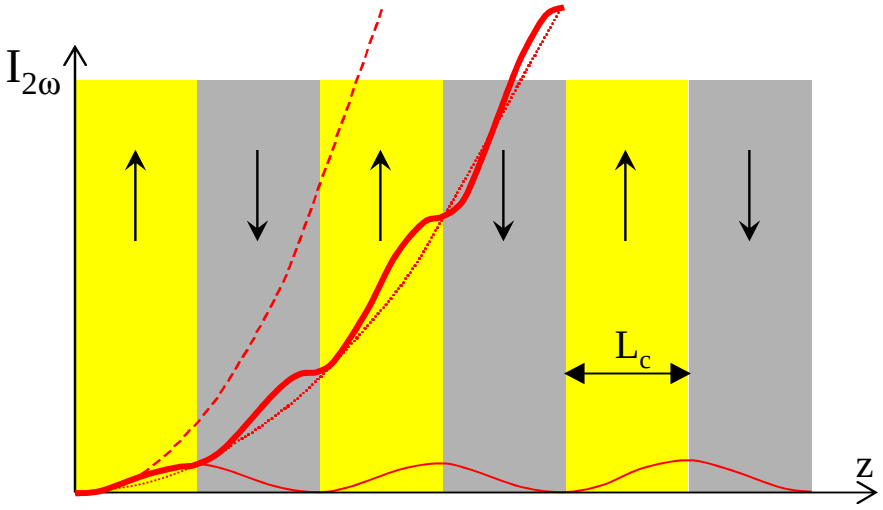


Figure 3.3: *Quasi accord de phase*

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

$$\frac{d\mathcal{A}_2}{dz} = \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{4n_2 c}\,\mathcal{A}_1^2 \tag{3.17}$$

dont la solution s'écrit simplement

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

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 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 ω_1 et ω_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

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

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

$$\frac{d\mathcal{A}_1}{dz} = \frac{i\omega_1\chi^{(2)}}{2n_1c}\mathcal{A}_2\mathcal{A}_3 e^{-i\Delta kz}$$

$$\begin{aligned}\frac{d\mathcal{A}_2}{dz} &= \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{2n_2c}\mathcal{A}_1\mathcal{A}_3^* e^{i\Delta kz} \\ \frac{d\mathcal{A}_3}{dz} &= \frac{i\omega_3\chi^{(2)}}{2n_3c}\mathcal{A}_1\mathcal{A}_2^* e^{i\Delta kz}\end{aligned}$$

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

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

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

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

soit le rapport entre le vecteur de Poynting dans le milieu et l'énergie d'un photon. Φ_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 α_1 par rapport à z:

$$\begin{aligned}\frac{d\alpha_1}{dz} &= \sqrt{\frac{n_1c\epsilon_0}{2\hbar\omega_1}}\frac{d\mathcal{A}_1}{dz} \\ &= \sqrt{\frac{n_1c\epsilon_0}{2\hbar\omega_1}}\frac{i\omega_1\chi^{(2)}}{2n_1c}\sqrt{\frac{2\hbar\omega_2}{n_2c\epsilon_0}}\alpha_2\sqrt{\frac{2\hbar\omega_3}{n_3c\epsilon_0}}\alpha_3 e^{-i\Delta kz} \\ &= i\chi^{(2)}\sqrt{\frac{\hbar\omega_1\omega_2\omega_3}{2\epsilon_0c^3n_1n_2n_3}}\alpha_2\alpha_3 e^{-i\Delta kz} \\ &= i\xi\alpha_2\alpha_3 e^{-i\Delta kz}\end{aligned}$$

où l'on a posé

$$\xi = \chi^{(2)}\sqrt{\frac{\hbar\omega_1\omega_2\omega_3}{2\epsilon_0c^3n_1n_2n_3}} \tag{3.22}$$

En procédant de même pour α_2 et α_3, on obtient le système d'équations couplées

$$\frac{d\alpha_1}{dz} = i\xi\alpha_2\alpha_3 e^{-i\Delta kz} \tag{3.23}$$

$$\frac{d\alpha_2}{dz} = i\xi\alpha_1\alpha_3^* e^{i\Delta kz} \tag{3.24}$$

$$\frac{d\alpha_3}{dz} = i\xi\alpha_1\alpha_2^* e^{i\Delta kz} \tag{3.25}$$

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

$$\begin{aligned}\frac{d\Phi_1}{dz} &= \frac{d\alpha_1}{dz}\alpha_1^* + \alpha_1\frac{d\alpha_1^*}{dz} \\ &= 2\mathrm{Re}\alpha_1^*\frac{\mathrm{d}\alpha_1}{\mathrm{dz}}\end{aligned}$$

$$= \quad 2\mathrm{Re}i\xi\alpha_1^*\alpha_2\alpha_3 e^{-i\Delta kz} \tag{3.26}$$

De même

$$\frac{d\Phi_2}{dz} = 2\mathrm{Re}i\xi\alpha_1\alpha_2^*\alpha_3^* e^{i\Delta kz} \tag{3.27}$$

et

$$\frac{d\Phi_3}{dz} = 2\mathrm{Re}i\xi\alpha_1\alpha_2^*\alpha_3^* e^{i\Delta kz} \tag{3.28}$$

On peut donc en déduire

$$\frac{d\Phi_2}{dz} = \frac{d\Phi_3}{dz} = -\frac{d\Phi_1}{dz} \tag{3.29}$$

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

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

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 dépletion du faisceau pompe et supposer que α_1 reste constant. Par un choix judicieux de l'origine des temps, on pourra de plus supposer α_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

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

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

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 α_2 et α_3 obéissent à une même équation

$$\frac{d^2\alpha}{dz^2} = g^2\alpha \tag{3.33}$$

On peut donc en déduire la solution pour α_2 et α_3 :

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

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

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

$$\alpha_2(z) = \alpha_2(0)\cosh gz \tag{3.36}$$

$$\alpha_3(z) = \alpha_2^*(0)\sinh gz \tag{3.37}$$

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

$$\frac{d\alpha_2}{dz} = g\alpha_2^* \tag{3.38}$$

dont la solution s'écrit

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

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 quadrature P et Q, on voit que le champ après propagation s'écrit

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

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 kilomètre 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

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

Si le champ oscille à une fréquence ω, les deux premiers termes de l'équation ci-dessus oscilleront à la fréquence 3ω, 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

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

Comme anoncé 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

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

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

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

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

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

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

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

où

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

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

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

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

se met sous la forme

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

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 :

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

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

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

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 $\exp(i(2\vec{k}_P - \vec{k}_S).\vec{r})$. Ce terme de la polarisation est donc à l'origine du rayonnement d'une onde dont la phase spatiale varie selon $(2\vec{k}_P - \vec{k}_S).\vec{r}$, 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 $\vec{k}_S.\vec{r}$. 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

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

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 :

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

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

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

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) :

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

équation que l'on peut réexprimer sous la forme

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

où α_2, quantité proportionnelle à $\mathrm{Im}\chi^{(3)}$, 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

$$\mathcal{E} = \sqrt{T}\mathcal{E}_{in} + \sqrt{R}\mathcal{E}' \tag{4.1}$$

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

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

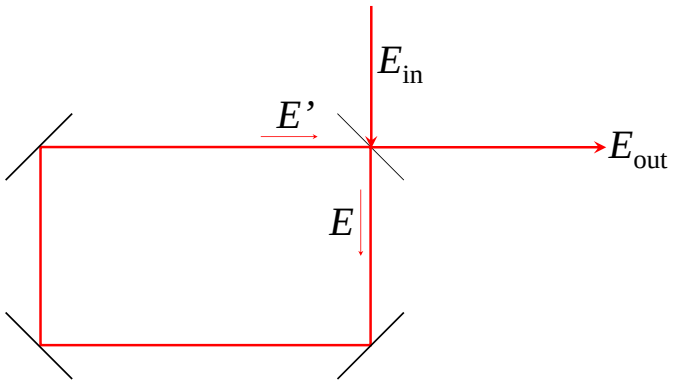


Figure 4.1: *Cavité circulaire*

l'intensité du faisceau est multipliée par un facteur $\exp(-A)$ à chaque tour de cavité, et que le champ subit un déphasage φ. 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 ω, tandis que le terme φ_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

$$\mathcal{E}' = \mathcal{E}\, e^{-A/2}\, e^{i\varphi} \tag{4.3}$$

En remplaçant dans l'éq. 4.1, on obtient

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

soit,

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

d'où

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

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 φ est un multiple de 2π. 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 $f = 2\pi/P$.

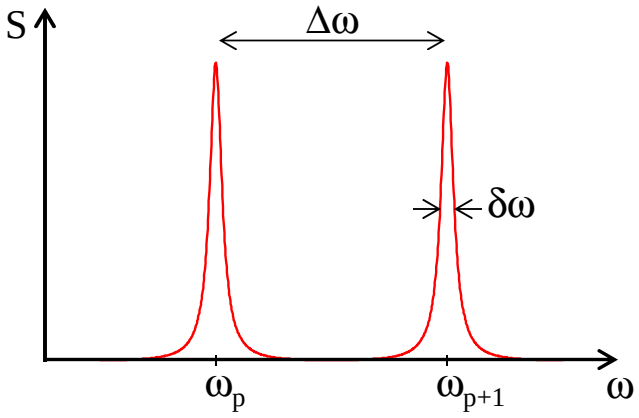


Figure 4.2: *Représentation du facteur de surtension en fonction de la fréquence*

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

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

La largeur à mi-hauteur est obtenue lorsque

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

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

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

On en déduit la finesse

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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 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 a 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.

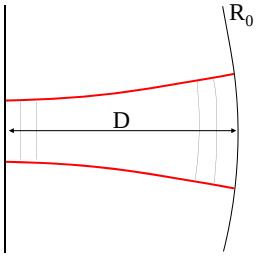


Figure 4.3: *Cavité plan - sphérique utilisée dans la détermination du mode transverse*

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

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

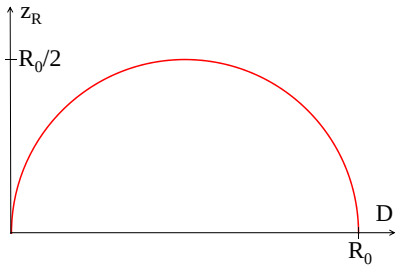


Figure 4.4: *Zone de stabilité de la cavité*

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 2π, 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

$$\left.\frac{\partial\rho_{aa}}{\partial t}\right|_{pompage} = \Lambda_a \tag{4.15}$$

$$\left.\frac{\partial\rho_{bb}}{\partial t}\right|_{pompage} = \Lambda_b \tag{4.16}$$

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

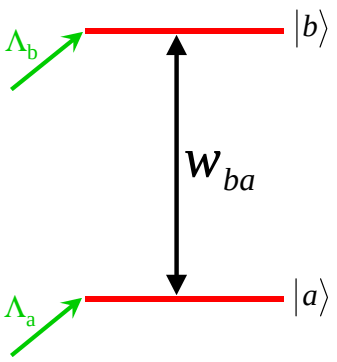


Figure 4.5: *Modèle à deux niveaux incorporant des taux de pompage Λ_a et Λ_b des deux niveaux a et b*

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

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

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

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

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

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

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

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

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

$$I(z) = I(0) \exp(g_0 z) \tag{4.25}$$

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

$$\frac{dI}{dz} = g_0 \frac{I}{1 + \frac{I}{I_S}} \tag{4.26}$$

que l'on peut encore écrire

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

Cette équation aux variables séparables s'intègre simplement

$$\ln \frac{I}{I_0} + \frac{I - I_0}{I_S} = g_0 L \tag{4.28}$$

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.

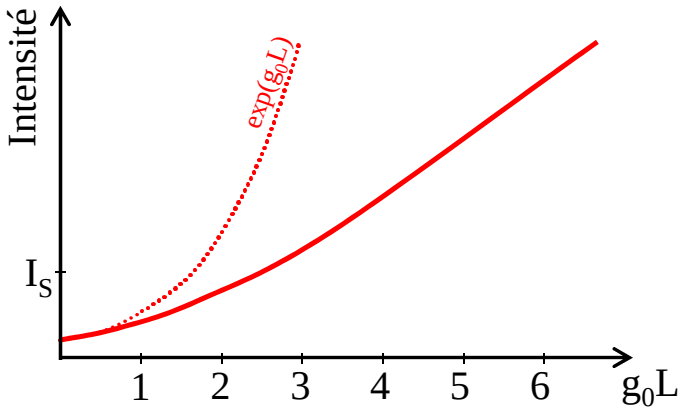


Figure 4.6: *Intensité obtenue après amplification sur une Longueur L. La courbe en pointillé représente ce que l'on aurait obtenu en l'absence de saturation ($g = g_0$).*

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

$$\mathcal{E}' = \mathcal{E}\, e^{i\frac{n\omega L_A}{c}}\, e^{gL_A/2} \tag{4.29}$$

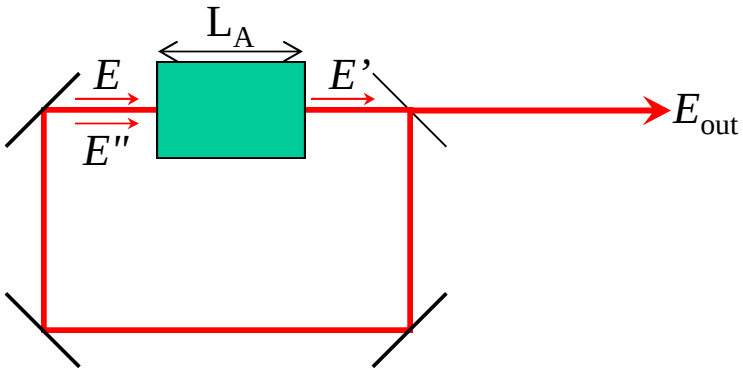


Figure 4.7: *Cavité laser utilisée dans le modèle*

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

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

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 φ_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

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

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

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

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

$$Re^{-A}\, e^{gL_A} = 1 \tag{4.33}$$

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

$$gL_A = P \tag{4.34}$$

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

$$\frac{g_0 L_A}{1+\frac{I}{I_S}} = P \tag{4.35}$$

soit

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

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'eq. 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

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

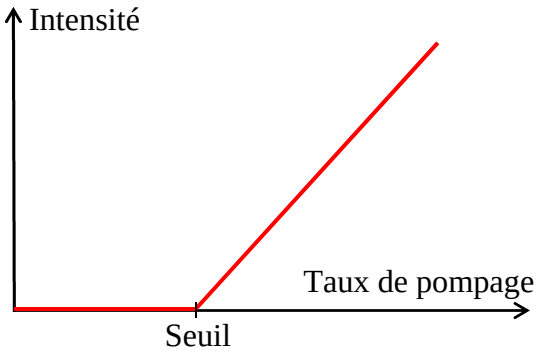


Figure 4.8: *Puissance émise en fonction du taux de pompage*

4.3.3 Condition sur la phase

La condition sur la phase s'écrit

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

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).

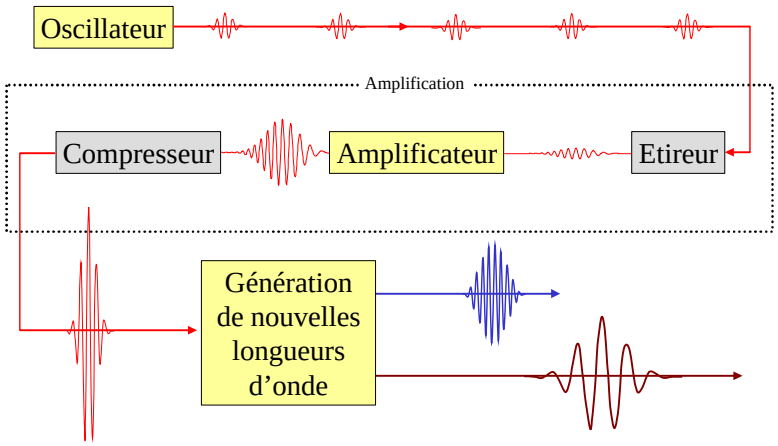


Figure 4.9: *Schéma général d'une source femtoseconde*

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" Δt 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 μm.

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

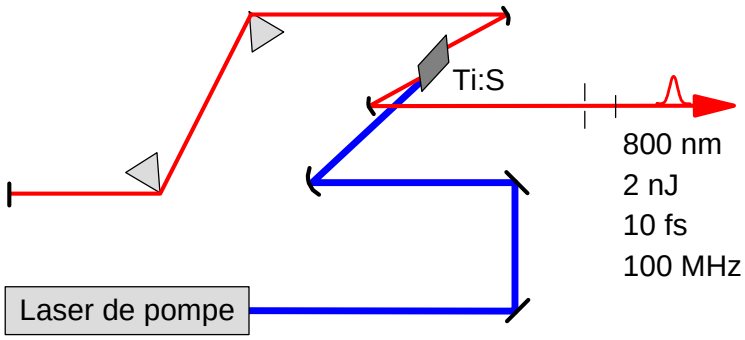


Figure 4.10: *Oscillateur Saphir:Titane. La compensation de dispersion de vitesse de groupe est assurée par l'ensemble des deux prismes, produisant une dispersion de vitesse de groupe négative. Le blocage de mode est assuré par effet Kerr. D'une part dans le domaine temporel, la phase non-linéaire permet 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 impulsionnel.*

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 Δt 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.

On pourra trouver une description plus approfondie d'un oscillateur femtoseconde dans l'appendice D.7, où l'on verra qu'en régime permanent le fonctionnement du laser résulte de la compensation parfaitement exacte entre la dispersion de vitesse de groupe de la cavité (qui est globalement négative) et le déphasage non-linéaire résultant de l'effet Kerr, à la manière d'un soliton se propageant sans déformation. L'exactitude de cette compensation, qui résulte d'un ajustement incessant de la forme de l'impulsion, atteint une telle précision que la rigidité du peigne de fréquences ainsi produit a révolutionné la métrologie des fréquences.

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 indicent. 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 [1], placé en un point de coordonnés 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

[1] 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

$$S(t) = S^{(1)}(t) + S^{(2)}(t) + ... \tag{5.1}$$

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 $E(t)$:

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

ou encore

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

La réponse impulsionnelle du détecteur a une durée caractérisitique 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 ω_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

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

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.

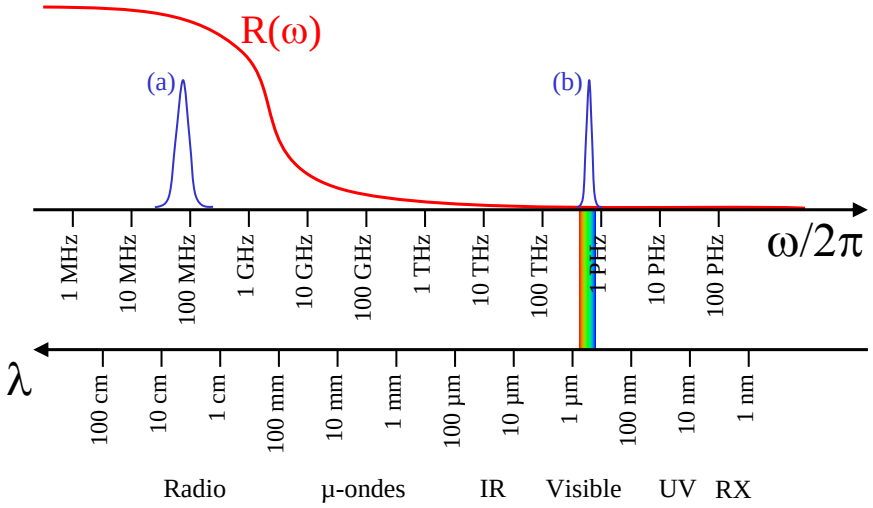


Figure 5.1: *Représentation de la fonction de réponse $R(\omega)$ du système de détection. (a) Spectre d'une impulsion électro-magnétique dans le domaine radio. (b) Spectre d'une impulsion visible.*

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

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

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 selon

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

avec

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

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 $S^{(2)}(\omega)$ doit s'annuler dès lors que $|\omega| >> 1/T_R$. 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 $|\omega_1 + \omega_2| >> 1/T_R$, 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 ω_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 ω_1 et ω_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

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

ou encore

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

L'éq. 5.7 devient alors

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

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

$$R(\omega_1, \omega_2) = 2\xi(\omega_1 + \omega_2) \tag{5.11}$$

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

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

soit

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

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

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

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

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

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

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

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

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

ou encore

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

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

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

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'oeil 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

$$\vec{k}_d.\vec{\tau} = \vec{k}_i.\vec{\tau} + n\frac{2\pi}{d} \tag{5.20}$$

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 θ_i et θ_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

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

ou encore

$$\sin\theta_d + \sin\theta_i = n\frac{\lambda}{d} \tag{5.22}$$

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

$$\frac{d\theta_d}{d\lambda} = \frac{n/d}{\cos\theta_d} \tag{5.23}$$

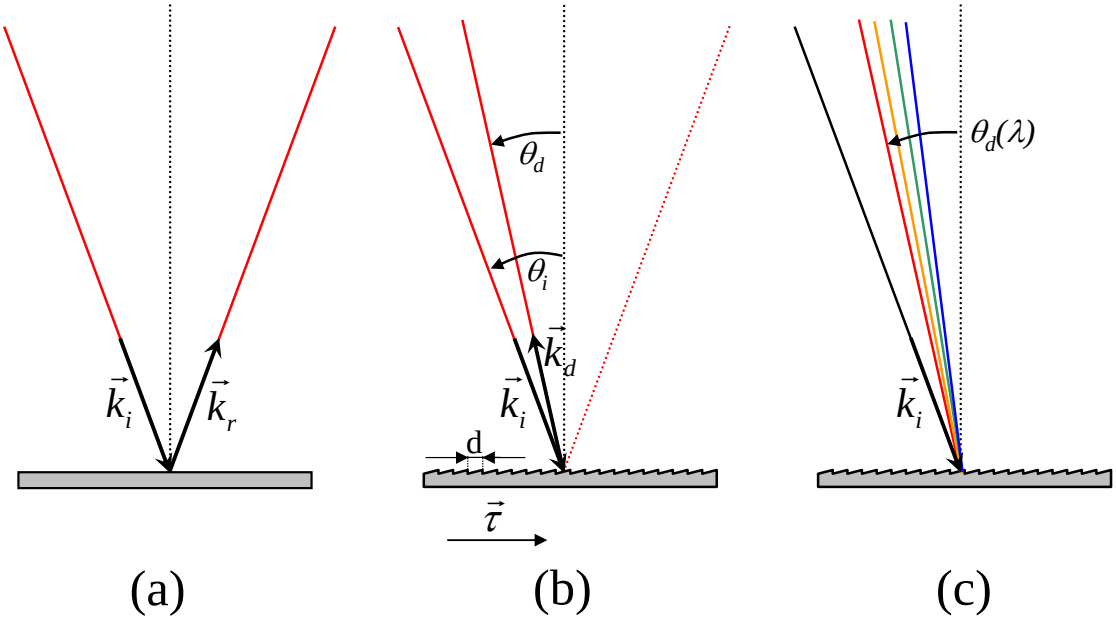


Figure 5.2: *(a) Réflexion sur un miroir plan. (b) Diffraction d'un faisceau monochromatique sur un réseau de période d. (c) Diffraction d'un faisceau polychromatique.*

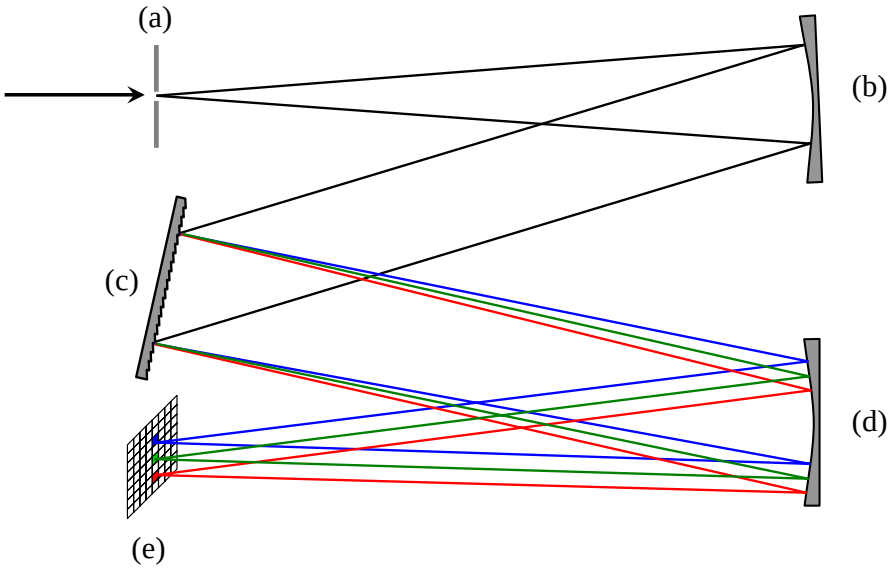


Figure 5.3: *Schéma de principe d'un spectromètre à réseau*

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 → 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[2],
- (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 τ 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

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

On appelle $S(\tau)$ le signal mesuré en fonction de τ 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

[2]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

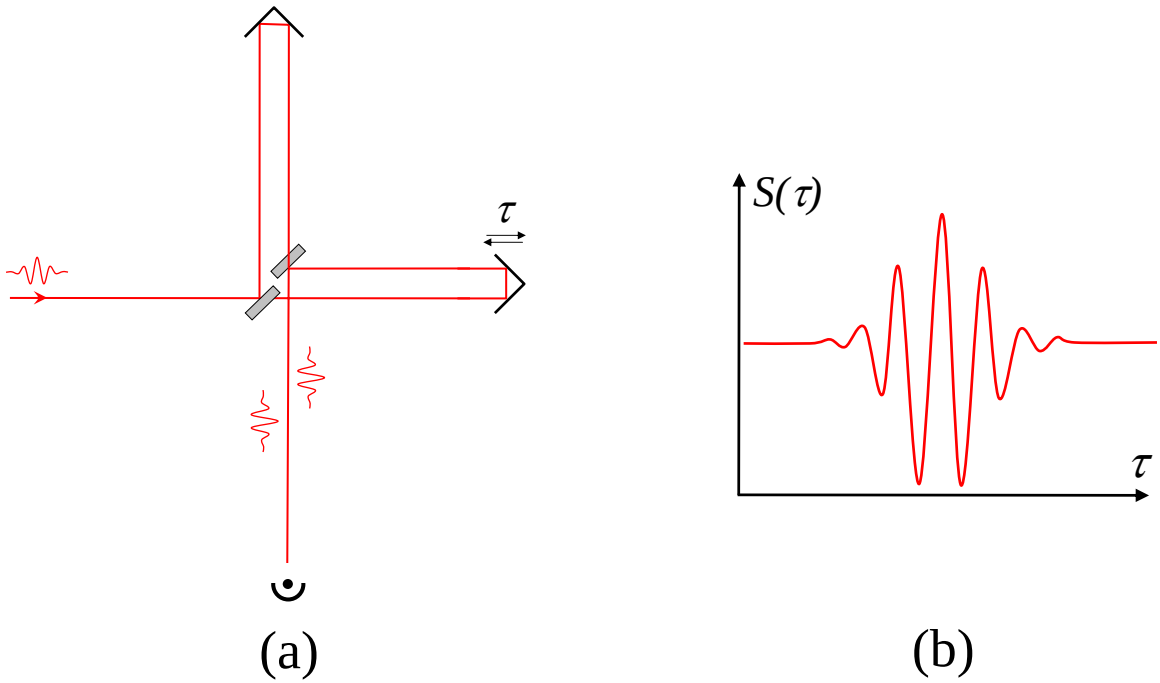


Figure 5.4: *(a) Schéma de principe d'un spectromètre par transformée de Fourier. Chaque lame semi-transparente comporte un traitement diélectrique en face avant assurant une réflectivité de 50%, ainsi qu'un traitement anti-reflet en face arrière. (b) Exemple de signal mesuré en fonction du retard τ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

ou de l'intensité temporelle. On obtient alors

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

On en déduit

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

Le premier terme est indépendant du retard τ 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 d'un produit de convolution est le produit des transformées de Fourier. 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 de Fourier de la fonction d'autocorrélation du champ électrique est simplement égale à l'intensité spectrale

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

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 inverse 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 calculateur effectuant numériquement la transformée de Fourier 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 ω 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

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

soit

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

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 $\Delta\varphi(x,y)$.

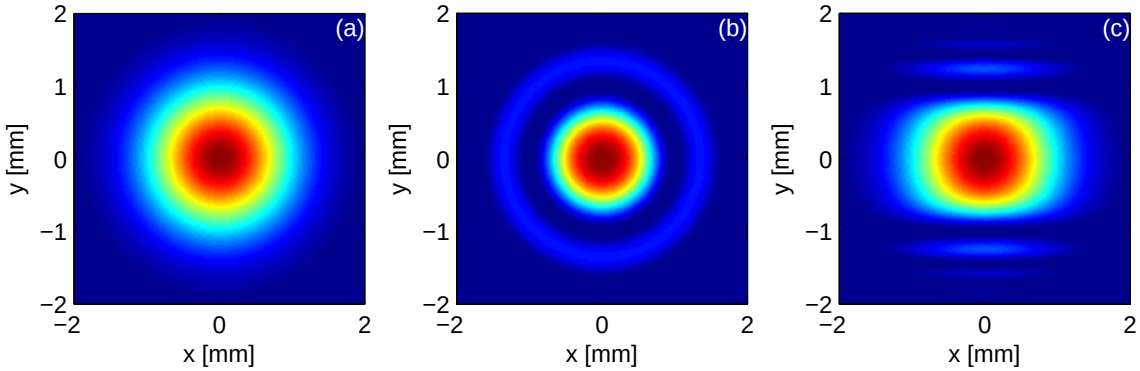


Figure 5.5: *Figures d'interférence obtenues entre un faisceau de référence de phase spatiale plate et un faisceau de phase spatiale $\varphi(x,y)$. Les deux faisceaux sont supposés gaussiens avec $w = 1$ mm et (a) $\varphi(x,y) = 0$, (b) $\varphi(x,y) = \pi(x^2+y^2)/w^2$ et (c) $\varphi(x,y) = \pi y^3/w^3$.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

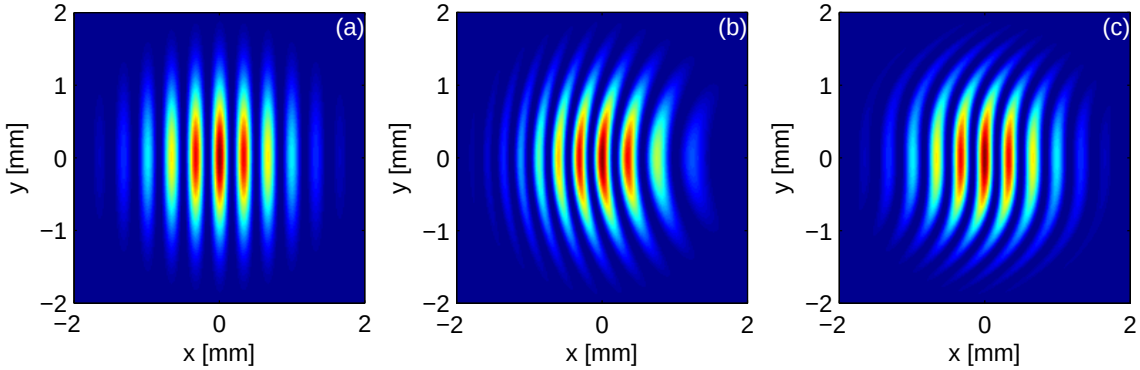


Figure 5.6: *Figures d'interférence obtenues entre deux faisceaux non colinéaires, les autres paramètres étant identiques à ceux de la figure précédente.*

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 θ 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

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

Si l'angle θ 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 ambiguité 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

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

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

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

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'intercorrélation $\mathcal{E}_0^*(-k_x,-k_y)\otimes\mathcal{E}(k_x,k_y)$ 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

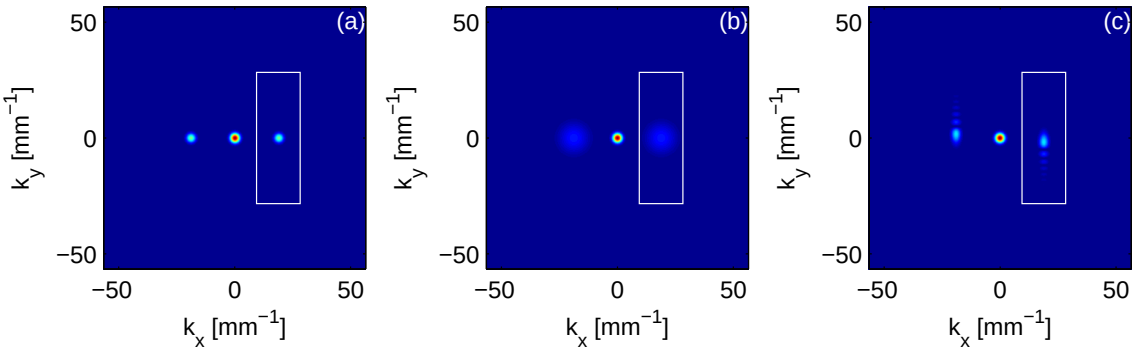


Figure 5.7: *Transformées de Fourier bidimensionnelles des images représentées Fig. 5.6*

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

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

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

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

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

$$S(x, y) \rightarrow S(k_x, k_y) \overset{\text{Fenêtrage}}{\longrightarrow} S_F(k_x, k_y) \rightarrow S_F(x, y) \tag{5.35}$$

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.

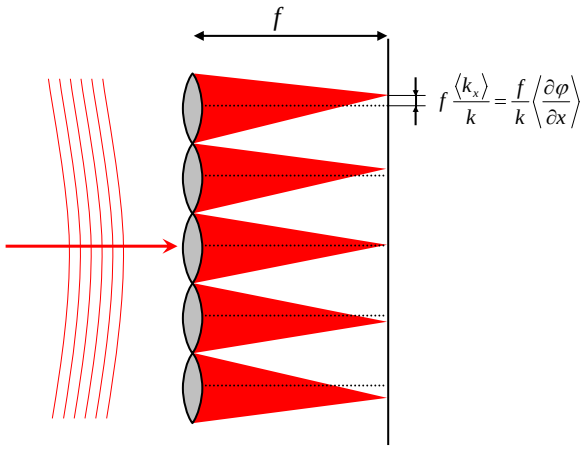


Figure 5.8: *Schéma de principe du dispositif de Shack-Hartmann. Si la déformation du front d'onde est suffisamment faible, on peut considérer que chaque micro-lentille focalise une mini onde plane dont le vecteur d'onde transverse est simplement le gradient de la phase spatiale du faisceau, ce qui produit 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 avions établi les relations $\langle x\rangle = -\langle\partial\varphi/dk_x\rangle$ (voir eq. 1.66) et $\langle t\rangle = \langle d\varphi/d\omega\rangle$ (voir eq. A.28), on montre que

$$\langle k_x\rangle = \left\langle\frac{\partial\varphi}{\partial x}\right\rangle \tag{5.36}$$

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

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

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 δx. De cette façon, la différence de phase extraite par le filtrage de Fourier décrit plus haut s'écrit

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

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.

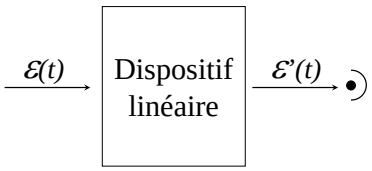


Figure 5.9: *Schéma général d'un dispositif de mesure linéaire et stationnaire*

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

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

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

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

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

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

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

$$\Delta\varphi(\omega) = \varphi(\omega) - \varphi_0(\omega) \tag{5.42}$$

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 de l'inter-corrélation entre les deux champs :

$$f(t) = E_0(-t) \otimes E(t) \tag{5.43}$$

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

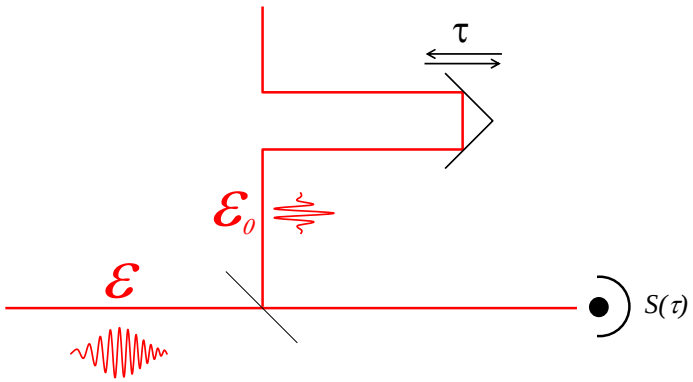


Figure 5.10: *Dispositif expérimental pour interférométrie temporelle*

Le signal obtenu en faisant varier le retard τ s'écrit

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

$$= \int (E(t)^2 + E_0(t)^2) dt + 2\int E(t)E_0(t-\tau)dt \tag{5.45}$$

On constate que seule la seconde intégrale dépend du retard τ, 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 τ.

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 τ fixe.

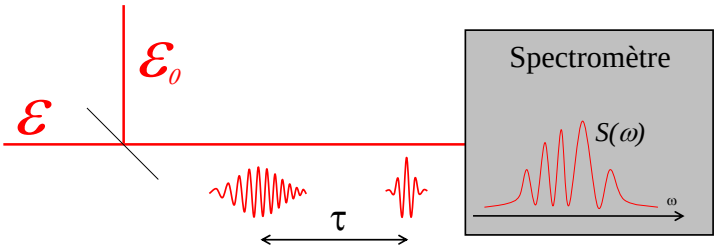


Figure 5.11: *Dispositif expérimental pour interférométrie spectrale*

Le signal détecté par le spectromètre s'écrit alors

$$S(\omega) = |E_0(\omega) + E(\omega)\exp(i\omega\tau)|^2 \tag{5.46}$$

où le facteur $\exp(i\omega\tau)$ a été introduit pour tenir compte du retard τ entre les deux impulsions. On obtient alors

$$S(\omega) = |E_0(\omega)|^2 + |E(\omega)|^2 + f(\omega)\exp(i\omega\tau) + f^*(\omega)\exp(-i\omega\tau) \tag{5.47}$$

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 inverse de l'éq. 5.47 s'écrit

$$S(t) = E_0(-t) \otimes E_0(t) + E(-t) \otimes E(t) + f(t-\tau) + f^*(-t-\tau) \tag{5.48}$$

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'intercorrélation entre les deux champs décalée du retard τ 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 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 recombinés 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.

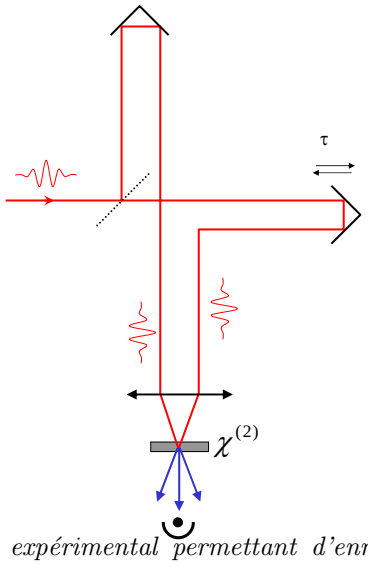


Figure 5.12: *Dispositif expérimental permettant d'enregistrer l'autocorrélation de l'intensité d'une impulsion brève.*

On engendre ainsi une polarisation non-linéaire dans ce cristal résultant de la superposition des deux champs $\mathcal{E}(t)\exp(i\vec{k}_1.\vec{r})$ et $\mathcal{E}(t-\tau)\exp(i\vec{k}_2.\vec{r})$, 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

$$\mathcal{P}^{(2)}(\vec{r},t) = \frac{\epsilon_0\chi^{(2)}}{2}\left(\mathcal{E}(t)\exp(i\vec{k}_1.\vec{r}) + \mathcal{E}(t-\tau)\exp(i\vec{k}_2.\vec{r})\right)^2 \tag{5.49}$$

Cette polarisation comprend des termes en $\exp(2i\vec{k}_1.\vec{r})$ et $\exp(2i\vec{k}_2.\vec{r})$, 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 $\exp(i(\vec{k}_1+\vec{k}_2).\vec{r})$ 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

$$\mathcal{P}^{(2)}(\vec{r},t) = \epsilon_0\chi^{(2)}\mathcal{E}(t)\mathcal{E}(t-\tau)\exp(i(\vec{k}_1+\vec{k}_2).\vec{r}) \tag{5.50}$$

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 τ s'écrit alors

$$S(\tau) = \int I(t)I(t-\tau)dt \tag{5.51}$$

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

$$S_0 = \int S(\tau)d\tau = \int\int I(t)I(t-\tau)dtd\tau = \left(\int I(t)dt\right)^2 \tag{5.52}$$

La fonction $s(\tau)$ est paire donc $\langle\tau\rangle = 0$. Par ailleurs

$$\langle\tau^2\rangle = \int \tau^2 s(\tau)d\tau = \frac{1}{S_0}\int\int \tau^2 I(t)I(t-\tau)dtd\tau \tag{5.53}$$

En posant $t' = t - \tau$ et donc $\tau^2 = (t-t')^2 = t^2 + t'^2 + 2tt'$, on obtient

$$\langle\tau^2\rangle = \frac{1}{S_0}\int\int (t^2 + t'^2 - 2tt')I(t)I(t')dtdt' \tag{5.54}$$

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

$$\Delta\tau = \sqrt{2}\Delta t \tag{5.55}$$

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

$$S(\omega,\tau) = \left| \int E(t)E(t-\tau)\exp(i\omega t)dt \right|^2 \tag{5.56}$$

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 ω_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 ω_1 vers les hautes fréquences. Une seconde réplique de l'impulsion courte décalée temporellement sélectionne une fréquence pure ω_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 de cette réponse percusionnelle, soit la fonction $\chi^{(n)}(\omega_1, ..., \omega_n)$ 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 spécifié. 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 évènements 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-excitable. 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 τ 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 τ peut être varié en déplaçant une ligne à retard optique à l'aide d'une platine à translation micrométrique.

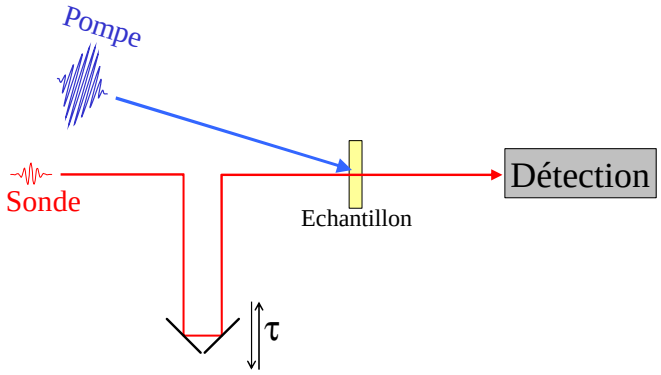


Figure 6.1: *Expérience pompe-sonde*

Compte tenu de la valeur de la vitesse de la lumière, un déplacement de 0.15 μm 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

$$I(\omega) = |\mathcal{E}_T(\omega) + \Delta\mathcal{E}_R(\omega)|^2 \approx I_0(\omega) + 2\mathrm{Re}\mathcal{E}_\mathrm{T}^*(\omega)\Delta\mathcal{E}_\mathrm{R}(\omega) \tag{6.1}$$

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

$$\frac{\Delta I(\omega)}{I_0(\omega)} = \frac{I(\omega) - I_0(\omega)}{I_0(\omega)} = \frac{2\mathrm{Re}\mathcal{E}_\mathrm{T}^*(\omega)\Delta\mathcal{E}_\mathrm{R}(\omega)}{|\mathcal{E}_0(\omega)|^2} = 2\mathrm{Re}\frac{\Delta\mathcal{E}_\mathrm{R}(\omega)}{\mathcal{E}_\mathrm{T}(\omega)} \tag{6.2}$$

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

$$S = \int I(\omega)\frac{d\omega}{2\pi} \tag{6.3}$$

Le signal différentiel s'écrit alors

$$\Delta S = 2\int \mathrm{Re}\left(\mathcal{E}_\mathrm{T}^*(\omega)\Delta\mathcal{E}_\mathrm{R}(\omega)\right)\frac{\mathrm{d}\omega}{2\pi} = 2\int \mathrm{Re}\left(\mathcal{E}_\mathrm{T}^*(\mathrm{t})\Delta\mathcal{E}_\mathrm{R}(\mathrm{t})\right)\mathrm{dt} \tag{6.4}$$

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

$$E(\vec{r},t) = \frac{1}{2}\left(\mathcal{E}_S(\vec{r},t) + \mathcal{E}_P(\vec{r},t) + \mathcal{E}_S^*(\vec{r},t) + \mathcal{E}_P^*(\vec{r},t)\right) \tag{6.5}$$

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 :

$$P^{(n)}(\vec{r},t) = \epsilon_0 \int \frac{d\omega_1}{2\pi} ... \int \frac{d\omega_n}{2\pi} \chi^{(n)}(\omega_1,...,\omega_n) E(\vec{r},\omega_1)...E(\vec{r},\omega_n) \exp\left(-i(\omega_1+\omega_2+...+\omega_n)t\right) \tag{6.6}$$

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 [1]. 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 $\exp(i\vec{k}_S.\vec{r})$. 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 $\exp(i\vec{k}_S.\vec{r})$ 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

[1] 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

$$\mathcal{P}_{ps}^{(3)}(t) = \frac{3\epsilon_0}{2}\int \chi^{(3)}(\omega_1,\omega_2,-\omega_3)\mathcal{E}_S(\omega_1)\mathcal{E}_P(\omega_2)\mathcal{E}_P^*(\omega_3)\exp\left(-i(\omega_1+\omega_2-\omega_3)t\right)\frac{d\omega_1}{2\pi}\frac{d\omega_2}{2\pi}\frac{d\omega_3}{2\pi} \quad (6.7)$$

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 $\Delta kL \ll 1$, 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

$$\frac{\partial \mathcal{A}_{ps}^{(3)}}{\partial z} = \frac{i\omega}{2n(\omega)\epsilon_0 c}\mathcal{P}_{ps}^{(3)}(\omega) \tag{6.11}$$

où $\mathcal{P}_{ps}^{(3)}(\omega)$ est la polarisation non-linéaire à l'entrée de l'échantillon, obtenue par transformée de Fourier de l'éq. 6.7. Le membre de droite de l'équation ci-dessus étant indépendant de z, on en déduit

$$\mathcal{A}_{ps}^{(3)}(L,\omega) = \frac{i\omega L}{2n(\omega)\epsilon_0 c}\mathcal{P}_{ps}^{(3)}(\omega) \tag{6.12}$$

On en déduit la variation de champ rayonné au troisième ordre de la théorie des perturbations

$$\Delta\mathcal{E}_R(\omega) = \mathcal{A}_{ps}^{(3)}(L,\omega)\exp(ik_S(\omega)L) = \frac{i\omega L}{2n(\omega)\epsilon_0 c}\mathcal{P}_{ps}^{(3)}(\omega)\exp(ik_S(\omega)L) \tag{6.13}$$

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

$$\frac{\Delta T}{T} = -\frac{\omega L}{n(\omega)\epsilon_0 c}\mathrm{Im}\left(\frac{\mathcal{P}_{\mathrm{ps}}^{(3)}(\omega)}{\mathcal{E}_{\mathrm{S}}(\omega)}\right) \tag{6.14}$$

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 τ 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 $\chi^{(n)}(\omega_1, ...\omega_n)$ par une transformée de Fourier 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

$$\mathcal{P}^{(3)}_{\bar{1}23}(t) = \frac{6\epsilon_0}{4} \int\int\int \chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) \mathcal{E}_1^*(-\omega_1) \mathcal{E}_2(\omega_2) \exp(i\omega_2\tau_2) \mathcal{E}_3(\omega_3) \exp(i\omega_3\tau_3) \exp(-i(\omega_1+\omega_2+\omega_3)t) \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi} \frac{d\omega_3}{2\pi} \tag{6.15}$$

Supposons que l'on mesure en fonction du temps t et des retards τ_2 et τ_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 tri-dimensionnelle par rapport aux variables t, τ_2 et τ_3 donnera alors directement accès à la grandeur

$$\chi^{(3)}(\omega - \omega_2 - \omega_3, \omega_2, \omega_3) \mathcal{E}_1^*(-\omega + \omega_2 + \omega_3) \mathcal{E}_2(\omega_2) \mathcal{E}_3(\omega_3) \tag{6.16}$$

où ω, ω_2 et ω_3 sont les variables conjuguées par transformée de Fourier de t, τ_2 et τ_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 implusion 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 $\rho_{nn}^{(2)}$. 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

$$\rho_{nn}^{(2)}(t) = \sum_l G_{nn}(t) \otimes \Big(E_j(t) \Big(\mu_{nl}^j \mu_{ln}^k (\rho_{nn}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) G_{ln}(t) \otimes E_k(t) - \mu_{ln}^j \mu_{nl}^k (\rho_{ll}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) G_{nl}(t) \otimes E_k(t) \Big) \Big) \tag{6.17}$$

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, $\vec{E}(t) = E(t)\vec{\epsilon}$. Appelons $\hat{\mu} = \hat{\vec{\mu}}.\vec{\epsilon}$ l'opérateur dipôle électrique selon cet axe. D'après l'éq. 2.30, le terme de cohérence s'écrit à l'ordre 1

$$\rho_{eg}^{(1)}(t) = \mu_{eg} G_{eg}(t) \otimes E(t) \tag{6.18}$$

A l'ordre deux, l'éq. 6.17 devient

$$\begin{aligned} \rho_{ee}^{(2)}(t) &= -|\mu_{eg}|^2 G_{ee}(t) \otimes (E(t) ((G_{eg}(t) - G_{ge}(t)) \otimes E(t))) \\ &= -|\mu_{eg}|^2 G_{ee}(t) \otimes (E(t) (G_{eg}(t) \otimes E(t))) + c.c. \end{aligned} \tag{6.19}$$

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

$$\begin{aligned} \rho_{ee}^{(2)}(+\infty) &= -\frac{i|\mu_{eg}|^2}{\hbar} \left[\Theta(t) \otimes (E(t) ((G_{eg}(t) - G_{ge}(t)) \otimes E(t)))\right](t = +\infty) \\ &= -\frac{i|\mu_{eg}|^2}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) ((G_{eg}(t) - G_{ge}(t)) \otimes E(t)) \\ &= -\frac{i|\mu_{eg}|^2}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} E^*(\omega)(G_{eg}(\omega) - G_{ge}(\omega))E(\omega) \end{aligned} \tag{6.20}$$

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

$$\rho_{ee}^{(2)}(+\infty) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \alpha(\omega) |E(\omega)|^2 \tag{6.21}$$

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 $\mathcal{E}(t)$:

$$\rho_{eg}^{(1)}(t) = \frac{\mu_{eg} G_{eg}(\omega_0)}{2}\mathcal{E}(t) \tag{6.22}$$

On en déduit à l'ordre deux

$$\rho_{ee}^{(2)}(t) = -\frac{|\mu_{eg}|^2}{4} G_{eg}(\omega_0) G_{ee}(t) \otimes |\mathcal{E}(t)|^2 + c.c. \tag{6.23}$$

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:

$$\rho_{ee}^{(2)}(t) \propto \int_{-\infty}^{t} |\mathcal{E}(t')|^2 dt' \tag{6.24}$$

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

$$G_{eg}(t) \otimes \mathcal{E}(t) \quad = \quad \frac{i}{\hbar}\int_{-\infty}^{+\infty} dt' \Theta(t-t')\exp(-i\omega_{eg}(t-t'))\mathcal{E}(t')$$

$$= \frac{i}{\hbar}\exp(-i\omega_{eg}t)\int_{-\infty}^{t}\mathcal{E}(t')\exp(i\omega_{eg}t')dt' \tag{6.25}$$

La population dans l'état excité (éq. 6.19) devient alors

$$\begin{aligned}\rho_{ee}^{(2)}(t) &= -\left(\frac{i|\mu_{eg}|}{2\hbar}\right)^2\int_{-\infty}^{t}dt'\mathcal{E}^*(t')\exp(-i\omega_{eg}t')\int_{-\infty}^{t'}dt''\mathcal{E}(t'')\exp(i\omega_{eg}t'')+c.c.\\ &= +\frac{|\mu_{eg}|^2}{4\hbar^2}\int_{-\infty}^{t}dt'f(t')^*\int_{-\infty}^{t'}dt''f(t'')+c.c.\end{aligned} \tag{6.26}$$

où $f(t)=\mathcal{E}(t)\exp(i\omega_{eg}t)$. On peut transformer l'intégrale double de la manière suivante

$$\begin{aligned}\int_{-\infty}^{t}dt'f(t')^*\int_{-\infty}^{t'}dt''f(t'')+c.c. &= \int_{-\infty}^{t}\frac{d}{dt'}\left|\int_{-\infty}^{t'}dt''f(t'')\right|^2dt'\\ &= \left[\left|\int_{-\infty}^{t'}dt''f(t'')\right|^2\right]_{-\infty}^{t}\\ &= \left|\int_{-\infty}^{t}dt'f(t')\right|^2\end{aligned} \tag{6.27}$$

On obtient alors

$$\rho_{ee}^{(2)}(t)=\left|\frac{\mu_{eg}}{2\hbar}\int_{-\infty}^{t}\mathcal{E}(t)\exp(i\omega_{eg}t')dt'\right|^2 \tag{6.28}$$

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.

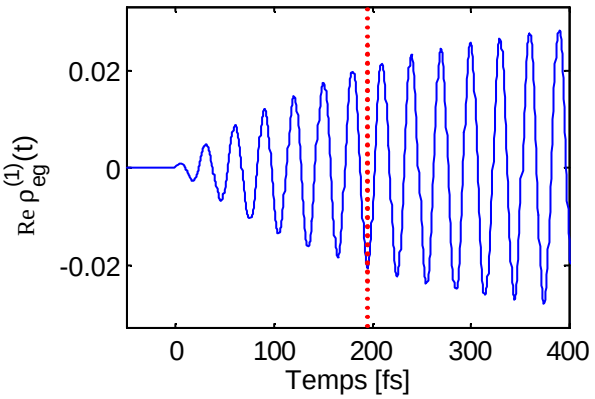


Figure 6.2: *Cohérence induite au premier ordre dans un système à deux niveaux excité par une impulsion résonnante de forme rectangulaire et de durée 2 ps.* $T_1 = T_2 = 200$fs. $2\pi/\omega_{eg} = 30$fs

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,

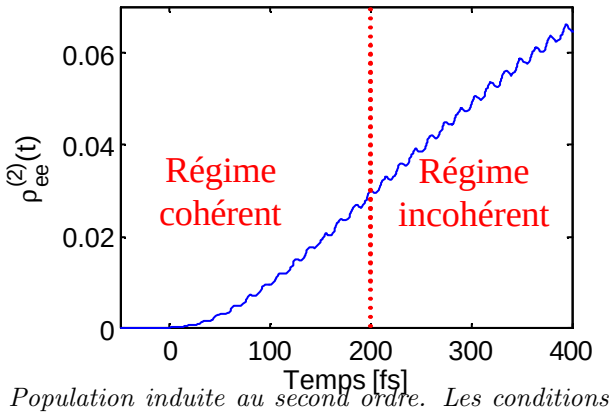


Figure 6.3: *Population induite au second ordre. Les conditions sont les mêmes que pour la Fig. 6.2. On peut noter des oscillations de période égale à 15 fs, soit la moitié de la période optique, correspondant à la contribution de la composante complexe du champ tournant dans le mauvais sens. L'approximation RWA consiste à négliger ces oscillations dont on peut vérifier sur ce calcul numérique qu'elles sont effectivement de faible amplitude.*

lorsque $t > T_2$.

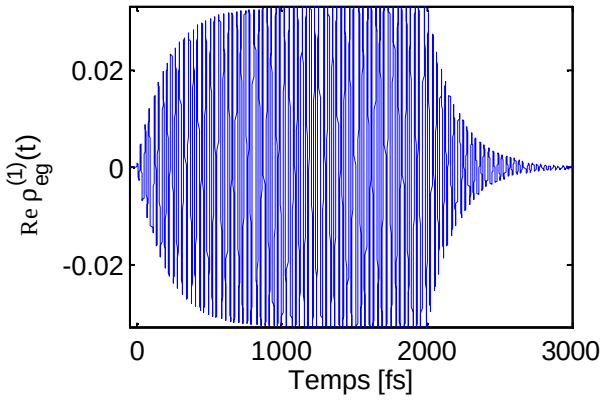


Figure 6.4: *Même grandeur que pour la Fig. 6.2 mais sur une autre échelle de temps.*

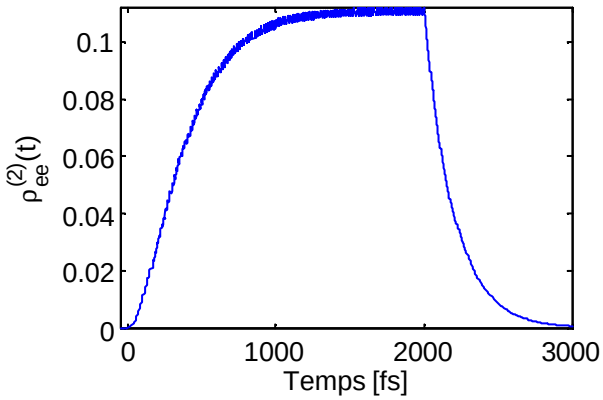


Figure 6.5: *Même grandeur que pour la Fig. 6.3 mais sur une autre échelle de temps.*

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 ω est définie ici par

$$f(t) = \mathcal{F}\left[f(\omega)\right](t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(\omega)\exp(-i\omega t)\frac{d\omega}{2\pi}. \tag{A.1}$$

La transformée de Fourier du complexe conjugué s'écrit

$$\mathcal{F}\left[f^*(\omega)\right](t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f^*(\omega)\exp(-i\omega t)\frac{d\omega}{2\pi} = f^*(-t). \tag{A.2}$$

La transformée de Fourier inverse s'écrit alors

$$f(\omega) = \mathcal{F}^{-1}\left[f(t)\right](\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t)\exp(i\omega t)dt. \tag{A.3}$$

On a alors

$$\mathcal{F}^{-1}\left[f^*(t)\right](\omega) = f^*(-\omega). \tag{A.4}$$

Le facteur 2π 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 ω.

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) :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} f^*(t)g(t)dt = \int_{-\infty}^{+\infty} f^*(\omega)g(\omega)\frac{d\omega}{2\pi} \tag{A.5}$$

Les transformées de Fourier des dérivées s'écrivent

$$\mathcal{F}^{-1}\frac{d^n f(t)}{dt^n} = (-i\omega)^n f(\omega) \tag{A.6}$$

$$\mathcal{F}\frac{d^n f(\omega)}{d\omega^n} = (it)^n f(t) \tag{A.7}$$

Soit $[f \otimes g](t)$ - également noté $f(t) \otimes g(t)$ - le produit de convolution défini par

$$[f \otimes g](t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t')g(t-t')dt' = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t-t')g(t')dt' \tag{A.8}$$

La transformée de Fourier du produit de convolution est le produit des transformées de Fourier

$$\mathcal{F}^{-1}\left[(f \otimes g)(t)\right] = f(\omega)g(\omega) \tag{A.9}$$

et

$$\mathcal{F}\left[(f \otimes g)(\omega)\right] = 2\pi f(t)g(t) \tag{A.10}$$

On en déduit les relations correspondantes sur les transformées de Fourier d'un produit

$$\mathcal{F}^{-1}\left[f(t)g(t)\right] = \frac{1}{2\pi}\left[f \otimes g\right](\omega) \tag{A.11}$$

$$\mathcal{F}\left[f(\omega)g(\omega)\right] = \left[f \otimes g\right](t) \tag{A.12}$$

A.3 Transformées de Fourier de fonctions et distributions usuelles

$f(t)$	$f(\omega)$
$\delta(t-t_0)$	$\exp(i\omega t_0)$
$\exp(-i\omega_0 t)$	$2\pi\delta(\omega-\omega_0)$
$\exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2}\right)$	$\tau\sqrt{2\pi}\exp\left(-\frac{\tau^2\omega^2}{2}\right)$
$\exp\left(i\frac{at^2}{2}\right)$	$e^{-i\pi/4}\sqrt{\frac{2\pi}{a}}\exp\left(-i\frac{\omega^2}{2a}\right)$
$\Theta(t)\exp\left(-i\omega_0 t-\Gamma t\right)$	$\frac{i}{\omega-\omega_0+i\Gamma}$

(A.13)

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

$$\begin{aligned}
f(\omega = 0) &= \int_{-\infty}^{+\infty} f(t)dt \\
&= \sqrt{\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} f(t)f(t')dtdt'} \\
&= \sqrt{\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{t^2+t'^2}{2\tau^2}\right)dtdt'} \\
&= \sqrt{\int_0^{+\infty} d\rho \int_0^{2\pi} \rho d\theta \exp\left(-\frac{\rho^2}{2\tau^2}\right)} \\
&= \sqrt{2\pi\left[-\tau^2\exp\left(-\frac{\rho^2}{2\tau^2}\right)\right]_0^{+\infty}} \\
&= \tau\sqrt{2\pi}
\end{aligned}$$

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 τ complexe, dès lors que les fonctions considérées sont de carré sommable, soit Re $\tau^2 > 0$. En fait, on peut constater que la relation ci-dessus admet une limite lorsque la partie réelle de τ tend vers zéro. En appelant i/a la partie imaginaire de τ^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:

$$\begin{aligned}\mathcal{F}^{-1}f(t) &= \int_{-\infty}^{+\infty}\Theta(t)\exp\left(i(\omega-\omega_0)t-\Gamma t\right)dt \\ &= \left[\frac{\exp\left(i(\omega-\omega_0)t-\Gamma t\right)}{i(\omega-\omega_0)-\Gamma}\right]_0^{+\infty} \\ &= \frac{-1}{i(\omega-\omega_0)-\Gamma} \\ &= \frac{i}{\omega-\omega_0+i\Gamma}\end{aligned}$$

On peut déduire des éq. A.9 et A.13 la relation utile

$$\mathcal{F}^{-1}f(t-t_0) = \mathcal{F}^{-1}\left[f(t)\otimes\delta(t-t_0)\right] = f(\omega)\exp(i\omega t_0) \tag{A.21}$$

De même, d'après les éq. A.11 et A.13

$$\mathcal{F}^{-1}\left[f(t)\exp(-i\omega_0 t)\right] = \frac{1}{2\pi}\left[f(\omega)\otimes 2\pi\delta(t-\omega_0)\right] = f(\omega-\omega_0) \tag{A.22}$$

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 :

$$\int_{-\infty}^{+\infty}|f(t)|^2dt = \int_{-\infty}^{+\infty}|f(\omega)|^2\frac{d\omega}{2\pi} = 1 \tag{A.23}$$

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 :

$$\langle u(t)\rangle = \int_{-\infty}^{+\infty}u(t)|f(t)|^2dt \tag{A.24}$$

$$\langle v(\omega)\rangle = \int_{-\infty}^{+\infty}v(\omega)|f(\omega)|^2\frac{d\omega}{2\pi} \tag{A.25}$$

Les écarts quadratiques moyens $\Delta t = \sqrt{<t^2>-<t>^2}$ et $\Delta\omega = \sqrt{<\omega^2>-<\omega>^2}$ obéissent alors à l'inégalité

$$\Delta t\Delta\omega \geq \frac{1}{2} \tag{A.26}$$

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

$$I(\lambda) = \int_{-\infty}^{+\infty} \left| tg(t) + \lambda g'(t) \right|^2 dt$$

Il s'agit d'un polynome d'ordre 2 en λ. Le coefficient constant de ce polynome s'écrit

$$\int_{-\infty}^{+\infty} |tg(t)|^2 \, dt = \Delta t^2$$

Le coefficient de λ s'écrit

$$\int_{-\infty}^{+\infty} t\left(g^*(t)g'(t) + g'^*(t)g(t)\right) dt = \int_{-\infty}^{+\infty} t\frac{d|g(t)|^2}{dt} dt = -\int_{-\infty}^{+\infty} |g(t)|^2 dt = -1$$

où l'on a effectué une intégration par parties et utilisé le fait que $|g(t)|^2 \to 0$ lorsque $t \to \infty$. Enfin, le coefficient de λ^2 s'écrit

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \left| g'(t) \right|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} |-i\omega g(\omega)|^2 \, \frac{d\omega}{2\pi} = \Delta\omega^2$$

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

$$g(t) = e^{i\varphi_0} \left(2\pi\Delta t^2\right)^{-\frac{1}{4}} \exp\left(-\frac{t^2}{4\Delta t^2}\right)$$

où φ_0 est un facteur de phase arbitraire. L'espression la plus générale pour la fonction $f(t)$ est donc

$$f(t) = e^{i\varphi_0} \left(2\pi\Delta t^2\right)^{-\frac{1}{4}} \exp\left(-\frac{(t-t_0)^2}{4\Delta t^2}\right) \exp(-i\omega_0(t-t_0)) \tag{A.27}$$

Il s'agit d'une fonction d'enveloppe gaussienne centrée à l'instant t_0 et de fréquence porteuse ω_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 (Δt 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 $\langle t \rangle$:

$$\begin{aligned}
\langle t \rangle &= \int_{-\infty}^{+\infty} t|f(t)|^2 dt = -i\int_{-\infty}^{+\infty} f^*(t) it f(t) dt = -i\int_{-\infty}^{+\infty} f^*(\omega) f'(\omega) \frac{d\omega}{2\pi} \\
&= -i\int_{-\infty}^{+\infty} |f(\omega)| \frac{d|f(\omega)|}{d\omega} \frac{d\omega}{2\pi} + \int_{-\infty}^{+\infty} \varphi'(\omega)|f(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \\
&= -i\left[\frac{1}{2}|f(\omega)|^2\right]_{-\infty}^{+\infty} + \langle \varphi'(\omega) \rangle
\end{aligned}$$

On en déduit la relation suivante

$$\langle t \rangle = \left\langle \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega} \right\rangle \tag{A.28}$$

qui généralise l'éq. A.21 au cas d'une phase spectrale de forme quelconque. Plus généralement, la quantité

$$\tau_g(\omega) = \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega} \tag{A.29}$$

est appelée le **retard de goupe**. Ce dernier correspond à l'instant d'arrivée d'une composante spectrale ω 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 :

$$\begin{aligned} \langle t^2 \rangle &= \int_{-\infty}^{+\infty} t^2 |f(t)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} |itf(t)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} |f'(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \\ &= \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{d|f(\omega)|}{d\omega} \right)^2 \frac{d\omega}{2\pi} + \int_{-\infty}^{+\infty} \varphi'(\omega)^2 |f(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \\ &= \left\langle t^2 \right\rangle_{\varphi=0} + \langle \varphi'(\omega)^2 \rangle \end{aligned} \tag{A.30}$$

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

$$\Delta t^2 = \Delta t^2_{\varphi=0} + \Delta \tau_g^2 \tag{A.31}$$

où la variance du retard de groupe s'écrit

$$\Delta \tau_g^2 = \left\langle (\tau_g(\omega) - \langle \tau_g(\omega) \rangle)^2 \right\rangle = \left\langle \left(\frac{d\varphi(\omega)}{d\omega} \right)^2 \right\rangle - \left\langle \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega} \right\rangle^2$$

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 $\langle \omega \rangle$:

$$\langle \omega \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} \omega |f(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} = i \int_{-\infty}^{+\infty} f^*(\omega)(-i\omega f(\omega)) \frac{d\omega}{2\pi} = i \int_{-\infty}^{+\infty} f^*(t) f'(t) dt$$

$$
\begin{aligned}
&= i\int_{-\infty}^{+\infty} |f(t)|\frac{d|f(t)|}{dt}dt - \int_{-\infty}^{+\infty}\phi'(t)|f(t)|^2dt \\
&= i\left[\frac{1}{2}|f(t)|^2\right]_{-\infty}^{+\infty} - \langle\phi'(t)\rangle
\end{aligned}
$$

On en déduit la relation suivante

$$\langle\omega\rangle = -\left\langle\frac{d\phi(t)}{dt}\right\rangle \tag{A.32}$$

Plus généralement, la quantité

$$\Omega(t) = -\frac{d\phi(t)}{dt} \tag{A.33}$$

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

$$\phi(t) = -\int_{-\infty}^{t}\Omega(t')dt' \tag{A.34}$$

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

$$\Delta\omega^2 = \Delta\omega_{\phi=0}^2 + \Delta\Omega^2 \tag{A.35}$$

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

$$F(t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} C_n e^{-i\omega_n t} \tag{A.36}$$

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

$$\int_{-T/2}^{+T/2} e^{i\omega_m t}F(t)dt = \sum_{n=-\infty}^{+\infty}\int_{-T/2}^{+T/2} C_n e^{-i(\omega_n-\omega_m)t}dt = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} TC_n\delta_{nm} = TC_m \tag{A.37}$$

On en déduit donc

$$C_n = \frac{1}{T}\int_{-T/2}^{T/2} F(t)e^{i\omega_n t}dt \tag{A.38}$$

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

$$\Delta_T(t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(t - nT). \tag{A.39}$$

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

$$\Delta_T(t) = \frac{1}{T}\sum_{n=-\infty}^{+\infty} e^{-i2\pi nt/T} \tag{A.40}$$

On en déduit également l'expression de la transformée de Fourier inverse d'un peigne de Dirac

$$\mathcal{F}^{-1}\left[\Delta_T(t)\right](\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty}\sum_{n=-\infty}^{+\infty}\delta(t-nT)e^{i\omega t}dt = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} e^{i\omega nT} = \frac{2\pi}{T}\Delta_{2\pi/T}(\omega) \tag{A.41}$$

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

$$F(t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} f(t - nT) \tag{A.42}$$

ou encore

$$F(t) = \Delta_T(t) \otimes f(t) \tag{A.43}$$

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

$$F(\omega) = \frac{2\pi}{T}\Delta_{\frac{2\pi}{T}}(\omega)f(\omega) = \frac{2\pi}{T}\sum_{n=-\infty}^{+\infty} f(\omega_n)\delta(\omega - \omega_n) \tag{A.44}$$

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 ω_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 $n = 0, 1, 2, ..., N-1$, 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

$$G(t) = \Delta_{\frac{T}{N}}(t)F(t) = \Delta_{\frac{T}{N}}(t)\left(\Delta_T(t)\otimes f(t)\right) \tag{A.46}$$

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

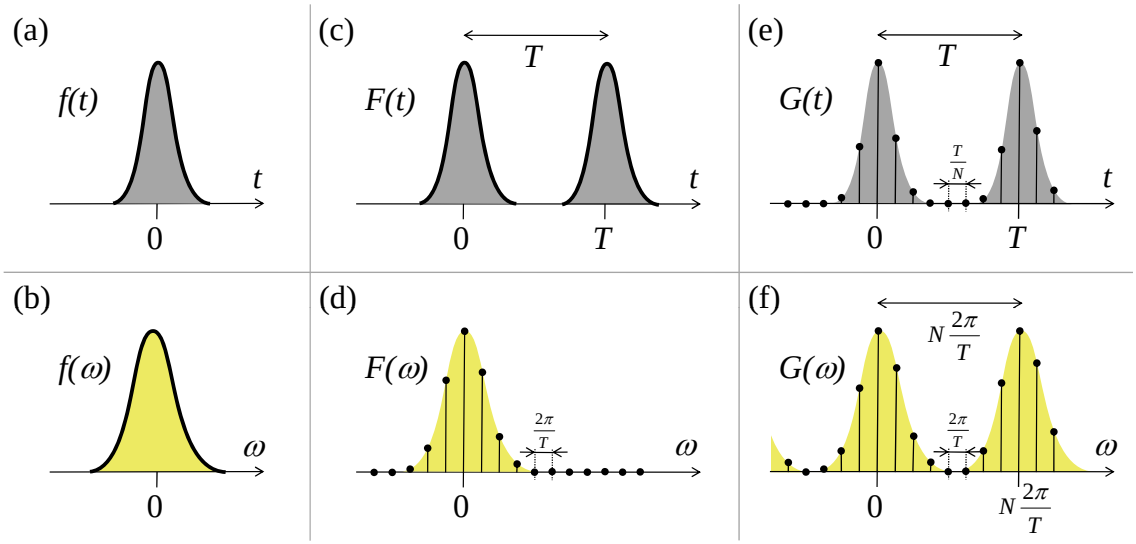


Figure A.1: *Passage de la transformée de Fourier à la transformée de Fourier discrète. On part d'une fonction $f(t)$ (a) et de sa transformée de Fourier inverse $f(\omega)$ (b). On construit ensuite une fonction périodique, $F(t)$, de période T (c), ce qui a pour effet de discrétiser la transformée 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 $n = 0, 1, 2, ..., N-1$.

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

$$2\omega_{\max} < \frac{2\pi}{\delta t} \tag{A.48}$$

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

$$a_n = f(\omega_n) \quad n = 0, 1, 2, ..., N-1 \tag{A.49}$$

$$b_k = f(t_k) \quad k = 0, 1, 2, ..., N-1 \tag{A.50}$$

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

$$G(t) = \sum_{k=0}^{N-1} b_k \Delta_T(t - t_k) \tag{A.51}$$

ou encore, dans l'espace des fréquences (d'après l'éq. A.47),

$$G(\omega) = \frac{2\pi N}{T^2} \sum_{n=0}^{N-1} a_n \Delta_{\frac{2\pi}{\delta t}}(\omega - \omega_n) \tag{A.52}$$

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

$$G(\omega) = \frac{2\pi}{T} \sum_{k=0}^{N-1} b_k \Delta_{\frac{2\pi}{T}}(\omega) \exp(i\omega t_k) \tag{A.53}$$

Par ailleurs, on peut écrire

$$\Delta_{\frac{2\pi}{T}}(\omega) = \sum_{n=0}^{N-1} \Delta_{\frac{2\pi}{\delta t}}(\omega - \omega_n) \tag{A.54}$$

On en déduit

$$G(\omega) = \frac{2\pi}{T} \sum_{n=0}^{N-1} \left(\sum_{k=0}^{N-1} b_k \exp(i\omega_n t_k) \right) \Delta_{\frac{2\pi}{\delta t}}(\omega - \omega_n) \tag{A.55}$$

où l'on a utilisé le fait que ωt_k est congru à $\omega_n t_k$ modulo 2π 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

$$a_n = T \frac{1}{N} \sum_{k=0}^{N-1} b_k \exp\left(i \frac{2\pi}{N} nk \right) \tag{A.56}$$

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

$$b_k = \frac{1}{T} \sum_{n=0}^{N-1} a_n \exp\left(-i \frac{2\pi}{N} nk \right) \tag{A.57}$$

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

$$X_k = \sum_{n=0}^{N-1} x_n \exp\left(-i\frac{2\pi}{N}nk\right) \tag{A.58}$$

$$x_n = \frac{1}{N}\sum_{k=0}^{N-1} X_k \exp\left(i\frac{2\pi}{N}nk\right) \tag{A.59}$$

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 éq. A.58 et A.59 donnerait lieu à un temps de calcul en N^2 (N sommes de N termes).

Enfin, remarquons que les éq. A.56 et A.57 peuvent également s'interpréter comme les expressions approximatives des éq. 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 ω qui correspond au spectre - en fonction de ω - 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

$$S(t,\omega) = \left| \int \mathcal{E}(t') g(t'-t) \exp(i\omega t') dt' \right|^2 \tag{B.1}$$

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

$$s(t,\omega) = \left| \int \mathcal{E}(\omega') h(\omega' - \omega) \exp(-i\omega' t) \frac{d\omega'}{2\pi} \right|^2 \tag{B.2}$$

Sonogramme et spectrogramme sont intimement liés. En effet,

$$\begin{aligned} s(t,\omega) &= \left| \int \left(\int \mathcal{E}(t') e^{i\omega' t'} dt' \right) h(\omega' - \omega) \exp(-i\omega' t) \frac{d\omega'}{2\pi} \right|^2 \\ &= \left| \int \mathcal{E}(t') \left(\int h(\omega' - \omega) \exp(i\omega'(t' - t)) \frac{d\omega'}{2\pi} \right) dt' \right|^2 \\ &= \left| \int \mathcal{E}(t') h(t' - t) \exp(i\omega(t' - t)) dt' \right|^2 \\ &= \left| e^{-i\omega t} \int \mathcal{E}(t') h(t' - t) \exp(i\omega t') dt' \right|^2 \\ &= S(t,\omega) \end{aligned} \tag{B.3}$$

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

$$W(t,\omega) = \int \mathcal{E}^*(t - \frac{t'}{2}) \mathcal{E}(t + \frac{t'}{2}) \exp(i\omega t') dt' \tag{B.4}$$

$$= \int \mathcal{E}^*(\omega - \frac{\omega'}{2}) \mathcal{E}(\omega + \frac{\omega'}{2}) \exp(-i\omega' t) \frac{d\omega'}{2\pi} \tag{B.5}$$

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 :

$$\int W(t,\omega)dt = |\mathcal{E}(\omega)|^2 \tag{B.6}$$

De même,

$$\int W(t,\omega)\frac{d\omega}{2\pi} = |\mathcal{E}(t)|^2 \tag{B.7}$$

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 $f(t)$:

$$\mathcal{E}_2(t) = f(t)\mathcal{E}_1(t) \tag{B.8}$$

soit

$$\mathcal{E}_2(\omega) = \int f(\omega')\mathcal{E}_1(\omega-\omega')\frac{d\omega'}{2\pi} = \frac{1}{2\pi}f(\omega)\otimes\mathcal{E}_1(\omega) \tag{B.9}$$

On montre alors aisément que

$$W_2(t,\omega) = W_f(t,\omega)\otimes_\omega W_1(t,\omega) \tag{B.10}$$

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 $g(\omega)$.

$$\mathcal{E}_2(\omega) = g(\omega)\mathcal{E}_1(\omega) \tag{B.11}$$

On sait qu'un produit dans le domaine spectral correspond à un produit de convolution dans le domaine temporel

$$\mathcal{E}_2(t) = \int g(t')\mathcal{E}_1(t-t') = g(t)\otimes\mathcal{E}_1(t) \tag{B.12}$$

alors on montre

$$W_2(t,\omega) = W_g(t,\omega) \otimes_t W_1(t,\omega) \tag{B.13}$$

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

$$W_2(t',\omega) = W_g(t'-t,\omega) \otimes_\omega W(t',\omega) \tag{B.14}$$

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'

$$S(t,\omega) = \int W_g(t'-t,\omega) \otimes_\omega W(t',\omega)dt' = W_g(-t,\omega) \otimes W(t,\omega) \tag{B.15}$$

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) :

$$\mathcal{E}_2(\omega) = \mathcal{E}_1(\omega) \exp\left(i\frac{\varphi''}{2}(\omega-\omega_0)^2\right) \tag{B.16}$$

On appelle $\Delta\tau_g(\omega) = \varphi''\ (\omega-\omega_0)$ le retard de groupe correspondant à cette phase spectrale quadratique. On obtient alors

$$\begin{aligned}
W_2(t,\omega) &= \int \mathcal{E}_1^*(\omega-\frac{\omega'}{2})\mathcal{E}_1(\omega+\frac{\omega'}{2})e^{i\frac{\varphi''}{2}\left((\omega-\omega_0+\frac{\omega'}{2})^2-(\omega-\omega_0-\frac{\omega'}{2})\right)^2} \exp(-i\omega' t)\frac{d\omega'}{2\pi} \\
&= \int \mathcal{E}_1^*(\omega-\frac{\omega'}{2})\mathcal{E}_1(\omega+\frac{\omega'}{2}) \exp\left(i\varphi''(\omega-\omega_0)\omega'\right) \exp(-i\omega' t)\frac{d\omega'}{2\pi} \\
&= W_1(t-\varphi''(\omega-\omega_0),\omega) \\
&= W_1(t-\Delta\tau_g(\omega),\omega)
\end{aligned}$$

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 $\Delta t = 3600$s et $\Delta\omega/(2\pi) \approx 10$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.

Appendice C

Simulations numériques

Une utilisation pratique des concepts introduits dans ce cours d'optique non-linéaire implique naturellement la capacité de mener à bien des calculs numériques, par exemple lors de la conception d'un système optique concret. L'objet de cet appendice est de donner quelques exemples concrets d'applications ou de simulations numériques dans le cadre des conventions définies dans ce cours. On pourra certes utiliser le logiciel SNLO, disponible sur Internet (`http://www.as-photonics.com/SNLO/`) et qui permet d'obtenir sans douleur de nombreux résultats intéressants, mais on ne saurait trop insister sur l'intérêt pédagogique de faire soi-même ce type de calculs.

Dans de nombreux cas, il est naturellement nécessaire d'avoir recours à un langage de programmation permettant d'effectuer les simulations numériques requises. Nous avons retenu le langage Scilab, qui présente le double avantage d'être à la fois extrêmement puissant et librement disponible sur le site `http://www.scilab.org`. Une alternative qui n'a que la première de ces deux qualités est le langage Matlab, dont la syntaxe est très proche de celle de Scilab.

L'ensemble des fichiers scilab discutés dans cet appendice est disponible à l'adresse `http://www.enseignement.polytechnique.fr/profs/physique/Manuel.Joffre/onl/`.

C.1 Scilab : kit de survie

Le tableau ci-dessous regroupe quelques commandes utiles. On pourra naturellement consulter l'aide du logiciel ainsi que les liens `http://www.scilab.org/product/man/`, `http://www.scilab.org/publications/index_publications.php?page=freebooks` et `http://wiki.scilab.org/`. Signalons un piège classique à éviter : pour une multiplication terme à terme de deux vecteurs ou de deux matrices `m1` et `m2`, utiliser `m1 .* m2` car `m1 * m2` correspond à une multiplication matricielle.

Commande	**Objet**	**Exemple**
scf	Création d'une figure de numéro spécifié, ou définition de la figure spécifiée comme figure courante	scf(1)
clf	Efface la figure courante (à utiliser avant tout nouveau dessin sur une figure existante car par défaut les courbes successives sont superposées)	clf()
plot	Représentation graphique	plot(y) ou plot(x,y) ou plot(x,y,'r')
xlabel	Légende de l'axe des abscisses	xlabel('Axe des x')
ylabel	Légende de l'axe des ordonnées	ylabel('Axe des y')
xtitle	Titre du graphe	xtitle('Titre du graphe')
legend	Affichage d'une légende	legend['y=sin(x)' 'y=cos(x)'])
grayplot	Représentation d'un tableau 2D en fausses couleurs. Utiliser Sgrayplot pour un affichage plus joli (mais plus lent)	grayplot(x,y,z)
drawlater	Suspend la mise à jour immédiate du graphe (utile pour éviter le clignotement)	drawlater()
drawnow	Mise à jour du graphe (à utiliser après drawlater)	drawnow()
%pi	π	%pi
%i	$\sqrt{-1}$	%i
zeros	Création d'une matrice n × m constituées de 0	zeros(n,m) ou zeros(mat)
ones	Création d'une matrice n × m constituées de 1	ones(n,m) ou ones(mat)
length	Nombre d'éléments contenus dans un vecteur ou une matrice	length(x)
:	Permet d'accéder à une ligne ou une colonne d'une matrice	mat(:,1) = ones(n,1)
regress	Régression linéaire. Retourne un tableau coefs = [a b] où a et b sont les coefficients du fit linéaire a+b*x des données fournies	coefs = regress(x,y)

C.2 Bibliothèque de quelques fonctions utiles (femto.sci)

La bibliothèque femto.sci regroupe quelques fonctions utiles, avec notamment quelques fonctions comme xlim qui existent sous Matlab mais pas (encore) sous Scilab.

Commande	**Objet**	**Exemple**
angle	Calcul de l'argument d'un nombre complexe	angle(z)
unwrap	Suppression par continuité des sauts de 2 π dans un tableau de phases	unwrap(phi)
sqr	Prend le carré d'une grandeur	sqr(x)
heaviside	Fonction de Heaviside	heaviside(x)
inverse	Calcul de l'inverse d'un vecteur. Fonction utile car 1./x a l'inconvénient de transposer le vecteur, ce qui n'est pas le cas avec Matlab (probablement un bug de Scilab)	inverse(x)
xlim	Fixe les limites de l'axe des abscisses dans un graphe	xlim([0 10])
ylim	Fixe les limites de l'axe des ordonnées dans un graphe	ylim([-1 1])
setColorMap	Choix de l'échelle de fausse couleur utilisée, selon l'indice spécifié. 0 correspond à des niveaux de gris, 1 à une échelle variant du bleu au rouge.	setColorMap(1)
ft	Calcul de la transformée de Fourier d'un tableau, avec recentrage (fftshift) dans les deux espaces conjugués par transformée de Fourier	y = ft(x)
ift	Calcul de la transformée de Fourier inverse d'un tableau, avec recentrage (fftshift) dans les deux espaces conjugués par transformée de Fourier	x = ift(y)
ftAxis	Création de deux tableaux (fréquence et temps) calibrés l'un par rapport à l'autre pour une utilisation avec la transformée de Fourier	[nu, t] = ftAxis(nPoints,nuMax)
indice	Calcul de l'indice de réfraction d'un matériau isotrope ou uniaxe en fonction de la longueur d'onde exprimée en microns	[no, ne] = indice('BBO',lambda)
csvread	Lecture d'un fichier ascii au format csv (comma separated values)	data = csvread('CaF2.txt')

```
// ************************************************************************
//    Bibliothèque sommaire pour la manipulation d'impulsions femtosecondes
// ************************************************************************

clear();    // Pas indispensable met permet d'éviter le message :
            //         Warning : redefining function
            // à chaque fois que l'on recharge le programme.

// Modification des limites de l'axe des abscisses d'un graphe
// Doit être appelé juste après plot
// Directement disponible dans Matlab
function xlim(x)
  ax = gca();
  ax.data_bounds(1,1) = x(1);
  ax.data_bounds(2,1) = x(2);
endfunction;

// Modification des limites de l'axe des ordonnées d'un graphe
// Doit être appelé juste après plot
// Directement disponible dans Matlab
function ylim(y)
  ax = gca();
  ax.data_bounds(1,2) = y(1);
  ax.data_bounds(2,2) = y(2);
endfunction;

// Phase (en radians) d'un nombre complexe
// Directement disponible dans Matlab
function result = angle(z)
  z = z + bool2s(z==0); // Pour ajouter 1 et éviter une erreur pour z=0.
  result = atan(imag(z),real(z))
endfunction;

// Supprime par continuité les sauts de 2pi dans un tableau de phases
// Directement disponible dans Matlab
function result = unwrap(phi)
  result = phi - [0 2*%pi*cumsum(floor(.5+diff(phi)/2/%pi))];
endfunction;

// Prend l'inverse d'un vecteur
// Dans Scilab, si x est une matrice n x 1, 1./x donne une matrice 1 x n
// Cela ressemble bien à un bug. Ce n'est pas le cas dans Matlab
// Il est donc recommandé de faire inverse(x) plutôt que 1./x.
function result = inverse(x)
  result = ones(x)./x;
endfunction;

// Prend le carré d'une grandeur (plus rapide que .^2)
function result = sqr(x)
  result = x .* x;
endfunction;

// Fonction de Heaviside
function result = heaviside(x)
  // (x>0) est un tableau de boolean, transformé en 0 ou 1 à l'aide de bool2s
  result = bool2s(x>0);
endfunction;

// Ecart quadratique d'une grandeur x pondérée par l'amplitude de probabilité field
function result = ecartQuad(x,field)
  n2 = sum(sqr(abs(field)));
  xMoy = sum(x.*sqr(abs(field)))/n2;
```

```
  x2Moy = sum(x.*x.*sqr(abs(field)))/n2;
  result = sqrt(x2Moy-sqr(xMoy));
endfunction;

// Choix de l'échelle de couleur utilisée pour les représentations en fausses couleurs
// 0 pour niveaux de gris, 1 pour jetcolormap
function setColorMap(i)
  hcf = gcf();
  select i
    case 0 then
      hcf.color_map = graycolormap(256);
    case 1 then
      hcf.color_map = jetcolormap(256);
  end;
endfunction;

// Lecture d'un fichier ascii au format csv (comma separated values)
function result = csvread(fileName)
  fd = mopen(fileName);
  str = mgetl(fd);
  [n dummy] = size(str); // n est le nombre de lignes
  [m dummy] = size(tokens(str(1),","")); // m est le nombre de colonnes
  for i=1:n
    line = tokens(str(i),",");
    for j=1:m
      result(i,j) = sscanf(line(j),"%e");
    end;
  end;
  mclose(fd);
endfunction;

// Transformée de Fourier avec rotation pour centrer la fréquence nulle
function result = ft(data)
  result = fftshift(fft(fftshift(data)));
endfunction;

// Transformée de Fourier inverse avec rotation pour centrer la fréquence nulle
function result = ift(data)
  result = fftshift(ifft(fftshift(data)));
endfunction;

// ftAxis
// Création de deux tableaux (fréquence et temps) calibrés l'un par rapport à l'autre pour
// une FFT. L'espacement entre deux points de fréquence est l'inverse de la largeur totale
// dans l'espace des temps. Inversement, l'espacement entre deux points de temps est l'inverse
// de la largeur totale en fréquence.
// Les axes de fréquence et de temps sont supposés centré sur zéro
//
// nPoints : Nombre de points (de préférence une puissance de 2)
// nuMax   : Valeur maximale de la fréquence (ie moitié de la largeur totale)
// nu : Axe des fréquences. Le point d'indice nPoints/2 vaut toujours zéro
// t  : Axe des temps. Le point d'indice nPoints/2 vaut toujours zéro
function [nu, t] = ftAxis(nPoints, nuMax)
  deltaNu = 2*nuMax/nPoints;
  deltaT = 1/(2*nuMax);
  nu = -nuMax:2*nuMax/nPoints:nuMax-(2*nuMax/nPoints);
  t = -nPoints/2*deltaT:deltaT:(nPoints/2-1)*deltaT;
endfunction;

// Formule de Sellmeier pour le calcul de l'indice de réfraction
// n^2 = 1 + B1/(1-C1/lambda^2) + B2/(1-C2/lambda^2) + B3/(1-C3/lambda^2)
// lambda s'exprime en microns
```

```
function result = sellmeier(lambda,b1,b2,b3,c1,c2,c3)
  lm2 = lambda.^-2;
  result = sqrt(1+b1./(1-c1*lm2)+b2./(1-c2*lm2)+b3./(1-c3*lm2));
endfunction;

// Indices ordinaire et extraordinaire de quelques matériaux courants
// La longueur d'onde lambda s'exprime en microns
function [no, ne] = indice(cristal,lambda)
  lambda2 = sqr(lambda);
  select cristal
    case 'BBO' then
      no = sqrt(2.7405+.0184./(lambda2-.0179)-.0155 *lambda2);
      ne = sqrt(2.3730+.0128./(lambda2-.0156)-.0044 *lambda2);
    case 'KDP' then
      no = sqrt(2.259276 + 0.01008956./(lambda2 - 0.012942625) ...
                         + 13.005522*lambda2./(lambda2 - 400));
      ne = sqrt(2.132668 + 0.008637494./(lambda2 - 0.012281043) ...
                         + 3.2279924*lambda2./(lambda2 - 400));
    case 'SiO2' then
      // http://cvilaser.com/Common/PDFs/Dispersion_Equations.pdf
      no = sellmeir(lambda,.6961663,.4079426,.8974794,4.67914826E-3,1.35120631E-2,9.79340025E1);
      ne = no;
    case 'CaF2' then
      // http://www.us.schott.com/lithotec/english/download/caf2_june_2006_final_us.pdf
      no = sellmeier(lambda,.6188140,.4198937,3.426299,2.759866E-3,1.061251E-2,1.068123E3);
//      no = sellmeier(lambda,.567588800,.471091400,3.84847230,.00252642999,.0100783328,1200.55597);
      ne = no;
    else
      no = 1; ne = 1;
  end;
endfunction;

// Indice extraordinaire effectif pour un angle theta donné
function result = neTheta(cristal, theta, lambda)
  [no, ne] = indice(cristal, lambda);
  result = (sqr(cos(theta)./no)+sqr(sin(theta)./ne)).^(-.5);
endfunction;

// Initialisation des paramètres par défaut des représentations graphiques
hda = gda();               // Handle du repère par défaut (default axes)
hda.font_size = 3;         // Augmente la taille de police des axes
hda.title.font_size = 3;   // Augmente la taille du titre
hda.x_label.font_size = 3; // Axe des x
hda.y_label.font_size = 3; // Axe des y
// Pour projection ou figure article, utiliser paramètres ci-dessous
hda.font_size = 4;         // Augmente la taille de police des axes
hda.thickness = 2;         // Epaisseur par défaut des lignes
```

C.3 Exercices

C.3.1 Effet d'une phase spectrale linéaire, quadratique ou cubique

Objectif

Il s'agit de représenter, dans le domaine temporel et dans le domaine spectral, le champ électrique associé à une impulsion gaussienne pour différents types de phase spectrale. On appelle Δt la durée RMS de l'intensité temporelle $I(t) = |\mathcal{E}(t)|^2$. On rappelle que, pour une impulsion de forme

gaussienne, la durée à mi-hauteur de l'intensité temporelle, $\Delta t_{1/2}$, est reliée à la durée RMS, Δt, par la relation $\Delta t_{1/2} = \sqrt{8 \ln 2} \Delta t$. Le champ pour une impulsion gaussienne s'écrit donc

$$\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_0 \exp\left(-i\omega_0 t - \frac{t^2}{4\Delta t^2}\right) \tag{C.1}$$

On pourra calculer le champ associé à une impulsion de durée 10 fs et de longueur d'onde centrale 800 nm, que l'on représentera dans l'espace des temps puis dans l'espace des fréquences. On examinera l'effet d'une phase spectrale linéaire, quadratique ou cubique sur le profil temporel et également sur le spectre obtenu par doublage de fréquence.

Code source (pulse.sci)

```
// Représentation d'une impulsion femtoseconde
// Spectre gaussien
// Système d'unités : ps, THz et microns

exec('femto.sci');

// Paramètres
nPoints = 4096;
[nu,t] = ftAxis(nPoints,2000);
fs = .001;   // 1 fs exprimée en ps
t_fs = t/fs; // Axe des temps en fs
omega = (2*%pi)*nu;
speedLight = 300000; // Vitesse de la lumière en nm par ps.
// Paramètres de l'impulsion
lambda0 = 800;    // Longueur d'onde centrale en nm
nu0 = speedLight/lambda0;  // Fréquence centrale
omega0 = (2*%pi)*nu0;
deltaT = 5 * fs / sqrt(8*log(2)); // 10 fs
tau = -50*fs;
phi2 = 100*fs^2;
phi3 = 500*fs^3;

field_t = exp(-sqr(t)/4/sqr(deltaT)).*exp(-%i*omega0*t);
field_nu = ift(field_t);

// Phase linéaire
field_nu1 = field_nu.*exp(-%i*omega*tau);
field_t1 = ft(field_nu1);
// Phase quadratique
field_nu2 = field_nu.*exp(%i*.5*phi2*(omega-omega0).^2);
field_t2 = ft(field_nu2);
// Phase cubique
field_nu3 = field_nu.*exp(%i*omega*tau+%i/6*phi3*(omega-omega0).^3);
field_t3 = ft(field_nu3);
legendString = ['phi1 = -50 fs' 'phi2 = 100 fs2' 'phi3 = 500 fs3'];

// Intensité temporelle
scf(1); clf();
plot(t_fs,sqr(abs(field_t1)));
plot(t_fs,sqr(abs(field_t2)),'r');
```

```
plot(t_fs,sqr(abs(field_t3)),'g');
xlim([-200 300]);
xlabel('Temps [fs]');
ylabel('Intensité temporelle');
xtitle('Impulsion gaussienne pour diverses phases spectrales');
legend(legendString);

// Champ électrique
scf(2); clf();
plot(t_fs,real(field_t1));
plot(t_fs,real(field_t2),'r');
plot(t_fs,real(field_t3),'g');
xlim([-200 300]);
xlabel('Temps [fs]');
ylabel('Champ électrique');
xtitle('Impulsion gaussienne pour diverses phases spectrales');
legend(legendString);

// Spectre
scf(3); clf();
plot(nu,sqr(abs(field_nu)));
xlim([300 450]);
xlabel('Fréquence [THz]');
ylabel('Intensité spectrale');

// Spectre du champ doublé
scf(4); clf();
plot(nu,sqr(abs(ift(sqr(field_t1)))));
plot(nu,sqr(abs(ift(sqr(field_t2)))),'r');
plot(nu,sqr(abs(ift(sqr(field_t3)))),'g');
xlim([600 900]);
xlabel('Fréquence [THz]');
ylabel('Intensité spectrale');
xtitle('Spectre doublé pour diverses phases spectrales');
legend(legendString);
```

Discussion

On observe comme prévu qu'une phase linéaire décale l'impulsion (avec une périodisation pour des pentes trop importantes) et qu'une phase quadratique produit un étalement. La phase cubique provoque une asymétrie du profil temporel et des oscillations dues au battement entre les deux composantes spectrales arrivant simultanément (une phase spectrale cubique correspond à un retard de groupe quadratique ce qui signifie qu'il y a deux composantes spectrales symétriques par rapport à la fréquence centrale qui arrivent simultanément).

Dans le cas du doublage de fréquence, on observe qu'une phase quadratique atténue le spectre doublé (en raison de la plus grande durée de l'impulsion). Pour une phase cubique, le spectre doublé est plus étroit mais atteint la même valeur que pour une impulsion limitée par transformée de Fourier au point d'antisymétrie (D. Meshulach et Y. Silberberg, Nature **396**, 239 (1998)).

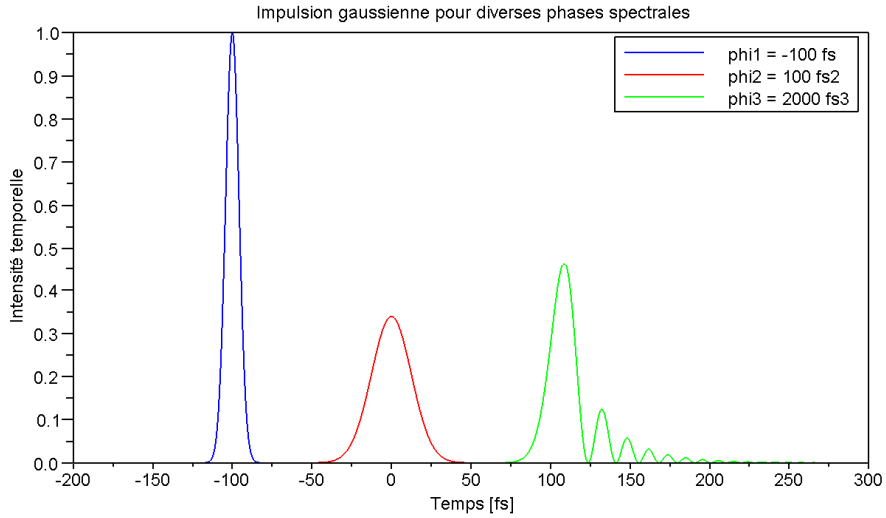


Figure C.1: *Effet de la phase spectrale sur le profil temporel*

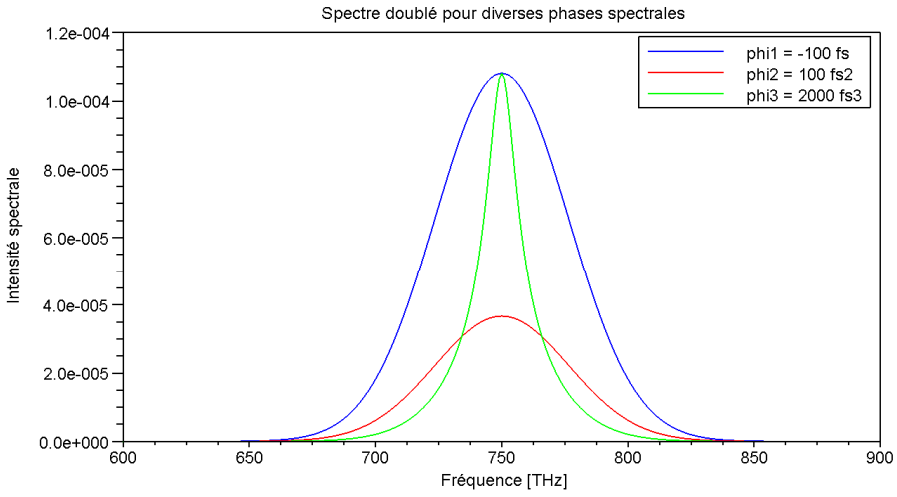


Figure C.2: *Effet de la phase spectrale sur le spectre doublé*

C.3.2 Propagation linéaire d'une impulsion courte

Objectif

Il s'agit de représenter le champ électrique associé à une impulsion courte dans un référentiel se propageant à la vitesse de groupe de l'impulsion, dans le cas d'un matériau linéaire dispersif.

On rappelle que la dépendance en z de la phase spectrale peut s'écrire

$$\varphi(z,\omega) = \varphi(0,\omega) + k_0 z + k_0'(\omega-\omega_0)z + \frac{1}{2}k_0''(\omega-\omega_0)^2 z \tag{C.2}$$

si l'on se limite à un développement au second ordre. On a $k_0 = n_\varphi\omega_0/c$ et $k_0' = n_g/c$ où n_φ et n_g sont respectivement l'indice de phase et l'indice de groupe à la fréquence centrale ω_0 de l'impulsion. On prendra les paramètres correspondant à une impulsion de durée à mi-hauteur 5 fs centrée à une longueur d'onde de 800 nm et se propageant dans la silice fondue, soit $n_\varphi = 1.453$, $n_g = 1.467$ et $k_0'' = 361$ fs^2/cm. Enfin, on écrira le champ électrique dans un référentiel se déplaçant à la vitesse de groupe:

$$\mathcal{E}(z,t) = \mathcal{A}(z, t - \frac{z}{v_g}) \tag{C.3}$$

et on représentera Re$\mathcal{A}$(z, t). Ceci revient à retrancher une phase linéaire $\omega z/v_g = k_0'\omega z$, d'où la nouvelle expression de la phase spectrale

$$\varphi(z,\omega) = \varphi(0,\omega) + \frac{\omega_0}{c}(n_\varphi - n_g)z + \frac{1}{2}k_0''(\omega-\omega_0)^2 z \tag{C.4}$$

On pourra tester le code en supposant d'abord $k_0'' = 0$ et $n_\varphi \neq n_g$, ou inversement $k_0'' \neq 0$ et $n_\varphi = n_g$.

On produira à la fois une animation permettant d'observer au ralenti l'étalement de l'impulsion et une représentation 2D sous forme d'une image $z \times t$.

Code source (dispersion.sci)

```
// Propagation linéaire d'une impulsion brève
// Spectre gaussien
// Système d'unités : ps, THz et microns

exec('femto.sci');

// Paramètres
nPoints = 1024;
[nu,t] = ftAxis(nPoints,3000);
t_fs = 1000*t;
omega = (2*%pi)*nu;
speedLight = 300; // Vitesse de la lumière en microns par ps.
```

```
// Paramètres de l'impulsion
lambda0 = 0.8;     // Longueur d'onde centrale en microns
nu0 = speedLight/lambda0;  // Fréquence centrale
omega0 = (2*%pi)*nu0;
deltaT = .005 / sqrt(8*log(2)); // 5 fs
field0_t = exp(-sqr(t)/4/sqr(deltaT)-%i*omega0*t);
field0 = ift(field0_t);

// Paramètres du matériau
nPhase = 1.453;
nGroupe = 1.467;
k0 = nPhase*omega0/speedLight;
k1 = nGroupe/speedLight;
k2 = 3.61E-8; // 361 fs2/cm ou 3.61E-8 ps2/um
// Paramètres de la simulation
zMax = 2000;   // distance de propagation (en microns)
z = 0:5:zMax; // Axe de propagation

map = zeros(length(z),nPoints); // carte |A(z,t)|^2

// Calcul du champ pour les valeurs successives de z
for iZ = 1:length(z)
  phase0 = (k0-k1*omega0)*z(iZ);
  phase2 = 0.5*k2*z(iZ)*sqr(omega-omega0);
  phase = phase0 + phase2; // Pas de phase d'ordre 1 car on est dans le référentiel de l'impulsion
  field = field0 .*exp(%i*(phase0+phase2));
  field_t = ft(field);
  scf(1);        // Sélection de la fenêtre n°1
  drawlater();  // Ne pas dessiner tout de suite pour éviter un clignotement de l'affichage
  clf();         // Effacer le graphe précédent
  plot(t_fs,real(field_t)); // représentation du champ électrique (en fs)
  xlim([-50 50]);        // Choix des bornes de l'axe des x
  ylim([-1 1]);          // Choix des bornes de l'axe des y
  xtitle(["z = " string(z(iZ)/1000) "mm "]);
  xlabel("Temps [fs]");
  ylabel("Champ électrique");
  drawnow();     // Maintenant que c'est prêt, on peut dessiner la figure
  map(iZ,:) = real(field_t); // Stockage du profil temporel
end;

// Représentation graphique de l'intensité temporelle le long de l'axe de propagation
scf(2); clf();
setColorMap(0);
grayplot(z,t_fs,map);
xlabel('z [microns]');
ylabel('t [fs]');
ylim([-50 50]);
xtitle('Propagation linéaire d''une impulsion courte');
```

Discussion

La différence entre indice de groupe et indice de phase produit une variation de la phase de la porteuse, ce qui se traduit lors de l'animation par un défilement des oscillations du champ électrique. Cela correspond également à l'inclinaison des franges du profil spatio-temporel reproduit à la Fig. C.3. Par ailleurs, la dispersion de vitesse de groupe produit un étalement de l'impulsion, le rouge (oscillations de grande période) se retrouvant sur le front avant de l'impulsion tandis que

le bleu se retrouve sur le front arrière (temps positifs).

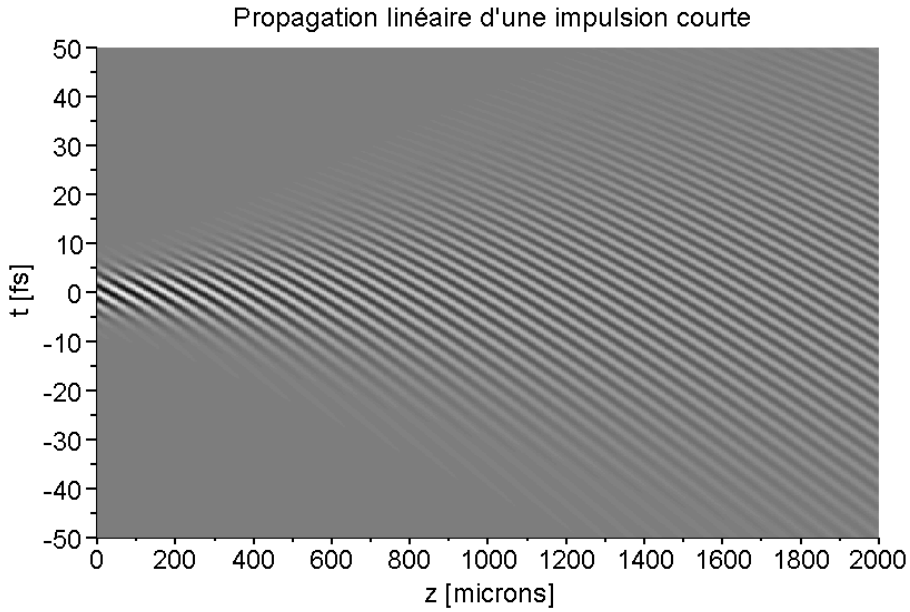


Figure C.3: *Dispersion d'une impulsion ultra-courte lors de sa propagation dans SiO_2.*

C.3.3 Propagation non-linéaire dans un milieu non dispersif

Objectif

On se propose de calculer la propagation non-linéaire d'une impulsion courte sous l'action de l'effet Kerr optique en l'absence de dispersion linéaire. On ne cherchera pas à utiliser de valeurs réalistes de l'indice non-linéaire, mais on se contentera de choisir un coefficient non-linéaire tel que le déphasage non-linéaire à l'issue de la propagation soit égal à 4π. On utilisera donc une équation de propagation exprimée avec des grandeurs sans dimensions, soit

$$\frac{\partial u}{\partial z} = i|u(z,t)|^2 u(z,t). \tag{C.5}$$

On pourra remarquer que $|u(z,t)|$ est indépendant de z.

Code source (kerr.sci)

```
// Propagation non-linéaire d'une impulsion brève
// Spectre gaussien
// Unités réduites

exec('femto.sci');

// Paramètres
```

```
nPoints = 2048;
[nu,t] = ftAxis(nPoints,40);
omega = (2*%pi)*nu;
field_t0 = exp(-sqr(t)-%i*2*%pi*t/.2);
field_nu0 = ift(field_t0);
maxValue = max(abs(field_nu0)); // Pour normaliser le spectre

// Paramètres de la simulation
zMax = 4;    // distance de propagation (en mm)
g = 4*%pi/zMax; // Déphasage non-linéaire de 4pi à l'issue de la propagation
z = 0:zMax/100:zMax; // Axe de propagation

map = zeros(length(z),nPoints); // carte |A(z,t)|^2

// Calcul du champ pour les valeurs successives de z
for iZ = 1:length(z)
  phase = g*sqr(abs(field_t0))*z(iZ);
  field_t = field_t0.*exp(%i*phase);
  scf(1);        // Sélection de la fenêtre n°1
  drawlater();  // Ne pas dessiner tout de suite pour éviter un clignotement de l'affichage
  clf();         // Effacer le graphe précédent
  plot(t,real(field_t)); // représentation du champ électrique (en fs)
  xlim([-3 3]);
  ylim([-1 1]);
//  xtitle(["z = " string(z(iZ)/1000) "mm "]);
  drawnow();     // Maintenant que c'est prêt, on peut dessiner la figure

  // Représentation graphique de l'intensité spectrale
  field_nu = ift(field_t);
  scf(2); drawlater(); clf();
  plot(nu,sqr(abs(field_nu)/maxValue));
  xlim([0 10]);
  ylim([0 1]);
  xlabel("Fréquence");
  ylabel("|E(nu)|^2");
  drawnow();
  map(iZ,:) = sqr(abs(field_nu)/maxValue); // Stockage de l'intensité spectrale
end;

// Représentation graphique de l'intensité spectrale le long de l'axe de propagation
scf(3); clf();
drawlater();
setColorMap(1);
grayplot(z,nu,map);
xlabel("z");
ylabel("Fréquence");
ylim([0 10]);
drawnow();
xtitle("Evolution du spectre en fonction de z");
```

Discussion

Dans le domaine temporel, on observe que la fréquence d'oscillation est abaissée sur le front montant et augmentée sur le front descendant, en raison de la modulation de phase. On observe également un élargissement spectral associé à des oscillations lorsque le déphasage atteint π, illustré sur la Fig. C.4.

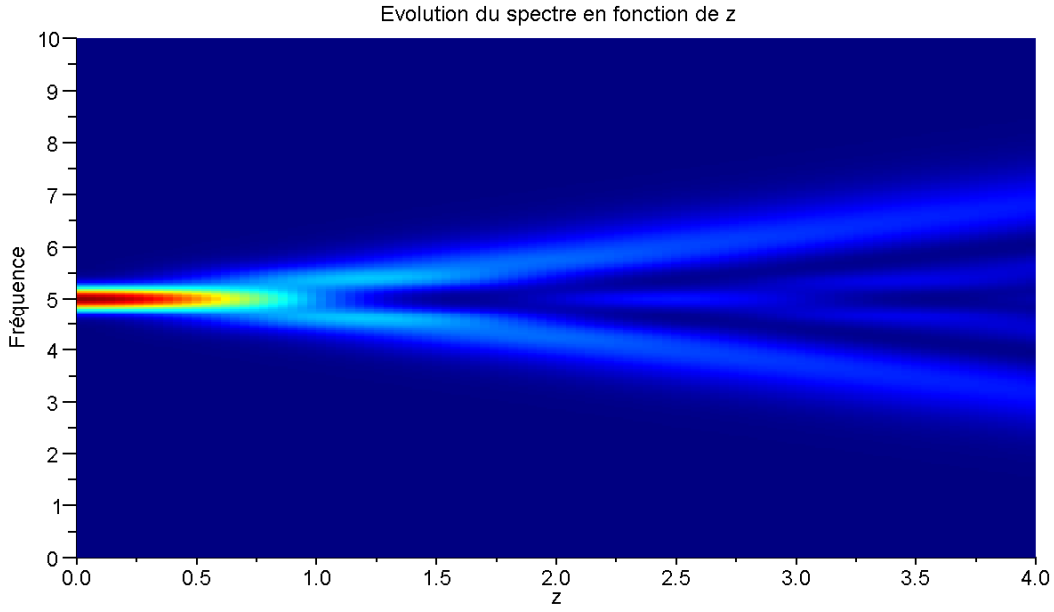


Figure C.4: *Evolution du spectre sous l'action de l'effet Kerr dans un milieu non dispersif.*

C.3.4 Propagation non-linéaire en régime soliton

Objectif

Il s'agit de résoudre l'équation de schrödinger non-linéaire, reportée ci-dessous en unités réduites

$$i\frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{1}{2}\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - |u(z,t)|^2 u(z,t). \tag{C.6}$$

Cette équation sera résolue par la méthode du pas fractionné, qui consiste à effectuer l'intégration sur un pas δz successivement dans l'espace des fréquences, pour prendre en compte la dispersion, puis dans l'espace des temps, pour prendre en compte la non-linéarité:

$$u(z,t) \xrightarrow{\mathcal{F}^{-1}} u(z,\omega) \xrightarrow{\times \exp(-i\omega^2 \delta z/2)} u'(z,\omega) \xrightarrow{\mathcal{F}} u'(z,t) \xrightarrow{\times \exp(i|u'|^2 \delta z)} u(z+\delta z, t) \tag{C.7}$$

Le programme devra représenter $|u(z,t)|^2$ et $|u(z,\omega)|^2$ pour différentes valeurs de z. On testera le programme avec une impulsion de forme gaussienne, d'abord avec le terme de dispersion seul, puis avec le terme non-linéaire seul, et enfin avec les deux termes. On utilisera alors une impulsion initiale de forme sécante hyperbolique

$$u(0,t) = \frac{1}{\cosh t} \tag{C.8}$$

et on vérifiera que l'impulsion se propage sans déformation (soliton). Enfin, on pourra étudier la superposition entre une impulsion gaussienne et un soliton, avec un décalage spectral et temporel

entre les deux impulsions

$$u(0,t) = \frac{1}{\cosh t} + \exp(-(t-t_0)^2 - i2\pi\nu_0 t) \tag{C.9}$$

avec par exemple $t_0 = -20$ et $\nu_0 = -2$. Qu'observe-t-on ?

Code source (soliton.sci)

```
// Propagation non-linéaire d'une impulsion brève en régime soliton
// Unités réduites

exec('femto.sci');

// Paramètres
nPoints = 512;
[nu,t] = ftAxis(nPoints,5);
omega = (2*%pi)*nu;
k2 = -1;   // Dispersion négative
g = 1;     // Non-linéarité
dz = 0.01; // Pas d'intégration
zMax = 3;  // Distance totale de propagation
z = 0:dz:zMax; // Axe de propagation

// Champ électrique
field_t = ones(1,nPoints)./(cosh(t)); // Sécante hyperbolique
// Ajout d'une gaussienne décalée en temps et en fréquence
t0 = -20;
nu0 = -2;
field_t = field_t+exp(-sqr(t-t0)).*exp(-%i*2*%pi*nu0*t);
field = ift(field_t);

map = zeros(length(z),nPoints); // carte |u(z,t)|^2

// Résolution de l'équation différentielle par la méthode du pas fractionnée
for iZ = 1:length(z)
  // Domaine temporel (traitement de la non-linéarité)
  field_t = ft(field);
  phase_t = g*sqr(abs(field_t))*dz; // Phase temporelle (effet Kerr)
  field_t = field_t .*exp(%i*phase_t);
  // Représentation graphique de l'intensité temporelle
  scf(1); drawlater(); clf();
  plot(t,sqr(abs(field_t)));
  xlabel("Temps");
  ylabel("|u(t)|^2 ");
  ylim([0 1]);
  drawnow();
  map(iZ,:) = sqr(abs(field_t)); // Stockage de l'intensité temporelle

  // Domaine spectral (traitement de la dispersion)
  field = ift(field_t);
  phase = .5*k2*dz*sqr(omega); // Phase spectrale (dispersion quadratique)
  field = field .*exp(%i*phase);
  // Représentation graphique de l'intensité spectrale
  scf(2); drawlater(); clf();
  plot(nu,abs(field));
  xlabel("Fréquence");
```

```
  ylabel("|u(nu)|^2 ");
  drawnow();

end;

// Représentation graphique de l'intensité temporelle le long de l'axe de propagation
scf(3); clf();
setColorMap(1);
grayplot(z,t,map);
xlabel("z");
ylabel("|u(t)|^2");
ylim([-25 25]);
xtitle("Collision entre une gaussienne et un soliton");
```

Discussion

On retrouve l'étalement temporel de l'impulsion dans le cas où on ne conserve que la dispersion, ainsi qu'un élargissement du spectre lorsque l'on ne conserve que la nonlinéarité. On constate également qu'une impulsion de forme sécante hyperbolique se propage sans déformation: c'est un soliton.

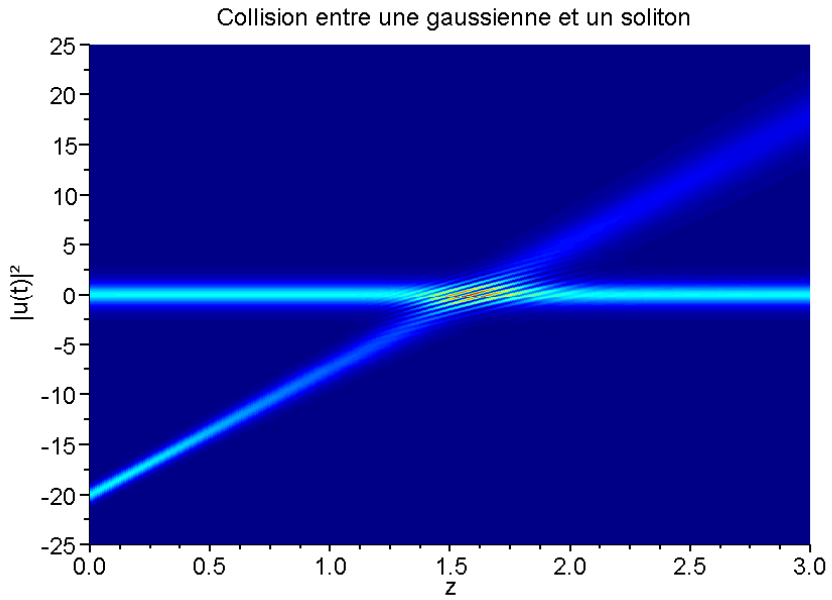


Figure C.5: *Collision entre une impulsion gaussienne et une impulsion de forme sécante hyperbolique (soliton).*

Dans le cas de la superposition d'une gaussienne et d'une sécante hyperbolique on obtient le graphe représenté Fig. C.5. L'impulsion de forme gaussienne, qui est ici centrée à une fréquence inférieure, se propage moins vite que le soliton en raison de la dispersion de vitesse de groupe négative. Dans le référentiel se propageant à la vitesse de groupe du soliton, on observe donc que la gaussienne se déplace alors que le soliton reste immobile. On constate également que le soliton ne se déforme pas alors que le profil temporel de la gaussienne s'élargit (tandis que le spectre se rétrécit). En outre, on observe une collision entre les deux impulsions, donnant lieu à un battement

temporel entre les deux champs en raison de leurs fréquences centrales différentes. Le soliton sort parfaitement indemne de cette collision.

C.3.5 Conditions d'accord de phase dans un cristal non-linéaire

Objectif

On se propose de représenter l'angle interne d'accord de phase pour le doublage de fréquence et l'amplification paramétrique. On écrira donc dans un premier temps des fonctions calculant cet angle en fonction de la longueur d'onde (du fondamental ou du signal) et, le cas échéant, de la longueur d'onde de pompe et de l'angle entre les faisceaux pompe et signal.

Dans le cas du doublage, on considérera un accord de phase de type I. Soit λ_1 la longueur d'onde du fondamental et $\lambda_2 = \lambda_1/2$ celle du second harmonique. Pour un cristal uniaxe négatif ($n_e < n_o$), la condition d'accord de phase s'écrira

$$n_e(\theta, \lambda_2) = n_o(\lambda_1) \tag{C.10}$$

puisque la diminution d'indice résultant de la biréfringence pourra ainsi compenser l'augmentation d'indice résultant de la dispersion (dans un milieu transparent, on aura toujours $n_o(\lambda_1/2) > n_o(\lambda_1)$). En remplaçant $n_e(\theta, \lambda_2)$ par son expression

$$\frac{1}{n_e(\theta,\lambda)^2} = \frac{\cos^2\theta}{n_o(\lambda)^2} + \frac{\sin^2\theta}{n_e(\lambda)^2} \tag{C.11}$$

on obtient le sinus de l'angle d'accord de phase

$$\sin\theta = \sqrt{\frac{\frac{1}{n_e(\theta,\lambda_2)^2} - \frac{1}{n_o(\lambda_2)^2}}{\frac{1}{n_e(\lambda_2)^2} - \frac{1}{n_o(\lambda_2)^2}}} \tag{C.12}$$

L'objet du programme demandé est de calculer cet angle en fonction de λ_1 dans le BBO. On utilisera la fonction **indice** de femto.sci qui calcule les indices ordinaire et extraordinaire de quelques cristaux courants en fonction de la longueur d'onde exprimée en microns.

Pour l'amplification paramétrique, la condition d'accord de phase s'écrit

$$\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_c \tag{C.13}$$

où $\mathbf{k}_p$, $\mathbf{k}_s$ et $\mathbf{k}_c$ sont les vecteurs d'onde de la pompe, du signal et du complémentaire. En géométrie colinéaire, cela donne

$$\frac{n_e(\theta,\lambda_p)}{\lambda_p} = \frac{n_o(\lambda_s)}{\lambda_s} + \frac{n_o(\lambda_c)}{\lambda_c} \tag{C.14}$$

avec

$$\frac{1}{\lambda_p} = \frac{1}{\lambda_s} + \frac{1}{\lambda_c} \tag{C.15}$$

d'où l'on peut à nouveau déduire l'angle θ à l'aide de l'éq. C.12 en remplaçant λ_2 par λ_p.

Enfin, dans le cas d'un amplificateur paramétrique non colinéaire (NOPA), on appellera α l'angle entre signal et pompe, et α' l'angle entre complémentaire et pompe, comme représenté ci-dessous.

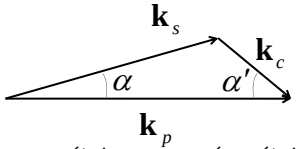


Figure C.6: *Amplification paramétrique en géométrie non colinéaire. A noter que pour un faisceau signal de grande largeur spectrale, l'angle α' dépendra de la longueur d'onde du signal.*

En projetant l'éq. C.13 selon une direction perpendiculaire à $\mathbf{k}_p$, on en déduit

$$\frac{n_o(\lambda_s)}{\lambda_s} \sin\alpha = \frac{n_o(\lambda_c)}{\lambda_c} \sin\alpha' \tag{C.16}$$

ce qui permet d'évaluer α' en fonction de α et de λ_s. Puis en projetant l'éq. C.13 selon $\mathbf{k}_p$, on obtient

$$\frac{n_e(\theta, \lambda_p)}{\lambda_p} = \frac{n_o(\lambda_s)}{\lambda_s} \cos\alpha + \frac{n_o(\lambda_c)}{\lambda_c} \cos\alpha' \tag{C.17}$$

ce qui nous permet de déterminer $n_e(\theta, \lambda_p)$ puis enfin l'angle d'accord de phase $\theta(\lambda_p, \lambda_s, \alpha)$.

Code source (phaseMatching.sci)

```
// Représentation de l'angle d'accord de phase pour le doublage de fréquence
// et l'amplification paramétrique (OPA et NOPA)

exec('femto.sci');

// Fonction calculant l'angle theta pour que ne(theta) = n dans un cristal d'indices no et ne
function result = theta(n, no, ne)
  sinTheta = sqrt((n.^-2 - no.^-2)./(ne.^-2 - no.^-2));
  result = asin(sinTheta);
endfunction;

// Fonction calculant l'angle d'accord de phase en fonction de la longueur d'onde du fondamental
function result = thetaSHG(cristal,lambda)
  lambda2 = lambda/2;
  [no1, ne1] = indice(cristal, lambda);
  [no2, ne2] = indice(cristal, lambda2);
  result = theta(no1,no2,ne2);
endfunction;

// Fonction calculant l'angle d'accord de phase pour un OPA
```

```
function result = thetaOPA(cristal, lambda_p, lambda_s)
  lambda_c = inverse(inverse(lambda_p)-inverse(lambda_s));
  [no_p, ne_p] = indice(cristal,lambda_p);
  [no_s, ne_s] = indice(cristal,lambda_s);
  [no_c, ne_c] = indice(cristal,lambda_c);
  n = lambda_p.*(no_s.*inverse(lambda_s)+no_c.*inverse(lambda_c));
  result = theta(n,no_p, ne_p);
endfunction;

// Fonction calculant l'angle d'accord de phase pour un NOPA
function result = thetaNOPA(cristal, alpha, lambda_p, lambda_s)
  lambda_c = inverse(inverse(lambda_p)-inverse(lambda_s));
  alpha_c = asin(lambda_c./lambda_s*sin(alpha));
  [no_p, ne_p] = indice(cristal,lambda_p);
  [no_s, ne_s] = indice(cristal,lambda_s);
  [no_c, ne_c] = indice(cristal,lambda_c);
  n = lambda_p.*(no_s.*inverse(lambda_s).*cos(alpha)+no_c.*inverse(lambda_c).*cos(alpha_c));
  result = theta(n,no_p,ne_p);
endfunction;

cristal = 'BBO';
// A choisir parmi la liste des cristaux définis dans la fonction indice de femto.sci.

lambda = .5:.01:1.5;
lambda_nm = lambda*1000;

scf(1);
clf();
plot(lambda_nm,thetaSHG(cristal,lambda)*180/%pi);
xlabel('Longueur d''onde du fondamental [nm]');
ylabel('Angle d''accord de phase [°] ');
xtitle('Doublage de fréquence de type I');

scf(2);
clf();
plot(lambda_nm,thetaOPA(cristal,.4,lambda)*180/%pi);
xlabel('Longueur d''onde du signal [nm]');
ylabel('Angle d''accord de phase [°] ');
xtitle('OPA pompé à 400 nm (BBO)');

scf(3);
clf();
for alpha_deg = 0:1:4
  plot(lambda_nm,thetaNOPA(cristal,alpha_deg*%pi/180,.4,lambda)*180/%pi);
end;
plot(lambda_nm,thetaNOPA(cristal,3.7*%pi/180,.4,lambda)*180/%pi,'r');
xlabel('Longueur d''onde [nm]');
ylabel('Angle d''accord de phase [°] ');
xtitle('NOPA pompé à 400 nm (BBO)');
```

Discussion

La Fig. C.7 représente l'angle d'accord de phase dans le BBO obtenue à l'aide de la fonction thetaSHG définie plus haut.

La Fig. C.8 représente l'angle d'accord de phase dans un NOPA calculée à l'aide de la fonction thetaNOPA définie plus haut. Pour un angle de 3.7° entre pompe et signal, on observe une variation très faible de l'angle en fonction de la longueur d'onde autour de 580 nm, ce qui permet d'amplifier

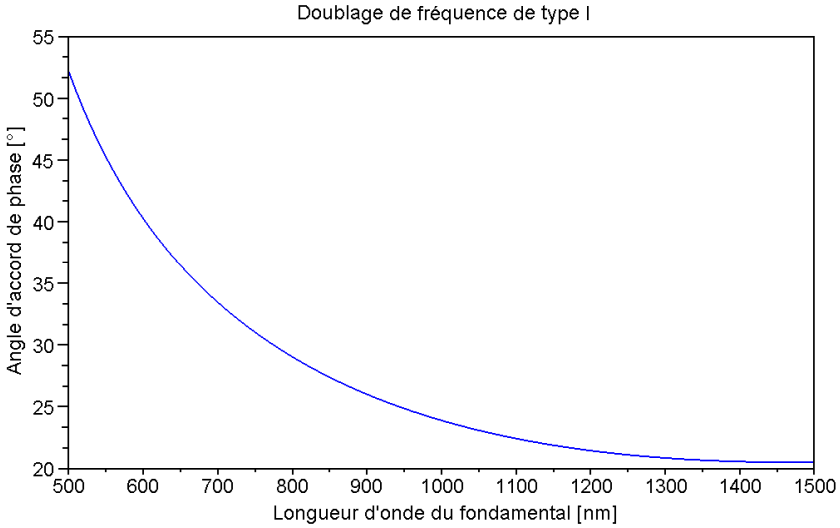


Figure C.7: *Courbe d'accord de phase dans un cristal de BBO pour un doublage de fréquence de type I en fonction de la longueur d'onde du fondamental.*

des bandes spectrales très larges (G.M. Gale, M. Cavallari, F. Hache, J. Opt. Soc. Am. B 15, 702 (1998)). Cette propriété est à l'origine de l'intérêt des NOPA pour la production d'impulsions ultracourtes.

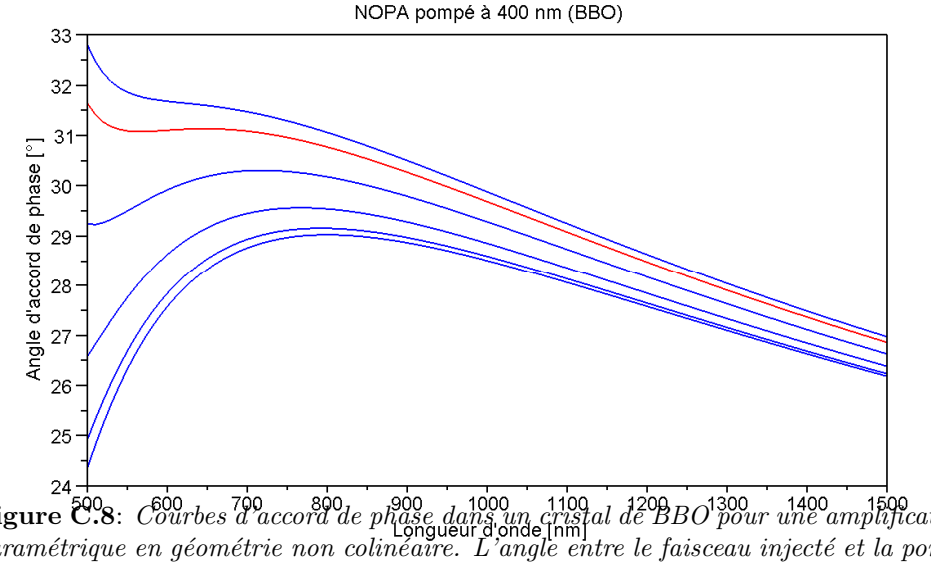


Figure C.8: *Courbes d'accord de phase dans un cristal de BBO pour une amplification paramétrique en géométrie non colinéaire. L'angle entre le faisceau injecté et la pompe varie par pas de 1° de 0° (courbe du bas) à 4° (courbe du haut). La courbe en rouge correspond à un angle de 3.7°.*

C.3.6 Interférométrie spectrale

Objectif

L'objet de cet exercice est d'extraire la phase spectrale introduite par un élément dispersif placé dans un interféromètre à l'aide des franges spectrales mesurées par un spectromètre. Une première mesure est effectué en l'absence du matériau dispersif afin de mesurer la différence de dispersion entre les deux bras de l'interféromètre. Une seconde mesure est effectuée en plaçant un bloc de

2 cm de CaF2 dans un des bras de l'interféromètre (sachant que le faisceau traverse le matériau à l'aller et au retour). La Fig. C.9 représente les spectres obtenus, que l'on pourra charger à partir du fichier CaF2.txt. En utilisant le traitement par transformée de Fourier (FTSI) introduit en cours, on pourra calculer la phase spectrale introduite par le bloc de CaF_2. Enfin, la fonction indice('CaF2',lambda) permettra de comparer la phase mesurée à la valeur théorique.

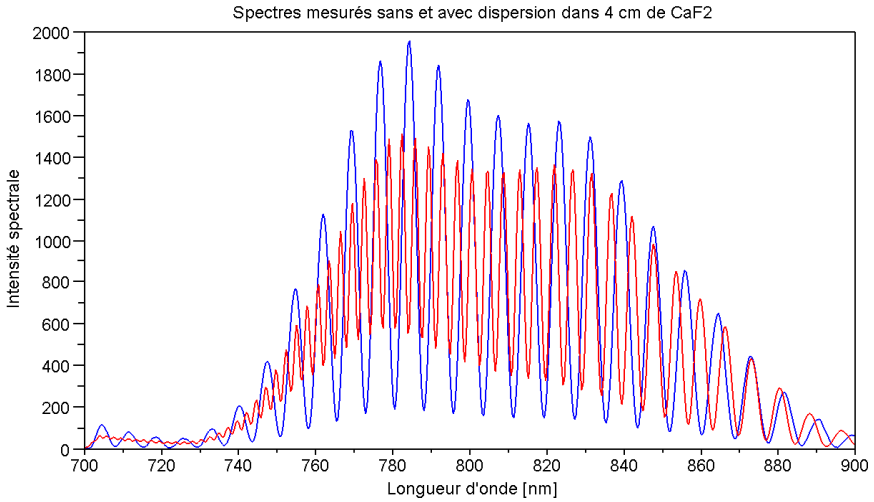


Figure C.9: *Spectres mesurés dans un interféromètre en l'absence (en bleu) et en présence (en rouge) d'un bloc de CaF_2 de 2 cm d'épaisseur traversé deux fois par le faisceau laser (mesure effectuée par Guillaume Labroille - LOB).*

Code source (ftsi.sci)

```
// Interférométrie spectrale par transformée de Fourier
// Traitement d'un spectre expérimental pour extraire la phase spectrale

exec('femto.sci');

// Paramètres
nPoints = 2048;
[nu,t] = ftAxis(nPoints,300);
t_fs = 1000*t;
omega = (2*%pi)*nu;
speedLight = 300000; // Vitesse de la lumière en nanomètres par ps.
// Paramètres de l'impulsion
lambda0 = 0.8;     // Longueur d'onde centrale en microns
nu0 = speedLight/lambda0;  // Fréquence centrale
omega0 = (2*%pi)*nu0;
deltaT = .010 / sqrt(8*log(2)); // 10 fs

// data = csvread('CaF2.txt');
data = excel2sci('CaF2.txt',',');
lambda = data(:,1)';
spectre1 = data(:,2)';
spectre2 = data(:,3)';
nu = speedLight*inverse(lambda);

// Représentation graphique des spectres mesurés
```

```
scf(1);
clf();
plot(lambda,spectre1,'b');
plot(lambda,spectre2,'r');
xlim([700 900]);
ylim([0 2000]);
xlabel('Longueur d''onde [nm]');
ylabel('Intensité spectrale');
xtitle('Spectres mesurés sans et avec dispersion dans 4 cm de CaF2');


// Représentation graphique dans l'espace de Fourier
scf(2);
clf();
n = length(spectre1);
ksi = -n/2:n/2-1; // Axe des x après rotation
ft1 = ft(spectre1);
ft2 = ft(spectre2);
plot(ksi,abs(ft1)./max(abs(ft1)),'b');
plot(ksi,abs(ft2)./max(abs(ft2)),'r');
xlim([-500 500]);
xlabel('Pixel');
xtitle('Module de la transformée de Fourier du spectre');

// Fenêtrage pour ne conserver que le terme pertinent
fenetre = heaviside(ksi-50);
field1 = ift(ft1.*fenetre);
field2 = ift(ft2.*fenetre);
phase = unwrap(angle(field1))-unwrap(angle(field2));
scf(3);
clf();
plot(nu,phase);
xlim([300 430]);
xlabel('Fréquence [THz]');
ylabel('Phase spectrale');

// Soustraction d'une phase linéaire déterminée par calcul de la tangente
index = find( nu>370 & nu<390 ); // indices correspondant à l'intervalle [370,390]
index1 = index(length(index)/2); // indice du milieu
coefs = regress(nu(index),phase(index));
phase = phase - phase(index1) - coefs(2)*(nu-nu(index1));
// Représentation de la phase après soustraction de la pente linéaire
scf(4);
clf();
plot(lambda,phase);
lambda_um = lambda/1000;
L = 40000; // Epaisseur de verre traversée en microns
phaseThe = 2*%pi*L*indice('CaF2',lambda_um)./lambda_um;
// Soustraction d'une phase linéaire comme pour la phase mesurée
coefs = regress(nu(index),phaseThe(index));
phaseThe = phaseThe - phaseThe(index1) - coefs(2)*(nu-nu(index1));
plot(lambda,phaseThe,'r');
xlim([700 900]);
ylim([0 60]);
xlabel('Longueur d''onde [nm]');
ylabel('Phase [rd]');
xtitle('Phase (mesurée et calculée) pour 4 cm de CaF2');
```

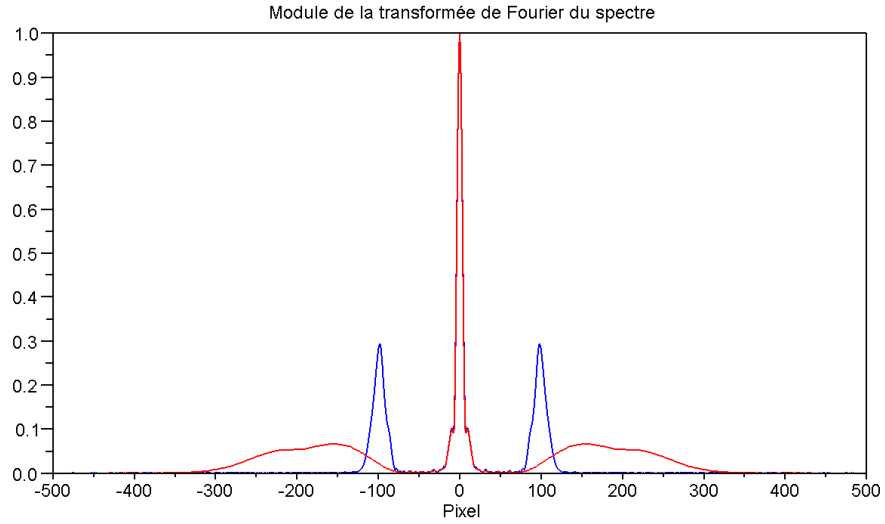


Figure C.10: *Transformées de Fourier des données de la Fig. C.9*

Discussion

La Fig. C.10 représente la transformée de Fourier des franges spectrales. Pour sélectionner le terme pertinent, il suffit de conserver le pic de droite, par exemple en annulant tous les points associés à un numéro de pixel inférieur à 50. En revenant dans l'espace des longueurs d'onde, on peut soustraire une phase linéaire obtenue en mesurant la tangente au centre du spectre. On obtient alors la phase représentée Fig. C.11, qui est en parfait accord avec la phase théorique obtenue avec l'indice de réfraction du CaF_2.

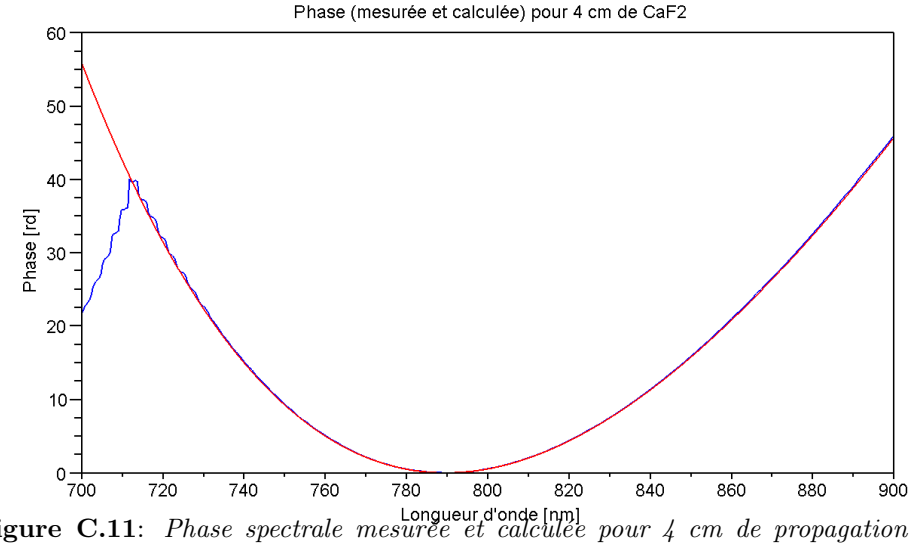


Figure C.11: *Phase spectrale mesurée et calculée pour 4 cm de propagation dans CaF_2. Les termes constants et linéaires de la phase - qui ne sont pas accessibles à l'expérience - ont été soustraits.*

Appendice D

Problèmes corrigés

Cet appendice regroupe les problèmes d'optique non-linéaire qui ont été posés ces dernières années à l'issue de ce cours de master. Si vous souhaitez faire ces problèmes dans les conditions de l'examen, il peut être préférable de consulter les versions non corrigées, disponibles à l'adresse `http://www.enseignement.polytechnique.fr/profs/physique/Manuel.Joffre/onl/sujets.pdf`.

D.1 Cascade d'effets non-linéaires du second ordre (2001)

Durée : 1h30

Le cours et les notes personnelles sont autorisés.

On s'intéresse à la propagation non-linéaire d'un faisceau lumineux monochromatique de fréquence ω dans un cristal doubleur de fréquence de susceptibilité non-linéaire du second ordre $\chi^{(2)}$. On admet que, compte tenu des conditions d'accord de phase dans le cristal, les seuls processus ayant une contribution significative sont le doublage de fréquence ($\omega + \omega \rightarrow 2\omega$) et la différence de fréquences ($2\omega - \omega \rightarrow \omega$). On se place dans l'approximation des ondes planes et on note respectivement $E_1(z,t)$ et $E_2(z,t)$ les champs électriques du fondamental et du second harmonique. On pose $E_l(z,t) = \mathrm{Re}\left(\mathcal{A}_l(z)\exp(i(k_l z - \omega_l t))\right)$ où $\mathcal{A}_1(z)$ et $\mathcal{A}_2(z)$ sont les enveloppes complexes des champs se propageant dans le cristal. On rappelle qu'avec ces notations, l'intensité du faisceau (encore appelée densité de puissance) s'écrit

$$I_l(z) = \frac{\epsilon_0 n_l c}{2}|\mathcal{A}_l(z)|^2$$

où n_l est l'indice de réfraction du faisceau l. Enfin, on supposera que l'amplitude du second harmonique à l'entrée du cristal ($z = 0$) est nulle ($\mathcal{A}_2(0) = 0$) puisque seul le faisceau fondamental sera injecté dans le cristal.

1. *Etablir les équations couplées gouvernant la propagation de* $\mathcal{A}_1(z)$ *et* $\mathcal{A}_2(z)$. *On posera* $\Delta k = 2k_1 - k_2$.

La polarisation induite dans le cristal s'écrit

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

On en déduit

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_1 &= \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{A}_2 \mathcal{A}_1^* e^{i(k_2 - k_1)z} \\ \mathcal{P}_2 &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \mathcal{A}_1^2 e^{2ik_1 z} \end{aligned}$$

A l'aide de l'éq. 3.11 du cours, on en déduit

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

2. *On pose*

$$\alpha_l(z) = \sqrt{\frac{n_l c \epsilon_0}{2\hbar\omega_l}} \mathcal{A}_l(z)$$

Rappeler et justifier l'interprétation physique de $|\alpha_l(z)|^2$.

$|\alpha_l(z)|^2$ représente le flux numérique de photons.

3. *Montrer que les équations de propagation s'écrivent*

$$\begin{aligned} \frac{d\alpha_1}{dz} &= i\xi \alpha_2 \alpha_1^* e^{-i\Delta k z} \\ \frac{d\alpha_2}{dz} &= \frac{i}{2} \xi \alpha_1^2 e^{i\Delta k z} \end{aligned}$$

où ξ *est une grandeur réelle que l'on déterminera.*

$$\xi = \chi^{(2)} \sqrt{\frac{\hbar\omega^3}{\epsilon_0 n_1^2 n_2 c^3}}$$

4. *Etablir une relation de conservation faisant intervenir* $|\alpha_1(z)|^2$ *et* $|\alpha_2(z)|^2$. *Exprimer* $|\alpha_2(z)|^2$ *à l'aide de* $|\alpha_1(z)|^2$ *et de* $\alpha_{10} = \alpha_1(0)$ *(*α_{10} *sera supposé réel positif).*

On obtient

$$\frac{d|\alpha_1|^2}{dz} + 2\frac{d|\alpha_2|^2}{dz} = 0$$

ce qui signifie que deux photons à ω donnent un photon à 2ω. On en déduit $|\alpha_1|^2 + 2|\alpha_2|^2 = \alpha_{10}^2$.

5. *Démontrer que $\alpha_1(z)$ vérifie l'équation*

$$\frac{d^2\alpha_1}{dz^2} + i\Delta k \frac{d\alpha_1}{dz} - f(|\alpha_1|)\alpha_1 = 0$$

où $f(|\alpha_1|)$ est une fonction de $|\alpha_1|$ que l'on explicitera à l'aide de ξ et α_{10}.

$$f(|\alpha_1|) = \frac{\xi^2}{2}(\alpha_{10}^2 - 2|\alpha_1|^2)$$

6. *Dans cette question et la suivante, on supposera que les conditions d'accord de phase sont parfaitement réalisées ($\Delta k = 0$). Exprimer l'équation précédente dans ce cas et vérifier que sa solution s'écrit $\alpha_1(z) = A/\cosh(\Gamma z)$ où l'on déterminera A et Γ. En déduire l'expression de $\alpha_2(z)$ et représenter graphiquement $|\alpha_1(z)|^2$ et $|\alpha_2(z)|^2$.*

$$\alpha_1(z) = \frac{\alpha_{10}}{\cosh \Gamma z}$$
$$\alpha_2(z) = \frac{i\alpha_{10}}{\sqrt{2}} \tanh \Gamma z$$

où $\Gamma = \xi\alpha_{10}/\sqrt{2}$. On vérifie notamment que $d\alpha_1/dz(0) = 0$.

7. *Interpréter physiquement les régions $\Gamma z \ll 1$ et $\Gamma z \gg 1$ du graphe obtenu à la question précédente. Dans le cas $\Gamma z \gg 1$, on expliquera (éventuellement de façon très qualitative) pourquoi le faisceau à ω n'est pas amplifié par un mécanisme d'amplification paramétrique pompé à 2ω ce qui aurait pour effet de reconvertir le second harmonique en fondamental.*

Dans la région $\Gamma z \ll 1$ on retrouve une variation quadratique avec z de l'intensité du second harmonique comme vu en cours dans le cas d'une déplétion faible du fondamental. Dans la région $\Gamma z \gg 1$ le fondamental subit une décroissance exponentielle. Ce résultat n'est absolument pas contradictoire avec le phénomène d'amplification paramétrique car en régime dégénéré l'évolution du signal dépend de la relation de phase entre la pompe et le signal. Dans le cas présent, le fondamental correspond précisément à celle des deux quadratures qui est "dé-amplifiée" lors du processus d'interaction paramétrique, d'où sa décroissance exponentielle.

8. *Dans cette question et les suivantes, on suppose que la condition d'accord de phase n'est plus réalisée ($\Delta k \neq 0$) et que l'on est dans un régime de faible conversion ($\Gamma \ll |\Delta k|$). Montrer que dans ce cas on peut écrire $f(|\alpha_1|) \approx -\Gamma^2$ et déterminer la solution $\alpha_1(z)$ de l'équation de propagation obtenue dans le cadre de cette approximation. On montrera que $\alpha_1(z)$ est la somme de deux termes dont on discutera les amplitudes relatives.*

Il s'agit alors d'une équation différentielle linéaire du second ordre à coefficients constants. Les racines du polynome sont imaginaires pures et ont pour valeur $i(-\Delta k \pm \sqrt{\Delta k^2 + 4\Gamma^2})/2$, soit approximativement

$i\Gamma^2/\Delta k$ et $-i\Delta k$. La solution s'écrit donc

$$\alpha_1(z) = A \exp\left(i\frac{\Gamma^2}{\Delta k}z\right) + B\exp\left(-i\Delta k z\right)$$

En écrivant que $d\alpha_1/dz = 0$ en $z = 0$, on obtient $|A/B| = (\Delta k/\Gamma)^2 \gg 1$. Le premier terme de $\alpha_1(z)$ est donc prépondérant.

9. *Montrer que sous l'hypothèse* $\Gamma \ll |\Delta k|$ *une valeur approchée de la solution peut s'écrire*

$$\alpha_1(z) = \alpha_{10}\exp\left(i\frac{\omega}{c}\, n_{2,eff} I_1(z) z\right)$$

où l'on déterminera l'expression de $n_{2,eff}$*. Interpréter physiquement le résultat obtenu en comparant notamment avec un autre effet non-linéaire connu.*

On en déduit l'expression demandée avec

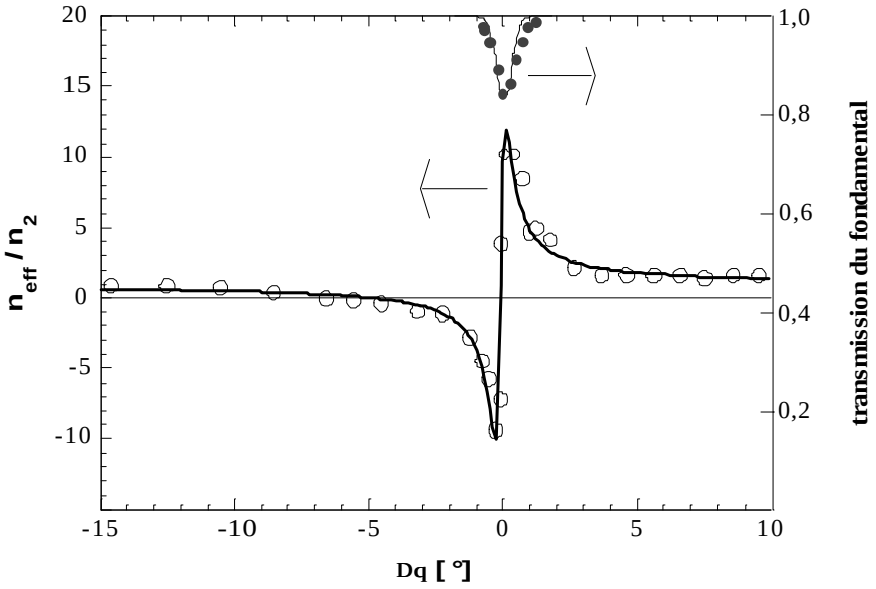
$$n_{2,eff} = \frac{\omega\left(\chi^{(2)}\right)^2}{2\epsilon_0 c^2 n_1^2 n_2 \Delta k}$$

Une cascade de deux effets non-linéaires du deuxième ordre se traduit donc par un déphasage proportionnel à l'intensité, de façon analogue à l'effet Kerr optique, qui résulte lui directement de la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre.

L'effet en cascade peut s'interpréter physiquement de la façon suivante : le fondamental est converti en second harmonique qui est ensuite reconverti en fondamental en raison du désaccord de phase. k_2 étant différent de $2k_1$, il en résulte un déphasage proportionnel à Δk. Mais la probabilité de conversion étant proportionnelle à $1/\Delta k^2$, on en déduit que le déphasage est finalement proportionnel à $1/\Delta k$, conformément au résultat théorique.

L'avantage de ce phénomène par rapport à l'indice non-linéaire habituel d'un matériau est que l'on peut ici ajuster la grandeur et le signe de l'indice non-linéaire effectif.

10. *On souhaite comparer les résultats théoriques obtenus ci-dessus à une expérience où l'on a mesuré l'indice non-linéaire effectif total d'un cristal non-linéaire. Cet indice non-linéaire effectif, divisé par l'indice non-linéaire du matériau* n_2 *résultant des seuls effets du troisième ordre, est représenté sur la figure ci-dessous.*



L'accord de phase est ici obtenu en exploitant la biréfringence du cristal. Les conditions d'accord de phase sont variées en inclinant le cristal par rapport au faisceau incident - l'axe des abscisses de la figure représente précisément l'angle $\Delta\theta$*, l'accord de phase étant réalisé lorsque* $\Delta\theta = 0$*. On admet que* $\Delta\theta$ *est alors proportionnel à* Δk (on pourra éventuellement justifier brièvement ce dernier point).

Interpréter les résultats expérimentaux en mentionnant notamment dans quels domaines les résultats sont en accord avec le modèle théorique.

Dans le cas d'un accord de phase par biréfringence, on a par exemple $\Delta k = 2k_e(\omega, \theta) - k_o(2\omega)$. Si l'accord de phase est réalisé pour $\theta = \theta_0$, et en supposant que $\Delta\theta = \theta - \theta_0$, on a

$$\Delta k \approx 2\frac{\partial k_e(\omega, \theta)}{\partial \theta}\Delta\theta$$

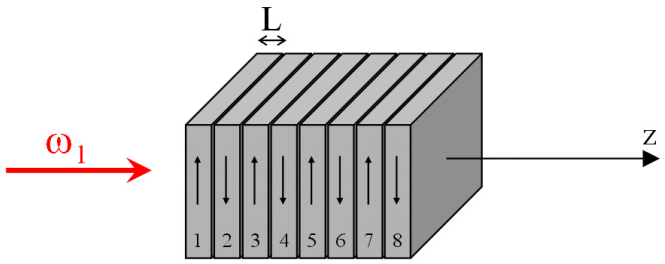
La figure montre bien deux branches d'hyperbole lorsque $|\Delta k|$ est important. Au voisinage de $\Delta k \approx 0$ le modèle ne s'applique évidemment plus. Pour $\Delta k = 0$, l'indice non-linéaire total est simplement égal à n_2 puisque le fondamental n'est pas déphasé, conformément aux résultats de la question 6. On observe en outre une légère déplétion du fondamental. Pour plus d'information, vous pouvez aussi consulter R. DeSalvo et al., Opt. Lett. **17**, 28 (1992) et F. Hache et al., Opt. Lett. **20**, 1556 (1995). La figure est extraite de ce dernier article.

D.2 Quasi-accord de phase (2002)

Durée : 1h30

Le cours et les notes personnelles sont autorisés.

On s'intéresse dans ce problème au doublage de fréquence d'un faisceau lumineux à l'aide de la technique dite du quasi accord de phase. Celle-ci consiste à utiliser comme élément doubleur un empilement de $2N$ lames d'épaisseur L selon le schéma ci-dessous. Les lames de rang impair sont identiques à la première tandis que les lames de rang pair ont subi une rotation de π autour de l'axe z.



On rappelle que l'équation de propagation dans les lames de rang impair peut s'écrire

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

où $\mathcal{A}_1$ et $\mathcal{A}_2$ sont les enveloppes du fondamental et de la seconde harmonique, $\omega_2 = 2\omega_1$ est la fréquence de la seconde harmonique et $\Delta k = 2k_1 - k_2$ avec $k_1 = n_1\omega_1/c$ et $k_2 = n_2\omega_2/c$. On supposera $\Delta k \neq 0$. $\chi^{(2)}$ est la composante pertinente du tenseur susceptibilité non-linéaire du matériau (les champs fondamental et doublé sont supposés polarisés linéairement selon un axe vertical).

Dans la suite, on se placera dans le cas d'une efficacité de doublage faible, ce qui signifie que l'enveloppe du champ fondamental peut être considérée comme constante ($\mathcal{A}_1(z) = \mathcal{A}_1$).

1. *Démontrer que l'équation de propagation dans les lames de rang pair est obtenue en remplaçant* $\chi^{(2)}$ *par* $-\chi^{(2)}$ *dans l'équation de propagation ci-dessus.*

Soit X, Y, Z les axes liés au matériau non-linéaire et x, y, z les axes liés au repère fixe. Pour les lames de rang impair, on a $X = x$, $Y = y$ et $Z = z$, tandis que pour les lames de rang pair, on a $X = -x$, $Y = -y$ et $Z = z$. La relation entre champ et polarisation s'écrit $P_Y = \chi^{(2)}_{YYY}E^2_Y$. Pour les lames de rang impair, cela donne directement $P_y = \chi^{(2)}_{YYY}E^2_y = \chi^{(2)}E^2_y$, où par définition $\chi^{(2)} = \chi^{(2)}_{YYY}$. Pour les lames de rang pair, on obtient $P_y = -P_Y = -\chi^{(2)}_{YYY}(-E_y)^2 = -\chi^{(2)}E^2_y$.

2. *Exprimer l'enveloppe du champ en sortie de la lame de rang* $2n+1$, $\mathcal{A}_2((2n+1)L)$, *en fonction de l'enveloppe à l'entrée de la lame,* $\mathcal{A}_2(2nL)$ *(*n *est un nombre entier variant entre 0 et* $N-1$*).*

Dans une lame de rang impair, l'équation de propagation s'écrit

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

La solution s'écrit

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

soit

$$\mathcal{A}_2((2n+1)L) = \mathcal{A}_2(2nL) + \frac{\omega_2\chi^{(2)}\mathcal{A}_1^2}{4n_2c}\,\frac{\exp(i\Delta kL) - 1}{\Delta k}\exp(i2n\Delta kL)$$

3. *Exprimer l'enveloppe du champ en sortie de la lame de rang* $2n+2$, $\mathcal{A}_2((2n+2)L)$, *en fonction de l'enveloppe à l'entrée de la lame,* $\mathcal{A}_2((2n+1)L)$.

Il suffit de remplacer $\chi^{(2)}$ par $-\chi^{(2)}$:

$$\mathcal{A}_2((2n+2)L) \;=\; \mathcal{A}_2((2n+1)L) - \frac{\omega_2\chi^{(2)}\mathcal{A}_1^2}{4n_2c}\,\frac{\exp(i\Delta kL) - 1}{\Delta k}\exp(i(2n+1)\Delta kL)$$

4. *Exprimer l'enveloppe de la seconde harmonique à la sortie de l'ensemble du dispositif de* $2N$ *lames, sachant que seul le fondamental est injecté en entrée.*

$$\begin{aligned}
\mathcal{A}_2((2n+2)L) &= \mathcal{A}_2((2n+1)L) - \frac{\omega_2\chi^{(2)}\mathcal{A}_1^2}{4n_2c}\,\frac{\exp(i\Delta kL) - 1}{\Delta k}\exp(i(2n+1)\Delta kL) \\
&= \mathcal{A}_2(2nL) + \frac{\omega_2\chi^{(2)}\mathcal{A}_1^2}{4n_2c}\,\frac{\exp(i\Delta kL) - 1}{\Delta k}\left(\exp(i2n\Delta kL) - \exp(i(2n+1)\Delta kL)\right) \\
&= \mathcal{A}_2(2nL) - \frac{\omega_2\chi^{(2)}\mathcal{A}_1^2}{4n_2c}\,\frac{(\exp(i\Delta kL) - 1)^2}{\Delta k}\,\exp(i2n\Delta kL)
\end{aligned}$$

soit

$$\begin{aligned}
\mathcal{A}_2(2NL) &= -\frac{\omega_2\chi^{(2)}\mathcal{A}_1^2}{4n_2c}\,\frac{(\exp(i\Delta kL) - 1)^2}{\Delta k}\sum_{n=0}^{N-1}\exp(i2n\Delta kL) \\
&= -\frac{\omega_2\chi^{(2)}\mathcal{A}_1^2}{4n_2c}\,\frac{(\exp(i\Delta kL) - 1)^2}{\Delta k}\,\frac{1 - \exp(i2N\Delta kL)}{1 - \exp(i2\Delta kL)}
\end{aligned}$$

5. *Exprimer l'intensité en sortie du dispositif et montrer que celle-ci est maximale pour certaines valeurs de* L *que l'on déterminera. Quel choix de* L *vous semble le plus approprié ? (on pourra comparer l'intensité obtenue avec celle que l'on obtiendrait dans une lame unique de même épaisseur totale mais où l'accord de phase serait réalisé).*

L'intensité en sortie s'écrit

$$\begin{aligned} I_2 &= \frac{n_2 c\epsilon_0}{2}|\mathcal{A}_2(2NL)|^2 \\ &= \frac{n_2 c\epsilon_0}{2}\left(\frac{\omega_2\chi^{(2)}|\mathcal{A}_1|^2}{n_2 c\Delta k}\right)^2\left(\frac{\sin^2(\Delta kL/2)\sin(N\Delta kL)}{\sin(\Delta kL)}\right)^2 \end{aligned}$$

(le préfacteur $n_2 c\epsilon_0/2$ est facultatif)

Il s'agit d'une fonction périodique de L de période $2\pi/\Delta k$. La valeur maximale est atteinte lorsque $\Delta kL = (2p+1)\pi$ (avec p entier), soit $L = (2p+1)L_C$ où $L_C = \pi/|\Delta k|$ est la longueur de cohérence. On obtient alors :

$$I_2 = \frac{n_2 c\epsilon_0}{2}\left(\frac{\omega_2\chi^{(2)}|\mathcal{A}_1|^2}{n_2 c\pi}\right)^2 N^2 L_C^2$$

Le choix optimal est évidemment $L = L_C$ ($p = 0$) car c'est celui qui donne la plus grande quantité d'harmonique pour une épaisseur totale donnée.

Remarquons que pour une lame unique et dans l'hypothèse où l'accord de phase est réalisé ($\Delta k = 0$), l'équation de propagation s'écrit

$$\frac{d\mathcal{A}_2}{dz} = \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2 c}\mathcal{A}_1^2$$

d'où l'on déduit

$$\mathcal{A}_2(2NL) = \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{4n_2 c}\mathcal{A}_1^2 2NL.$$

et

$$I_{2,\Delta k=0} = \frac{n_2 c\epsilon_0}{2}\left(\frac{\omega_2\chi^{(2)}|\mathcal{A}_1|^2}{2n_2 c}\right)^2 N^2 L^2$$

Le rapport entre les situations avec quasi-accord de phase et avec accord de phase s'écrit donc

$$\frac{I_2}{I_{2,\Delta k=0}} = \frac{4L_C^2}{\pi^2 L^2} = \frac{4}{\pi^2(2p+1)^2} \leq \frac{4}{\pi^2}$$

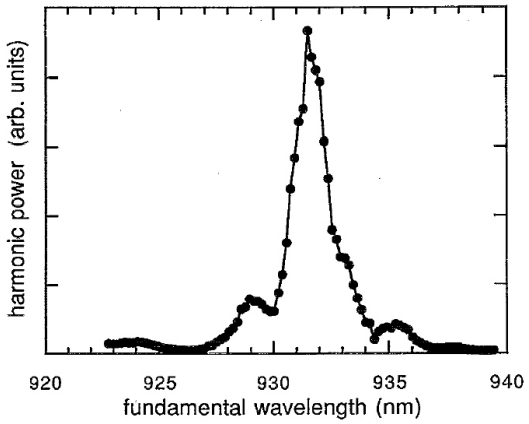
L'efficacité est donc légèrement inférieure à ce que l'on peut obtenir lorsque l'accord de phase est réalisé. Cependant, le quasi accord de phase reste une technique très intéressante car il permet d'utiliser des matériaux de très forte non-linéarité mais qui ne sont pas suffisamment biréfringent pour permettre un accord de phase par biréfringence.

6. *On cherche à réaliser le doublage de fréquence d'un faisceau laser de longueur d'onde 932 nm dans du $LiNbO_3$. Les valeurs de l'indice de réfraction à 932 et 466 nm pour ce matériau sont respectivement 2.24 et 2.36. Quelle est la valeur optimale de L pour réaliser le quasi accord de phase ?*

La valeur optimale est

$$L = L_C = \frac{\pi}{\Delta k} = \frac{\pi}{|n_2 - n_1|2\omega_1/c} = \frac{\lambda_1}{4\Delta n} = 1.93\mu\text{m}$$

7. *La figure ci-dessous (Appl. Phys. Lett.* **59***, 2657 (1991)) représente la puissance produite par un tel dispositif à quasi accord de phase en fonction de la longueur d'onde du fondamental.*



Interpréter la courbe obtenue et déterminer un ordre de grandeur de la largeur à mi-hauteur (que l'on comparera à la valeur expérimentale) sachant que l'épaisseur totale de l'échantillon est d'environ 500 µm et que les indices de groupe à 932 et 466 nm sont respectivement égaux à 2.32 et 2.74.

La condition $\Delta kL = \pi$ n'est valable que pour une valeur précise de la fréquence. Dès que l'on s'écarte de cette fréquence centrale, Δk varie et l'efficacité de conversion diminue, ce qui explique l'allure la courbe (en fait un sinus cardinal).

Le terme prépondérant dans la variation de I_2 avec la fréquence au voisinage de $\omega = \omega_1$ est

$$\mathrm{sinc}^2(N(\Delta k(\omega) - \Delta k(\omega_1))L_C).$$

La fréquence pour laquelle cette fonction atteint sa mi-hauteur est telle que $N(\Delta k(\omega) - \Delta k(\omega_1))L_C) \approx 1.4$ car $\mathrm{sinc}(1.4) = 1/\sqrt{2}$ (mais toute autre valeur proche de 1 conviendrait pour déterminer un ordre de grandeur).

Attention : dans la variation de Δk avec ω, il ne faut pas supposer l'indice constant. En effet, si l'indice était constant on aurait $\Delta k = 2n_1\omega/c - n_2 2\omega/c = 2(n_1 - n_2)\omega/c$ et on trouverait $\partial\Delta k/\partial\omega = 2(n_1 - n2)/c$. En réalité, $\partial\Delta k/\partial\omega = 2\partial k_1/\partial\omega - \partial k_2/\partial\omega = 2(k_1' - k_2') = 2\Delta n_g/c$. On voit que les deux dérivées diffèrent d'un facteur multiplicatif ici de l'ordre de 3 ou 4.

Donc $\Delta k(\omega) - \Delta k(\omega_1) \approx 2(\omega - \omega_1)\Delta k' = 2\frac{\delta\omega}{2}\frac{\Delta n_g}{c}$. On en déduit

$$\delta\omega = \frac{1.4}{NL_C}\frac{c}{\Delta n_g}.$$

Sachant que $\delta\omega = 2\pi c\delta\lambda/\lambda^2$, on en déduit

$$\delta\lambda = \frac{1.4\lambda^2}{\pi 2NL_C\Delta n_g} \approx 1.8nm$$

où l'on a utilisé le fait que $2NL_C$ est l'épaisseur de l'échantillon. Cette largeur à mi-hauteur d'environ 2 nm correspond bien au résultat expérimental.

Remarque : en réalité la véritable épaisseur de l'échantillon est de 1.4 mm, ce qui devrait donner lieu à une raie plus fine. Cependant, la régularité des zones d'épaisseurs L n'étant pas parfaitement contrôlée, cela donne lieu à un élargissement de la raie. Une autre différence entre l'expérience et le modèle proposé dans ce problème : le quasi-accord de phase n'est pas obtenu par un empilement de lames minces mais par l'inversion de domaines ferroélectriques en géométrie guidée. En particulier, les valeurs des indices proposées dans l'énoncé ne sont pas parfaitement exactes car il faudrait tenir compte de la dispersion modale (ceci explique le léger désaccord avec la valeur de la longueur de cohérence mentionnée dans l'article).

8. *Par quelle méthode pourrait-on déplacer la longueur d'onde centrale du pic observé ? Dans quel sens aurait lieu ce déplacement ?*

On peut par exemple incliner l'échantillon, ce qui permet d'augmenter l'épaisseur effective L.

Pour compenser, il faut que $|\Delta k|$ diminue pour que $|\Delta k|L$ reste constant et égal à π, ce qui signifie que Δk doit en fait augmenter puisque $\Delta k < 0$. Or $\partial \Delta k/\partial \omega = 2(n_{g1} - n_{g2})/c < 0$. Il faut donc diminuer la fréquence. En conclusion, lorsqu'on incline l'échantillon, le pic central se déplace vers les basses fréquences, i.e. vers les grandes longueurs d'onde.

D.3 Doublage d'une impulsion femtoseconde (2003)

Durée : 1h30

Le cours et les notes personnelles sont autorisés.

Les questions 2 à 5(c) sont indépendantes de la question 1.

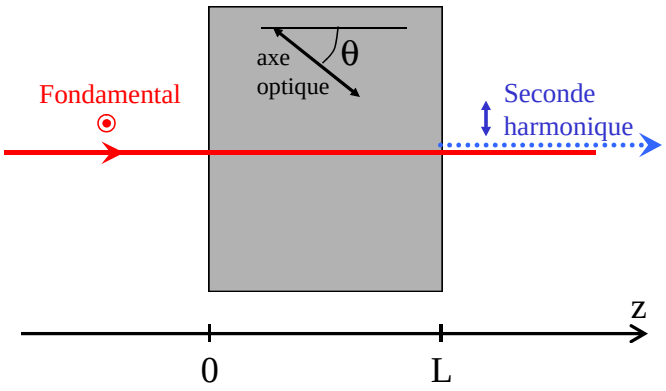
On s'intéresse dans ce problème au doublage de fréquence d'une impulsion ultracourte dans un cristal non-linéaire de KDP. Ce dernier est un cristal uniaxe dont les indices de réfraction ordinaire et extraordinaire sont reportés ci-dessous pour quelques valeurs de la longueur d'onde.

λ [nm]	n_o	n_e
390	1.5254	1.4810
400	1.5240	1.4798
410	1.5228	1.4788
750	1.5031	1.4642
800	1.5015	1.4633
850	1.5000	1.4625

La fréquence centrale de l'impulsion sera notée ω_0, correspondant à une longueur d'onde $\lambda_0 =$ 800nm.

1. *Les faces du cristal sont taillées de sorte que l'axe optique fasse un angle θ par rapport à la normale à la face d'entrée du cristal (et donc par rapport au faisceau incident supposé en incidence normale). Les conditions d'accord de phase sont assurées par biréfringence, le fondamental étant*

polarisé selon un axe ordinaire et la seconde harmonique étant dans le plan principal, comme indiqué sur la figure ci-dessous.



Exprimer l'indice de réfraction vu par la seconde harmonique, $n_e(\theta, 2\omega_0)$, d'une part en fonction de $n_o(2\omega_0)$ et $n_e(2\omega_0)$, et d'autre part en fonction de l'indice vu par le fondamental, $n_o(\omega_0)$ (l'accord de phase étant supposé vérifié pour la longueur d'onde centrale de l'impulsion). En déduire la valeur de l'angle θ. Application numérique.

L'indice $n_e(\theta, 2\omega_0)$ obéit à la relation

$$\frac{1}{n_e(\theta, 2\omega_0)^2} = \frac{\cos^2\theta}{n_o(2\omega_0)^2} + \frac{\sin^2\theta}{n_e(2\omega_0)^2}$$

Par ailleurs, la condition d'accord de phase s'écrit

$$2k_o(\omega_0) - k_{e,\theta}(2\omega_0) = 0$$

soit

$$2n_o(\omega_0)\frac{\omega_0}{c} = n_{e,\theta}(2\omega_0)\frac{2\omega_0}{c}$$

d'où l'on déduit la condition $n_e(\theta, 2\omega_0) = n_o(\omega_0)$. De ces deux conditions on déduit la relation

$$\frac{1}{n_o(\omega_0)^2} = \frac{\cos^2\theta}{n_o(2\omega_0)^2} + \frac{\sin^2\theta}{n_e(2\omega_0)^2}$$

d'où l'on déduit

$$\sin^2(\theta) = \frac{\frac{1}{n_o(\omega_0)^2} - \frac{1}{n_o(2\omega_0)^2}}{\frac{1}{n_e(2\omega_0)^2} - \frac{1}{n_o(2\omega_0)^2}}$$

L'application numérique donne $\sin^2\theta = 0.498$ et $\theta = 44.89° \approx 45°$.

Dans toute la suite, on supposera que le cristal est taillé selon l'angle calculé ci-dessus et que la condition d'accord de phase est donc vérifiée pour la longueur d'onde centrale de l'impulsion.

2. *On suppose que le processus de doublage est peu efficace, ce qui nous permet de négliger toute déplétion du fondamental dont la propagation est ainsi uniquement gouvernée par la dispersion dans*

le cristal. En déduire l'expression du champ complexe associé au fondamental $\mathcal{E}_1(z,\omega)$ *en fonction du champ à l'entrée du cristal* $\mathcal{E}_1(\omega) = \mathcal{E}_1(0,\omega)$ *et du vecteur d'onde* $k_1(\omega)$.

$$\mathcal{E}_1(z,\omega) = \mathcal{E}_1(\omega)\exp(ik_1(\omega)z)$$

où $k_1(\omega) = n_o(\omega)\omega/c$.

3.1 *Le champ associé à la seconde harmonique est noté* $\mathcal{E}_2(z,\omega) = \mathcal{A}_2(z,\omega)\exp(ik_2(\omega)z)$ *et on rappelle que l'équation de propagation s'écrit*

$$\frac{\partial \mathcal{A}_2}{\partial z} = \frac{i\omega}{2n_2(\omega)\epsilon_0 c}\mathcal{P}^{(2)}(z,\omega)\exp(-ik_2(\omega)z)$$

où

$$\mathcal{P}^{(2)}(z,t) = \frac{\epsilon_0}{4}\chi^{(2)}\mathcal{E}_1(z,t)^2$$

Montrer que

$$\mathcal{P}^{(2)}(z,\omega) = \frac{\epsilon_0\chi^{(2)}}{4}\int_{-\infty}^{+\infty}\mathcal{E}_1(\omega_1)\mathcal{E}_1(\omega-\omega_1)\exp(i(k_1(\omega_1)+k_1(\omega-\omega_1))z)\frac{d\omega_1}{2\pi}$$

$$\begin{aligned}
\mathcal{P}^{(2)}(z,t) &= \frac{\epsilon_0}{4}\chi^{(2)}\mathcal{E}_1(z,t)^2 \\
&= \frac{\epsilon_0}{4}\chi^{(2)}\int\int\mathcal{E}_1(z,\omega_1)\mathcal{E}_1(z,\omega_2)\exp(-i(\omega_1+\omega_2)t)\frac{d\omega_1}{2\pi}\frac{d\omega_2}{2\pi} \\
&= \frac{\epsilon_0}{4}\chi^{(2)}\int\left(\int\mathcal{E}_1(z,\omega_1)\mathcal{E}_1(z,\omega-\omega_1)\frac{d\omega_1}{2\pi}\right)\exp(-i\omega t)\frac{d\omega}{2\pi}
\end{aligned}$$

d'où

$$\begin{aligned}
\mathcal{P}^{(2)}(z,\omega) &= \frac{\epsilon_0}{4}\chi^{(2)}\int\mathcal{E}_1(z,\omega_1)\mathcal{E}_1(z,\omega-\omega_1)\frac{d\omega_1}{2\pi} \\
&= \frac{\epsilon_0}{4}\chi^{(2)}\int\mathcal{E}_1(\omega_1)\mathcal{E}_1(\omega-\omega_1)\exp(i(k_1(\omega_1)+k_1(\omega-\omega_1))z)\frac{d\omega_1}{2\pi}
\end{aligned}$$

3.2 *En déduire l'expression de* $\mathcal{A}_2(z,\omega)$.

L'équation de propagation devient

$$\frac{\partial \mathcal{A}_2}{\partial z} = \frac{i\omega\chi^{(2)}}{8n_2(\omega)c}\int\mathcal{E}_1(\omega_1)\mathcal{E}_1(\omega-\omega_1)\exp(i(k_1(\omega_1)+k_1(\omega-\omega_1))z)\frac{d\omega_1}{2\pi}\exp(-ik_2(\omega)z)$$

soit

$$\frac{\partial \mathcal{A}_2}{\partial z} = \frac{i\omega\chi^{(2)}}{8n_2(\omega)c}\int\mathcal{E}_1(\omega_1)\mathcal{E}_1(\omega-\omega_1)\exp(i\Delta k(\omega,\omega_1)z)\frac{d\omega_1}{2\pi}$$

où $\Delta k(\omega,\omega_1) = k_1(\omega_1) + k_1(\omega-\omega_1) - k_2(\omega)$. On en déduit

$$\mathcal{A}_2(z,\omega) = \frac{i\omega\chi^{(2)}}{8n_2(\omega)c}\int \mathcal{E}_1(\omega_1)\mathcal{E}_1(\omega-\omega_1)\frac{\exp(i\Delta k(\omega,\omega_1)z)-1}{i\Delta k(\omega,\omega_1)}\frac{d\omega_1}{2\pi}$$

4.1 *On s'intéresse (dans les questions 4.1 et 4.2 uniquement) au cas où le milieu serait non dispersif. Calculer la fonction $\mathcal{A}_2(z,\omega)$. Interpréter physiquement le résultat obtenu.*

On obtient le résultat demandé en prenant la limite de l'expression obtenue ci-dessus dans le cas où $\Delta k \to 0$, soit :

$$\mathcal{A}_2(z,\omega) = \frac{i\omega\chi^{(2)}z}{8n_2\epsilon_0 c}\int \mathcal{E}_1(\omega_1)\mathcal{E}_1(\omega-\omega_1)\frac{d\omega_1}{2\pi}$$

On peut interpréter physiquement le résultat obtenu de la manière suivante : le doublage d'une impulsion ultracourte est en fait la superposition de processus de somme de fréquences pour toutes les composantes spectrales contenues dans l'impulsion. Ainsi une fréquence ω peut résulter de processus du type $\omega_1 + (\omega - \omega_1) \to \omega$, où ω_1 est une composante spectrale quelconque de l'impulsion, ce qui explique l'intégrale dans l'expression obtenue. Par ailleurs, le préfacteur $i\omega$ correspond au fait que le champ rayonné est la dérivée première de la polarisation non-linéaire.

4.2 *Dans le cas d'une impulsion gaussienne limitée par transformée de Fourier, que peut-on dire de la largeur spectrale de l'impulsion doublée par rapport à celle de l'impulsion incidente ? (on supposera que la largeur spectrale reste faible devant ω_0). Que dire de la durée de l'impulsion doublée ?*

Si la largeur spectrale de l'impulsion est faible, on peut négliger la variation avec la fréquence du préfacteur ω. Le champ obtenu est donc simplement l'auto-convolution d'une gaussienne réelle, dont la largeur est $\sqrt{2}$ fois plus grande que la largeur du fondamental.

De même, l'impulsion doublée est $\sqrt{2}$ fois plus courte que l'impulsion incidente, ce qui résulte simplement du fait que la polarisation quadratique, proportionnelle au carré du champ incident, est $\sqrt{2}$ fois plus courte.

Dans la suite on notera $\mathcal{A}_{2,ND}(z,\omega)$ la valeur de $\mathcal{A}_2(z,\omega)$ obtenue ci-dessus.

5.1 *On revient au cas général d'un cristal dispersif, mais on supposera que la largeur spectrale des impulsions fondamentale et doublée est suffisamment faible pour que l'on puisse effectuer un développement limité, respectivement de $k_1(\omega)$ pour ω proche de ω_0 et de $k_2(\omega)$ pour ω proche de $2\omega_0$. Effectuer un développement limité de $k_1(\omega)$ (resp. $k_2(\omega)$) au premier ordre en $(\omega-\omega_0)$ (resp. $(\omega-2\omega_0)$) puis exprimer $\mathcal{A}_2(z,\omega)$ à l'aide de $\mathcal{A}_{2,ND}(z,\omega)$. On notera $\Delta k' = k_1'(\omega_0) - k_2'(2\omega_0)$.*

On a au premier ordre

$$k_1(\omega) \approx k_1(\omega_0) + k_1'(\omega_0)(\omega-\omega_0)$$

et

$$k_2(\omega) \approx k_2(2\omega_0) + k_2'(2\omega_0)(\omega-2\omega_0)$$

On en déduit

$$\begin{aligned}\Delta k(\omega,\omega_1) &= k_1(\omega_1)+k_1(\omega-\omega_1)-k_2(\omega)\\ &= k_1(\omega_0)+k_1'(\omega_0)(\omega_1-\omega_0)+k_1(\omega_0)+k_1'(\omega_0)(\omega-\omega_1-\omega_0)\\ &\qquad -k_2(2\omega_0)-k_2'(2\omega_0)(\omega-2\omega_0)\\ &= (k_1'(\omega_0)-k_2'(2\omega_0))(\omega-2\omega_0)\\ &= (\omega-2\omega_0)\Delta k'\end{aligned}$$

où l'on a utilisé la condition d'accord de phase pour la fréquence centrale, $2k_1(\omega_0)-k_2(2\omega_0)=0$.

On remarque qu'au premier ordre $\Delta k(\omega,\omega_1)$ ne dépend pas de la fréquence ω_1. On en déduit donc l'expression du champ émis

$$\begin{aligned}\mathcal{A}_2(z,\omega) &= \frac{i\omega\chi^{(2)}}{8n_2(\omega)\epsilon_0 c}\int \mathcal{E}_1(\omega_1)\mathcal{E}_1(\omega-\omega_1)\frac{\exp(i\Delta k(\omega,\omega_1)z)-1}{i\Delta k(\omega,\omega_1)}\frac{d\omega_1}{2\pi}\\ &= \frac{i\omega\chi^{(2)}}{8n_2(\omega)\epsilon_0 c}\int \mathcal{E}_1(\omega_1)\mathcal{E}_1(\omega-\omega_1)\frac{d\omega_1}{2\pi}\frac{\exp(i(\omega-2\omega_0)\Delta k'z)-1}{i(\omega-2\omega_0)\Delta k'}\\ &= \mathcal{A}_{2,ND}(z,\omega)\frac{\exp(i(\omega-2\omega_0)\Delta k'z)-1}{i(\omega-2\omega_0)\Delta k'z}\\ &= \mathcal{A}_{2,ND}(z,\omega)\ \exp(i(\omega-2\omega_0)\Delta k'z/2)\ \mathrm{sinc}((\omega-2\omega_0)\Delta k'z/2)\end{aligned}$$

5.2 *Calculer et représenter graphiquement le spectre obtenu en sortie de l'échantillon,* $|\mathcal{A}_2(L,\omega)|^2$.

$$|\mathcal{A}_2(L,\omega)|^2 = |\mathcal{A}_{2,ND}(L,\omega)|^2\ \mathrm{sinc}^2((\omega-2\omega_0)\Delta k'L/2)$$

5.3 *Déterminer une épaisseur caractéristique* L_0 *du cristal au delà de laquelle on obtient un rétrécissement spectral significatif, sachant que la largeur spectrale de l'impulsion incidente est* $\Delta\omega$. *Quelle est la conséquence sur la durée de l'impulsion doublée si* $L > L_0$ *? Discuter.*

Le premier zéro du sinus cardinal intervient lorsque $(\omega-2\omega_0)\Delta k'L/2=\pi$. L'impulsion doublée subira donc un rétrécissement spectral significatif lorsque $L > L_0$ où $\Delta\omega\Delta k'L_0 = 2\pi$, soit

$$L_0 = \frac{2\pi}{\Delta\omega\Delta k'}$$

Le rétrécissement spectral a bien entendu pour conséquence d'allonger l'impulsion doublée, qui sera donc plus longue que l'impulsion fondamentale si $L > L_0$. Pour de grandes valeurs de l'épaisseur, l'impulsion doublée aura une durée proportionnelle à l'épaisseur du cristal. En fait, on voit que la durée de l'impulsion produite, inversement proportionnelle à la largeur spectrale, est proportionnelle à $\Delta k'L = \Delta(L/v_g)$: c'est la différence entre les temps de traversée du cristal pour l'impulsion fondamentale et l'impulsion doublée. On voit ainsi que l'impulsion doublée aura une forme rectangulaire, le front avant correspondant à la contribution de la

face de sortie du cristal et le front arrière à la contribution de la face d'entrée, qui s'est propagée à une vitesse plus lente en raison de l'indice de groupe plus élevé à $2\omega_0$. On retrouve le fait que le champ dans le domaine spectral, transformée de Fourier d'une impulsion rectangulaire, aura la forme d'un sinus cardinal.

5.4 *Exprimer l'indice de groupe (défini par $n_g = c/v_g$) en fonction de l'indice de phase n et de sa dérivée par rapport à la longueur d'onde $dn/d\lambda$. Calculer numériquement les valeurs de l'indice de groupe pour le fondamental et la seconde harmonique à l'aide des données numériques disponibles. En déduire un ordre de grandeur de L_0 pour une impulsion de 100 fs.*

Le vecteur d'onde est défini par $k(\omega) = n(\omega)\omega/c$ donc $k'(\omega) = (\omega dn/d\omega + n(\omega))/c = 1/v_g$. On en déduit l'expression de l'indice de groupe $n_g = n + \omega dn/d\omega$. Or $\omega d/d\omega = -\lambda d/d\lambda$ donc $n_g = n - \lambda dn/d\lambda$. On peut en déduire une valeur approximative de l'indice de groupe $n_g(\lambda) = n(\lambda) - \lambda[n(\lambda + \delta\lambda/2) - n(\lambda + \delta\lambda/2)]/\delta\lambda$. En prenant $\theta = 45°$, on obtient

λ [nm]	n_o	n_e	$n_e(\theta)$	$n_{o,g}$	$n_{e,g}(\theta)$
390	1.5254	1.4810	1.5027		
400	1.5240	1.4798	1.5014		1.5494
410	1.5228	1.4788	1.5003		
750	1.5031	1.4642			
800	1.5015	1.4633		1.5263	
850	1.5000	1.4625			

D'où $\Delta n_g = -0.023$ et $\Delta k' = \Delta n_g/c = -77$fs/mm. $L_0 \approx \Delta t/\Delta k'$ soit $L_0 \approx 1$mm. Si l'on veut doubler une impulsion de 100 fs sans l'allonger, il faudra donc utiliser un cristal d'épaisseur inférieure à 1 mm.

D.4 Génération de troisième harmonique (2004)

Durée : 1h30

Le cours et les notes personnelles sont autorisés.

On s'intéresse dans ce problème à la génération de troisième harmonique (ou triplement de fréquence) dans un milieu non-linéaire liquide pour un faisceau gaussien monochromatique de fréquence ω_1 associé au vecteur d'onde $k_1 = n_1\omega_1/c$. La fréquence et le vecteur d'onde du faisceau triplé seront notés respectivement $\omega_3 = 3\,\omega_1$ et $k_3 = n_3\omega_3/c$. Dans toute la suite le taux de conversion du fondamental vers la troisième harmonique sera supposé très inférieur à 1. Le champ électrique est noté selon l'usage $E_n = (\mathcal{E}_n + \mathcal{E}_n^*)/2$ avec $\mathcal{E}_n(x, y, z) = \mathcal{A}_n(x, y, z)\exp(ik_n z)$, où $n = 1$ pour le fondamental et $n = 3$ pour la troisième harmonique. $\mathcal{A}_n(x, y, z)$ est l'enveloppe complexe du champ électrique. On supposera que le faisceau se propage selon l'axe z et on effectuera l'approximation paraxiale.

1. *Expliquer pour quelle raison on a pu ignorer ci-dessus le processus de doublage de fréquence.*

Par symétrie, il ne peut y avoir de doublage de fréquence dans un milieu liquide.

2. *Etablir les équations de propagation du fondamental et de la troisième harmonique dans le cadre de l'approximation paraxiale.*

L'hypothèse d'un taux de conversion très inférieure à 1 nous permet de supposer que les perturbations au champ incident, soit par effet Kerr optique, soit par reconversion par différence de fréquence $\omega_3 - \omega_1 - \omega_1$, pourront être négligées. On peut donc directement utiliser l'équation de propagation paraxiale vue en cours dans le cas de l'optique linéaire (éq. 1.53), soit :

$$\frac{\partial^2 \mathcal{A}_1}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{A}_1}{\partial y^2} + 2ik_1 \frac{\partial \mathcal{A}_1}{\partial z} = 0 \tag{D.1}$$

Pour établir l'équation de propagation de la troisième harmonique, il est nécessaire de déterminer le terme pertinent dans la polarisation non-linéaire du troisième ordre. Celle-ci s'écrit

$$P^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} \left(\frac{\mathcal{A}_1 e^{ik_1 z} + \mathcal{A}_1^* e^{-ik_1 z}}{2} \right)^3 = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} \mathcal{A}_1^3 \exp(i3k_1 z) + ...$$

La polarisation complexe associé au processus de génération de troisième harmonique s'écrit donc

$$\mathcal{P}_3^{(3)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} \mathcal{A}_1^3 \exp(i3k_1 z)$$

En remplaçant cette expression dans l'éq. 3.5 du cours, on obtient l'équation de propagation de la troisième harmonique

$$\frac{\partial^2 \mathcal{A}_3}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{A}_3}{\partial y^2} + 2ik_3 \frac{\partial \mathcal{A}_3}{\partial z} = -\frac{\omega_3^2 \chi^{(3)}}{4c^2} \mathcal{A}_1(x,y,z)^3 \exp(i\Delta k z) \tag{D.2}$$

avec $\Delta k = 3k_1 - k_3$.

3.1 *On s'intéresse aux questions 3.1 et 3.2 au cas où le faisceau fondamental et le faisceau triplé sont des ondes planes, soit $\mathcal{A}_1(x,y,z) = A_0$ et $\mathcal{A}_3(x,y,z) = \mathcal{A}_3(z)$. Exprimer dans ce cas l'équation de propagation pour l'enveloppe $\mathcal{A}_3(z)$. On résoudra cette équation dans le cas d'un milieu d'épaisseur L compris entre $z = 0$ et $z = L$.*

L'équation de propagation de la troisième harmonique devient simplement

$$2ik_3 \frac{d\mathcal{A}_3}{dz} = -\frac{\omega_3^2 \chi^{(3)}}{4c^2} A_0^3 exp(i\Delta k z)$$

ce qui s'intègre aisément en

$$\mathcal{A}_3(z) = e^{i\Delta k z/2} \frac{i\omega_3 \chi^{(3)} A_0^3}{4in_3 c \Delta k} \sin \frac{\Delta k z}{2}$$

Dans le cas où $\Delta k = 0$, on obtient simplement

$$\mathcal{A}_3(z) = \frac{i\omega_3 \chi^{(3)} A_0^3}{8in_3 c} \, z$$

3.2 *Représenter graphiquement l'intensité produite $I_3(L) = |\mathcal{A}_3(L)|^2$, en distinguant les cas $\Delta k = 0$ et $\Delta k \neq 0$.*

Dans le cas où $\Delta k = 0$, on obtient

$$I_3(L) = \left(\frac{\omega_3 \chi^{(3)} A_0^3}{8 i n_3 c}\right)^2 L^2$$

soit une variation quadratique avec l'épaisseur de l'échantillon.

Dans le cas où $\Delta k \neq 0$, on obtient

$$I_3(L) = \left(\frac{\omega_3 \chi^{(3)} A_0^3}{4 n_3 c \Delta k}\right)^2 \sin^2 \frac{\Delta k L}{2}$$

soit une variation sinusoïdale avec l'épaisseur de l'échantillon.

Ce comportement est totalement analogue à celui obtenu pour le doublage de fréquence en régime de faible conversion (voir la section 3.2.3 du cours).

4. *On rappelle que le faisceau gaussien décrit par l'enveloppe complexe*

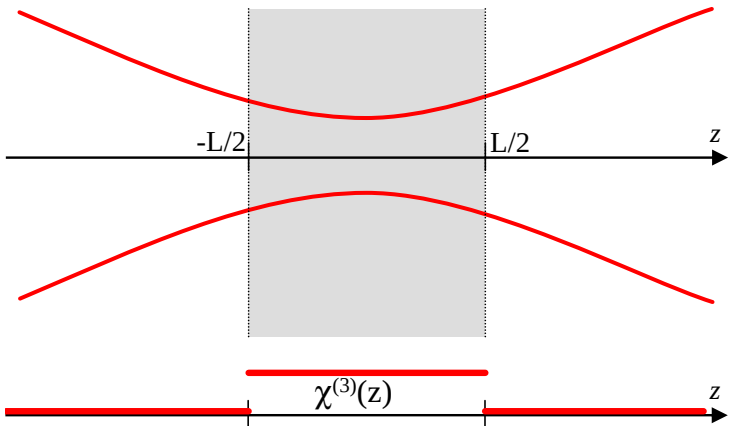
$$\mathcal{A}_1(x,y,z) = A_0 \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{k_1 w_0}{2 i \tilde{q}(z)} \exp\left(i k_1 \frac{x^2+y^2}{2\tilde{q}(z)}\right) \tag{D.3}$$

est solution de l'équation de propagation du fondamental, avec $\tilde{q}(z) = z - i z_R$. *On prendra* A_0 *réel.*

Déterminer la phase de Gouy, notée $-\psi_1(z)$, *définie comme la phase de l'enveloppe au centre du faisceau* ($x = y = 0$).

L'enveloppe au centre du faisceau est proportionnelle à $\frac{1}{i(z - i z_R)} = 1/(z_R + iz) \propto \exp(-i\psi_1(z))$ où $\psi_1(z) = \arctan(z/z_R)$. La phase de Gouy, variant entre $-\pi/2$ et $+\pi/2$ est associée au changement de phase de π lors de la traversée du foyer par le faisceau gaussien.

5. Dans cette question, on suppose que la condition d'accord de phase est réalisée, soit $\Delta k = 0$. On considère en outre le cas où les faisceaux fondamental et triplé se propagent dans un milieu stratifié de sorte que la susceptibilité non-linéaire n'est pas homogène mais dépend de la coordonnée z. Il pourra s'agir par exemple d'un milieu liquide compris entre deux hublots en verre supposés semi-infinis comme représenté sur la figure ci-dessous.



On supposera que les indices de réfraction n_1 et n_3 sont identiques dans le verre et le liquide, de sorte que les équations de propagation restent valables à condition de remplacer $\chi^{(3)}$ par une fonction supposée connue $\chi^{(3)}(z)$. Ainsi la fonction $\mathcal{A}_1(x,y,z)$ discutée à la question précédente reste solution de l'équation de propagation et sera utilisée dans toute la suite.

5.1 *Vérifier que l'expression*

$$\mathcal{A}_3(x,y,z) = f(z)\frac{z_R}{i\tilde{q}(z)}\exp\left(ik_3\frac{x^2+y^2}{2\tilde{q}(z)}\right) \tag{D.4}$$

est solution de l'équation de propagation et établir l'équation différentielle dont doit être solution la fonction $f(z)$. Dans la suite, on pourra appeller ξ le préfacteur indépendant de z apparaissant dans le second membre de cette équation.

L'approche proposée pour résoudre l'équation différentielle est tout simplement la méthode de la constante variable : en effet, pour $f(z)$ constant on a un faisceau gaussien qui est évidemment solution de l'équation de propagation sans second membre.

Calculons d'abord le laplacien transverse de $\mathcal{A}_3(x,y,z)$:

$$\frac{\partial \mathcal{A}_3}{\partial x} = \frac{ik_3 x}{\tilde{q}}\mathcal{A}_3$$

$$\frac{\partial^2 \mathcal{A}_3}{\partial x^2} = \left(\frac{ik_3}{\tilde{q}} - \frac{k_3^2 x^2}{\tilde{q}^2}\right)\mathcal{A}_3$$

$$\frac{\partial^2 \mathcal{A}_3}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{A}_3}{\partial y^2} = \left(\frac{2ik_3}{\tilde{q}} - \frac{k_3^2(x^2+y^2)}{\tilde{q}^2}\right)\mathcal{A}_3$$

Calculons maintenant la dérivée de $\mathcal{A}_3(x,y,z)$ par rapport à z :

$$\frac{\partial \mathcal{A}_3}{\partial z} = \left(\frac{f'}{f} - \frac{\tilde{q}'}{\tilde{q}} - \frac{ik_3\tilde{q}'}{2\tilde{q}^2}(x^2+y^2)\right)\mathcal{A}_3$$

Sachant que $\tilde{q}'(z) = 1$, on en déduit

$$\frac{\partial^2 \mathcal{A}_3}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{A}_3}{\partial y^2} + 2ik_3 \frac{\partial \mathcal{A}_3}{\partial z} = 2ik_3 \frac{f'}{f} \mathcal{A}_3 = \frac{2k_3 z_R}{\tilde{q}(z)} f'(z) \exp\left(ik_3 \frac{x^2+y^2}{2\tilde{q}(z)}\right)$$

En remplaçant dans l'équation de propagation de la troisième harmonique, on obtient

$$\frac{2k_3 z_R}{\tilde{q}(z)} f'(z) \exp\left(ik_3 \frac{x^2+y^2}{2\tilde{q}(z)}\right) = -\frac{\omega_3^2 \chi^{(3)}(z)}{4c^2} \mathcal{A}_1(x,y,z)^3$$

En remplaçant $\mathcal{A}_1(x,y,z)$ par sa valeur, on obtient

$$\frac{2k_3 z_R}{\tilde{q}(z)} f'(z) \exp\left(ik_3 \frac{x^2+y^2}{2\tilde{q}(z)}\right) = -\frac{\omega_3^2 \chi^{(3)}(z)}{4c^2} A_0^3 \left(\frac{2}{\pi}\right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{k_1 w_0}{2i\tilde{q}(z)}\right)^3 \exp\left(i3k_1 \frac{x^2+y^2}{2\tilde{q}(z)}\right)$$

Sachant que $k_3 = 3k_1$ et $\tilde{q}(z) = z - iz_R$, on en déduit

$$\frac{df}{dz} = -\frac{\omega_3}{8n_3 c z_R} A_0^3 \left(\frac{2}{\pi}\right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{k_1 w_0}{2i}\right)^3 \frac{\chi^{(3)}(z)}{(z-iz_R)^2}$$

En posant

$$\xi = \frac{\omega_3}{8n_3 c z_R} A_0^3 \left(\frac{2}{\pi}\right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{k_1 w_0}{2i}\right)^3$$

on obtient l'équation

$$\frac{df}{dz} = -\xi \frac{\chi^{(3)}(z)}{(z-iz_R)^2}$$

5.2 *Déterminer $f(z)$ dans le cas où $\chi^{(3)}(z)$ prend la valeur constante notée $\chi^{(3)}$ à l'intérieur de l'intervalle $[-L/2, L/2]$ et est nul en dehors de cet intervalle (L étant l'épaisseur de la cuve utilisée). On prendra comme condition initiale $f(-\infty) = 0$.*

On a

$$f(z) = -\xi \int_{-\infty}^{z} \frac{\chi^{(3)}(z')}{(z'-iz_R)^2} dz'$$

soit :

$$\begin{aligned}
f(z) &= 0 \text{ pour } z \le -L/2 \\
f(z) &= \xi\chi^{(3)} \left(\frac{1}{z-iz_R} - \frac{1}{-\frac{L}{2}-iz_R}\right) \text{ pour } -L/2 \le z \le L/2 \\
f(z) &= f(L/2) = \xi\chi^{(3)} \frac{L}{(L/2)^2 + z_R^2} \text{ pour } z \ge L/2
\end{aligned}$$

5.3 *On considère ici le cas limite où $L << z_R$. Comment varie la puissance produite $|f(L/2)|^2$ avec l'épaisseur L ? Interpréter ce résultat par une comparaison que l'on justifiera physiquement avec le calcul effectué à la question 3.*

Lorsque $L << z_R$, on a $f(L/2) \approx \xi\chi^{(3)}L/Z_r^2$. La puissance produite est donc proportionnelle à L^2, exactement comme dans le cas d'une onde plane à l'accord de phase. Ceci peut s'interpréter physiquement par le fait que le rayon de courbure $R(z) = z + z_R^2/z$ est infini lorsque $|z| << z_R$, ce qui permet de considérer que le faisceau fondamental dans l'échantillon est proche d'une onde plane.

5.4 *On considère le cas limite inverse où $L \to +\infty$ (milieu homogène). Représenter la puissance produite $|f(z)|^2$ en fonction de z. Que dire de la puissance en sortie de l'échantillon ? Donner une interprétation physique de ce résultat* a priori *surprenant.*

Si l'on fait tendre L vers l'infini, on obtient

$$f(z) = \xi\chi^{(3)}\frac{1}{z - iz_R}$$

soit une puissance

$$|f(z)|^2 = |\xi|^2\left(\chi^{(3)}\right)^2\frac{1}{z^2 + z_R^2}$$

qui présente une variation lorentzienne. La puissance augmente jusqu'à $z = 0$ puis décroit pour tendre vers zéro lorsque $z \to +\infty$. La génération de troisième harmonique produite par un faisceau focalisé dans un milieu non-linéaire homogène est égale à zéro !

Ce résultat étonnant provient d'un processus d'interférence destructive entre la production de troisième harmonique pour $z < 0$ et pour $z > 0$. En effet, la phase de Gouy du faisceau produit obéit à la loi $\psi_3(z) = \arctan(z/z_R) = \psi_1(z)$. Or la polarisation non-linéaire d'ordre 3 présente une phase qui est égale à trois fois la phase de Gouy du fondamental. Il y a donc un déphasage dépendant de z entre l'onde produite et le terme source qui résulte en une interférence destructive, de façon similaire à ce qui se produit en ondes planes lorsque la condition d'accord de phase n'est pas vérifiée.

5.5 *Dans le cas général, représenter la puissance produite en fonction de L et commenter la courbe obtenue. Pour quelle valeur de L a-t-on la puissance maximale ?*

On obtient

$$|f(L/2)|^2 = \left(|\xi|\chi^{(3)}\right)^2\left(\frac{L}{(L/2)^2 + z_R^2}\right)^2$$

Cette fonction croît comme L^2 au voisinage de $L = 0$, tend vers 0 en $1/L^2$ lorsque L tend vers l'infini, et admet un maximum en $L = 2z_R$. Cette épaisseur correspond à un compromis entre croissance quadratique du signal et décroissance due à la phase de Gouy qui devient le processus prédominant dès que $L >> z_R$. Il existe donc une dimension $(2z_R)$ qui donnera un maximum de signal. Cette propriété est par exemple utilisée en microscopie par génération de troisième harmonique, technique qui produit ainsi des informations complémentaires de celles que l'on peut tirer d'une image obtenue par excitation à deux photons de la fluorescence.

6. *On considère maintenant le cas d'un milieu homogène dans lequel l'accord de phase n'est pas réalisé ($\Delta k \neq 0$). On admet que, dans le cadre de l'approximation paraxiale, on peut continuer à supposer $k_3 = 3k_1$ à condition de simplement remplacer la fonction $\chi^{(3)}(z)$ introduite ci-dessus*

par $\chi^{(3)}\exp(i\Delta kz)$. *Calculer et représenter graphiquement en fonction de* Δk *la puissance produite* $|f(+\infty)|^2$. *Déterminer la valeur de* Δk *correspondant à la puissance maximale produite. Interpréter physiquement le résultat obtenu.* NB : On utilisera l'identité suivante, que l'on pourra démontrer à l'aide du théorème des résidus :

$$\begin{aligned}\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{\exp(i\Delta kz)}{(z-iz_R)^2}dz &= -2\pi\Delta k\exp(-\Delta kz_R)\text{ si }\Delta k\geq 0\\ &= 0\text{ si }\Delta k\leq 0\end{aligned}$$

Pour démontrer l'identité ci-dessus, il suffit d'appliquer la relation d'analyse complexe

$$f'(z_0)=\frac{1}{2i\pi}\oint\frac{f(z)dz}{(z-z_0)^2} \tag{D.5}$$

à la fonction $f(z)=\exp(i\Delta kz)$. Si Δk est positif, on ferme le contour par un demi-cercle de partie imaginaire positive et on obtient l'expression demandée avec $z_0=iz_R$. Si Δk est négatif, il faut fermer le contour avec un demi-cercle de partie imaginaire négative et l'absence de pôle conduit à une intégrale nulle.

On obtient alors aisément

$$f(+\infty)=-\xi\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{\chi^{(3)}\exp(i\Delta kz)}{(z-iz_R)^2}dz=2\pi\xi\chi^{(3)}\Delta k\exp(-\Delta kz_R)$$

pour $\Delta k\leq 0$ et 0 pour $\Delta k<0$. La puissance produite présente donc un maximum lorsque $\Delta kz_R=1$.

On peut comprendre ce résultat en considérant la phase du terme source de l'équation de propagation de $\mathcal{A}_3$. Celle-ci s'écrit $\Delta kz-3\psi_1(z)$. Si l'on retranche la phase de Gouy de l'onde engendrée, $-\psi_3(z)=-\psi_1(z)$, on voit que la phase s'écrit $\Delta kz-2\psi_1(z)$, avec $\psi_1(z)=\arctan(z/z_R)$. Le calcul précédent montre que pour $\Delta k=1/z_R$ ces deux phases se compensent au mieux. On peut noter que la pente à l'origine du terme de Gouy est alors de signe contraire mais deux fois plus important en valeur absolue que Δk. La "moyenne" de la phase de Gouy le long du profil du faisceau compense alors en partie le désaccord de phase.

Pour en savoir plus, consulter les articles de Kleinman [55] et Ward et New [56].

D.5 Addition de photons jumeaux (2006)

Durée : 3h

Le cours et les notes personnelles sont autorisés.

Problème proposé par Manuel Joffre, Michel Brune et Jean-Michel Courty

Partie I - Optique classique

1.1 Addition de fréquences entre deux impulsions brèves

On s'intéresse au processus d'addition de fréquences dans un cristal de susceptibilité non-linéaire $\chi^{(2)}$ entre deux impulsions brèves associées aux champs complexes $\mathcal{E}_1(z,\omega)$ et $\mathcal{E}_2(z,\omega)$. On suppose que ces deux impulsions ont la même fréquence centrale qui sera notée ω_0. On appelle $\mathcal{E}_3(z,\omega)$ le champ produit à la fréquence somme. On appellera $k_1(\omega)$, $k_2(\omega)$ et $k_3(\omega)$ les vecteurs d'onde dans le cristal pour les trois ondes considérées.

1.1.1 *On suppose que les énergies des impulsions sont suffisamment faibles pour qu'on puisse négliger la déplétion des champs $\mathcal{E}_1$ et $\mathcal{E}_2$. Ecrire l'expression de $\mathcal{E}_1(z,\omega)$ et $\mathcal{E}_2(z,\omega)$ en fonction de $\mathcal{E}_1(\omega) = \mathcal{E}_1(0,\omega)$ et $\mathcal{E}_2(\omega) = \mathcal{E}_2(0,\omega)$.*

On obtient

$$\mathcal{E}_1(z,\omega) = \mathcal{E}_1(\omega)\exp(ik_1(\omega)z)$$

et

$$\mathcal{E}_2(z,\omega) = \mathcal{E}_2(\omega)\exp(ik_2(\omega)z)$$

1.1.2 *Ecrire le terme pertinent de la polarisation non-linéaire du second ordre intervenant dans l'équation de propagation de $\mathcal{E}_3(z,\omega)$.*

On écrit

$$P^{(2)}(z,t) = \frac{\epsilon_0\chi^{(2)}}{4}\left(\mathcal{E}_1(z,t) + \mathcal{E}_2(z,t) + \mathcal{E}_1^*(z,t) + \mathcal{E}_2^*(z,t)\right)^2$$

On en déduit le terme pertinent pour l'addition de fréquences (en notation complexe)

$$\mathcal{P}^{(2)}(z,t) = \epsilon_0\chi^{(2)}\mathcal{E}_1(z,t)\mathcal{E}_2(z,t)$$

1.1.3 *On pose $\mathcal{E}_3(z,\omega) = \mathcal{A}_3(z,\omega)\exp(ik_3(\omega)z)$. Ecrire l'équation de propagation dont est solution $\mathcal{A}_3(z,\omega)$ à l'aide d'un produit de convolution entre les champs $\mathcal{E}_1(\omega)$ et $\mathcal{E}_2(\omega)$.*

D'après l'éq. 3.6 du cours, on a

$$\frac{\partial\mathcal{A}_3(z,\omega)}{\partial z} = \frac{i\omega\chi^{(2)}}{2n_3(\omega)\epsilon_0 c}\int \mathcal{E}_1(\omega_1)\mathcal{E}_2(\omega-\omega_1)\exp\left(i(k_1(\omega_1) + k_2(\omega-\omega_1) - k_3(\omega))z\right)\frac{d\omega_1}{2\pi}$$

1.1.4 *Dans toute la suite, on suppose que les conditions d'accord de phase sont réalisées sur toute la bande spectrale des impulsions considérées. En effectuant une hypothèse sur les largeurs spectrales des champs $\mathcal{E}_1$ et $\mathcal{E}_2$, montrer que le champ en sortie du cristal non-linéaire s'écrit*

$$\mathcal{A}_3(L,\omega) = i\xi \int \mathcal{E}_1(\omega_1)\mathcal{E}_2(\omega-\omega_1)\frac{d\omega_1}{2\pi}$$

avec

$$\xi = \frac{\omega_0 \chi^{(2)} L}{n_3 \epsilon_0 c}$$

où L est l'épaisseur du cristal et n_3 est l'indice de réfraction à la fréquence $2\omega_0$ pour l'impulsion $\mathcal{E}_3$.

Si les conditions d'accord de phase sont supposées vérifiées, le terme en $\exp(i\Delta kz)$ disparaît. Par ailleurs, si l'on suppose que les largeurs spectrales des impulsions 1 et 2 sont très inférieures à ω_0, on peut négliger la variation de ω et de $n_3(\omega)$ dans le préfacteur de l'équation ci-dessus. On obtient alors

$$\frac{\partial \mathcal{A}_3(z,\omega)}{\partial z} = \frac{i2\omega_0\chi^{(2)}}{2n_3(2\omega_0)\epsilon_0 c}\int \mathcal{E}_1(\omega_1)\mathcal{E}_2(\omega-\omega_1)\frac{d\omega_1}{2\pi}$$

d'où l'on déduit immédiatement l'équation demandée.

1.1.5 *En déduire l'expression de $\mathcal{A}_3(L,t)$ en fonction de $\mathcal{E}_1(t)$ et $\mathcal{E}_2(t)$.*

La transformée de Fourier d'un produit de convolution étant un produit, on en déduit

$$\mathcal{A}_3(L,t) = i\xi\mathcal{E}_1(t)\mathcal{E}_2(t)$$

1.1.6 *En supposant que les impulsions $\mathcal{E}_1$ et $\mathcal{E}_2$ sont identiques, montrer que l'énergie de l'impulsion produite par addition de fréquences est proportionnelle au carré de l'énergie et à l'inverse de la durée des impulsions incidentes.*

Posons

$$|\mathcal{E}_1(t)|^2 = |\mathcal{E}_2(t)|^2 = \frac{W}{\Delta t} f\left(\frac{t}{\Delta t}\right)$$

où $f(t)$ est une fonction donnée d'intégrale égale à 1. On vérifie que

$$\int |\mathcal{E}_1(t)|^2 dt = \frac{W}{\Delta t}\int f\left(\frac{t}{\Delta t}\right)dt = W\int f(t)dt = W$$

est bien l'énergie de l'impulsion incidente. Alors l'énergie produite s'écrit

$$W_3 = \int |\mathcal{A}_3(L,t)|^2 dt = \left(\frac{W}{\Delta t}\right)^2 \int f\left(\frac{t}{\Delta t}\right)^2 dt = \frac{W^2}{\Delta t}\int f(t)^2 dt$$

d'où l'on déduit le résultat demandé.

1.1.7 *Les spectres $|\mathcal{E}_1(\omega)|^2$ et $|\mathcal{E}_2(\omega)|^2$ étant fixés, montrer que l'énergie totale de l'impulsion produite est toujours inférieure ou égale à ce que l'on obtiendrait pour des impulsions limitées par transformée de Fourier.*

D'après la question 1.1.4, on a

$$|\mathcal{A}_3(L,\omega)| = \xi \left| \int \mathcal{E}_1(\omega_1)\mathcal{E}_2(\omega-\omega_1)\frac{d\omega_1}{2\pi} \right| \leq \xi \int |\mathcal{E}_1(\omega_1)||\mathcal{E}_2(\omega-\omega_1)|\frac{d\omega_1}{2\pi}$$

qui est la valeur que l'on aurait obtenu pour des impulsions de phase spectrale nulle. $|\mathcal{A}_3(L,\omega)|$ est donc toujours majoré par le résultat obtenu avec des impulsions limitées par transformée de Fourier. Il en va évidemment de même pour l'énergie totale qui est $\int |\mathcal{A}_3(L,\omega)|^2 d\omega$.

1.1.8 *Donner une condition nécessaire et suffisante sur les phases spectrales $\varphi_1(\omega)$ et $\varphi_2(\omega)$ des impulsions incidentes pour que la densité spectrale d'énergie $|\mathcal{A}_3(L,2\omega_0)|^2$ produite à la fréquence $2\omega_0$ soit identique à ce que l'on obtiendrait pour des impulsions limitées par transformée de Fourier.*

Pour que $|\mathcal{A}_3(L,2\omega_0)|^2$ atteigne sa borne supérieure, il faut et il suffit que le terme à intégrer ait une phase constante, soit

$$\varphi_1(\omega_1) + \varphi_2(2\omega_0 - \omega_1) = Cste$$

1.2 Amplification paramétrique

On considère un amplificateur paramétrique constitué d'un matériau de susceptibilité non-linéaire $\chi^{(2)}$ pompé par un faisceau laser continu associé au champ $\mathcal{E}_P(t) = E_P \exp(-2i\omega_0 t)$, où E_P est une grandeur réelle. On injecte comme signal une impulsion brève de fréquence centrale ω_0 et associée au champ $\mathcal{E}_S(t)$. On n'injecte pas de lumière sur la voie complémentaire, correspondant à une direction de polarisation perpendiculaire à celle du signal. On supposera que la déplétion du champ de pompe peut être négligée. On appellera $k_S(\omega)$, $k_C(\omega)$ et k_P les vecteurs d'onde dans le cristal non-linéaire pour les ondes signal, complémentaire et pompe. On posera $\mathcal{E}_S(z,\omega) = \mathcal{A}_S(z,\omega)\exp(ik_S(\omega)z)$ et $\mathcal{E}_C(z,\omega) = \mathcal{A}_C(z,\omega)\exp(ik_C(\omega)z)$. On admettra que compte tenu de la nature tensorielle de l'interaction non-linéaire, les polarisations non-linéaire à prendre en compte pour les propagations des champs signal et complémentaire sont respectivement

$$\mathcal{P}_S^{(2)}(z,t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E_P \exp(i(k_P z - 2\omega_0 t))\mathcal{E}_C^*(z,t)$$

et

$$\mathcal{P}_C^{(2)}(z,t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E_P \exp(i(k_P z - 2\omega_0 t))\mathcal{E}_S^*(z,t)$$

1.2.1 *Ecrire les équations de propagation pour les enveloppes $\mathcal{A}_S(z,\omega)$ et $\mathcal{A}_C(z,\omega)$ des champs signal et complémentaire.*

D'après l'éq. 3.6 du cours, on a

$$\frac{\partial \mathcal{A}_S}{\partial z} = \frac{i\omega\chi^{(2)}E_P}{2n_S(\omega)c}\mathcal{A}_C^*(z,2\omega_0-\omega)\exp(i(k_P-k_S(\omega)-k_C(2\omega_0-\omega)z)$$

et

$$\frac{\partial \mathcal{A}_C}{\partial z} = \frac{i\omega\chi^{(2)}E_P}{2n_C(\omega)c}\mathcal{A}_S^*(z,2\omega_0-\omega)\exp(i(k_P-k_C(\omega)-k_S(2\omega_0-\omega)z)$$

1.2.2 *On suppose la condition d'accord de phase vérifiée sur l'ensemble de la bande spectrale du signal et du complémentaire, et on effectue les mêmes approximations qu'à la question 1.1.4. Pour simplifier, on suppose de plus que les indices de réfraction pour le signal et le complémentaire sont identiques. En déduire le système d'équation*

$$\begin{aligned}\frac{\partial \mathcal{A}_S(z,\omega)}{\partial z} &= ig\mathcal{A}_C^*(z,2\omega_0-\omega)\\ \frac{\partial \mathcal{A}_C(z,\omega)}{\partial z} &= ig\mathcal{A}_S^*(z,2\omega_0-\omega)\end{aligned}$$

où g est une grandeur constante que l'on déterminera.

On obtient le résultat demandé avec

$$g = \frac{\omega_0\chi^{(2)}E_P}{2n_Sc}$$

où $n_S = n_C$ est l'indice de réfraction pour le signal et le complémentaire.

1.2.3 *Résoudre le système d'équations ci-dessus en supposant $\mathcal{A}_S(0,\omega) = \mathcal{E}_S(\omega)$ et $\mathcal{A}_C(0,\omega) = 0$.*

On obtient

$$\begin{aligned}\mathcal{A}_S(z,\omega) &= \mathcal{E}_S(\omega)\cosh(gz)\\ \mathcal{A}_C(z,\omega) &= i\mathcal{E}_S^*(2\omega_0-\omega)\sinh(gz)\end{aligned}$$

1.2.4 *On utilise les champs signal et complémentaire calculés ci-dessus comme champs $\mathcal{E}_1$ et $\mathcal{E}_2$ du processus d'addition de fréquence étudié à la partie 1.1. Que peut-on dire de la condition établie à la question 1.1.8 ? L'energie produite à la fréquence $2\omega_0$ dépend-elle de la phase spectrale de l'impulsion amplifiée par l'amplificateur paramétrique ?*

On remarque que $\varphi_C(\omega) = \pi/2 - \varphi_S(2\omega_0-\omega)$. On a donc $\varphi_1(\omega_1) + \varphi_2(2\omega_0-\omega_1) = \pi/2$. L'addition de fréquence vers la fréquence de pompe ne dépend pas de la phase spectrale du signal et est toujours aussi efficace qu'avec une impulsion limitée par transformée de Fourier.

Partie II - Optique quantique

Dans toute cette partie, on se placera en représentation de Heisenberg. On notera ainsi $a(t)$ l'opérateur a à l'instant t. On aura naturellement $a(0) = a$.

On rappelle que l'équation de Heisenberg qui donne l'évolution d'un opérateur O sous l'effet d'un Hamiltonien $H(t)$ est

$$i\hbar \frac{dO(t)}{dt} = [O(t), H(t)]$$

2.1 Addition de fréquences

On suppose dans cette partie que deux faisceaux lumineux de fréquences ω_s et ω_c interagissent dans un cristal non-linéaire pour produire un faisceau à la fréquence somme $\Omega = \omega_s + \omega_c$. L'accord de phase est réalisé en géométrie colinéaire, comme représenté ci-dessous.

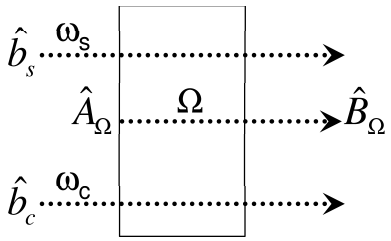


Figure 1

On appellera b_s, b_c et A_Ω les opérateurs de destruction associés aux trois modes correspondants. Le processus d'addition de fréquence est modélisé par une interaction de durée T gouvernée par le hamiltonien $H = H_0 + W$ avec

$$\begin{aligned} H_0 &= \hbar\omega_s b_s^+ b_s + \hbar\omega_c b_c^+ b_c + \hbar\Omega A_\Omega^+ A_\Omega \\ W &= \hbar\zeta \left(A_\Omega b_s^+ b_c^+ + A_\Omega^+ b_s b_c \right) \end{aligned}$$

2.1.1 *Ecrire (en représentation de Heisenberg) l'équation d'évolution des opérateurs $b_s(t)$, $b_c(t)$ et $A_\Omega(t)$ sous l'action du hamiltonien H.*

On obtient

$$\frac{db_s}{dt} = -i\omega_s b_s(t) - i\zeta A_\Omega(t) b_c^+(t)$$

$$\frac{db_c}{dt} = -i\omega_c b_c(t) - i\zeta A_\Omega(t) b_s^+(t)$$

$$\frac{dA_\Omega}{dt} = -i\Omega A_\Omega(t) - i\zeta b_s(t) b_c(t)$$

2.1.2 *On suppose que* $\zeta T \ll 1$ *ce qui permet de négliger la déplétion des modes* b_s *et* b_c. *On négligera donc le terme proportionnel à* ζ *dans leurs équations d'évolution. Résoudre les équations d'évolution de* $b_s(t)$ *et* $b_c(t)$ *à cette approximation.*

En remplaçant $b_{s,c}(t)$ par $b_{s,c}\exp(-i\omega_{s,c}t)$ dans l'équation d'évolution de $A_\Omega(t)$, on obtient

$$\frac{dA_\Omega}{dt} = -i\Omega A_\Omega(t) - i\zeta b_s b_c \exp(-i\Omega t)$$

Posons $A_\Omega(t) = \tilde{A}_\Omega(t)\exp(-i\Omega t)$. On obtient alors

$$\frac{d\tilde{A}_\Omega}{dt} = -i\zeta b_s b_c$$

soit $\tilde{A}_\Omega(t) = \tilde{A}_\Omega(0) - i\zeta t b_s b_c$, d'où l'on déduit le résultat demandé.

2.1.3 *Montrer que l'opérateur en sortie du cristal* $B_\Omega = A_\Omega(T)$ *s'écrit alors*

$$B_\Omega = A_\Omega(T) = e^{-i\Omega T}\left(A_\Omega - i\beta b_s b_c\right)$$

où $\beta = \zeta T$.

Immédiat.

2.1.4 *Dans cette question, on suppose que pour les modes* b_s *et* b_c *sont dans un état cohérent. En outre, le mode* A_Ω *est vide et les modes* b_s *et* b_c *ont chacun initialement un nombre de photons égal à* n *:* $n = \langle b_s^+(0)\, b_s(0)\rangle = \langle b_c^+(0)\, b_c(0)\rangle$. *Exprimer en fonction de* n *et de* β *la valeur moyenne* $N_\Omega = \left\langle A_\Omega^+(T)A_\Omega(T)\right\rangle$ *du nombre de photons produits à la fréquence* Ω *en sortie du cristal. Ce résultat est-il conforme au comportement attendu en optique classique ?*

On a par définition

$$\begin{aligned} b_s|\psi\rangle &= \alpha_s|\psi\rangle \\ b_c|\psi\rangle &= \alpha_c|\psi\rangle \\ A_\Omega|\psi\rangle &= 0 \end{aligned}$$

On obtient donc

$$B_\Omega|\psi\rangle = -i\zeta T e^{-i\Omega T} b_s b_c|\psi\rangle = -i\zeta T\alpha_s\alpha_c|\psi\rangle$$

Par ailleurs, les valeurs moyennes des nombres de photons s'écrivent $\langle\psi|b_s^+ b_s|\psi\rangle = |\alpha_s|^2 = n$ et $\langle\psi|b_c^+ b_c|\psi\rangle = |\alpha_c|^2 = n$. Le nombre de photons produits à la fréquence Ω s'écrit donc

$$N_\Omega = \||B_\Omega|\psi\rangle\|^2 = \beta^2|\alpha_s|^2|\alpha_c|^2 = \beta^2 n^2$$

Ce résultat est identique à celui attendu en optique classique : la puissance produite est proportionnelle au produit des puissances incidentes, ou au carré de la puissance incidente dans le cas de puissances identiques,

ce qui est peu surprenant pour un processus d'optique non-linéaire quadratique.

2.2 Fluorescence paramétrique

On considère le processus de fluorescence paramétrique où un cristal non-linéaire est pompé par un faisceau monochromatique de fréquence Ω. Ce faisceau, supposé intense et peu perturbé, sera décrit par un champ classique. Les conditions d'accord de phase dans le cristal utilisé sont telles que l'émission paramétrique n'est possible qu'en géométrie colinéaire, ce qui permet de supposer que tous les faisceaux se propagent selon un même axe z.

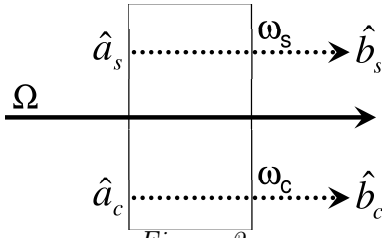


Figure 2

On considère en outre dans cette partie que seuls deux modes quantiques interviennent : le signal, associé à l'opérateur a_s, et le complémentaire, associé à l'opérateur a_c. Les fréquences respectives de ces deux modes sont ω_s et ω_c et vérifient la relation $\omega_s + \omega_c = \Omega$ (on supposera également $\omega_s \neq \omega_c$). Les seuls commutateurs non nuls sont donc $[a_s, a_s^+] = [a_c, a_c^+] = 1$. Le processus de fluorescence paramétrique est alors modélisé par une interaction de durée τ gouvernée, en représentation de Schrödinger, par le hamiltonien $H_S(t) = H_1 + V(t)$ avec

$$\begin{aligned} H_1 &= \hbar\omega_s a_s^+ a_s + \hbar\omega_c a_c^+ a_c \\ V(t) &= \hbar\xi \left(\exp(-i\Omega t) a_s^+ a_c^+ + \exp(i\Omega t) a_s a_c\right) \end{aligned}$$

où ξ est un nombre supposé réel et proportionnel à l'amplitude du champ de pompe (traité classiquement). Aucun photon de fréquence ω_s ou ω_c n'étant injecté à l'entrée du dispositif, l'état des modes signal et complémentaires est décrit par le vide $|0,0\rangle$.

2.2.1 *Ecrire en représentation de Heisenberg les équations d'évolution des opérateurs $a_s(t)$ et $a_c^+(t)$.*

On a les relations de commutation

$$[a_s, H_0] = \hbar\omega_s a_s$$

et

$$[a_s, V(t)] = \hbar\xi \exp(-i\Omega t) a_c^+$$

L'évolution temporelle de l'opérateur $a_s(t)$ se déduit de l'équation de Heisenberg

$$\frac{da_s(t)}{dt} = -i\omega_s a_s(t) - i\xi \exp(-i\Omega t) a_c^+(t)$$

On montre de même

$$\frac{da_c^+(t)}{dt} = i\omega_c a_c^+(t) + i\xi \exp(i\Omega t) a_s^+(t)$$

2.2.2 *On introduit les opérateurs*

$$\begin{aligned} \widetilde{a}_s(t) &= a_s(t)\exp(i\omega_s t) \\ \widetilde{a}_c(t) &= a_c(t)\exp(i\omega_c t). \end{aligned}$$

Ecrire le système d'équations portant sur $\widetilde{a}_s(t)$ *et* $\widetilde{a}_c^+(t)$.

On obtient

$$\frac{d\tilde{a}_s(t)}{dt} = -i\xi \tilde{a}_c^+(t)$$

et

$$\frac{d\tilde{a}_c^+(t)}{dt} = i\xi \tilde{a}_s(t)$$

2.2.3 *Montrer que la solution de ce systeme d'équations est:*

$$\begin{aligned} a_s(\tau) &= e^{-i\omega_s\tau}\left(a_s\cosh\theta - ia_c^+\sinh\theta\right) \\ a_c(\tau) &= e^{-i\omega_c\tau}\left(a_c\cosh\theta - ia_s^+\sinh\theta\right) \end{aligned}$$

où θ *est un parametre que l'on déterminera.*

Comme représenté sur la figure 2, on posera dans toute la suite du problème $b_s = a_s(\tau)$ *et* $b_c = a_c(\tau)$.

En dérivant deux fois (ou en diagonalisant), on en déduit aisément le résultat demandé.

2.2.4 *Déterminer le nombre de photons signal* $n_\mathrm{s} = \langle b_s^+ b_s\rangle$ *en sortie du générateur paramétrique et vérifier que ce nombre est égal au nombre de photons complémentaires* n_c.

Dans la suite du problème on notera $n = n_\mathrm{s} = n_\mathrm{c}$ *le nombre de paires de photons produites lors de ce processus.*

$$n = \langle 0|b_s^+ b_s|0\rangle = \||b_s|0\rangle\|^2 = \sinh^2\theta\,\left\||a_c^+|0\rangle\right\|^2 = \sinh^2\theta$$

On obtient la même valeur pour le nombre de photons complémentaires $\langle 0|b_c^+ b_c|0\rangle$. Ce résultat provient de la commutation avec le Hamiltonien de l'opérateur $a_s^+ a_s - a_c^+ a_c$, ce qui signifie que $a_s^+(t)a_s(t) - a_c^+(t)a_c(t)$ est une constante du mouvement.

2.3 Addition de fréquences entre photons jumeaux

On suppose maintenant que le faisceau de fluorescence paramétrique produit par le dispositif étudié à la partie 2.2 est injecté dans le dispositif d'addition de fréquences étudié à la partie 2.1, selon le schéma ci-dessous. On négligera le terme déphasage de b_s et b_c qui décrit la propagation entre les deux cristaux.

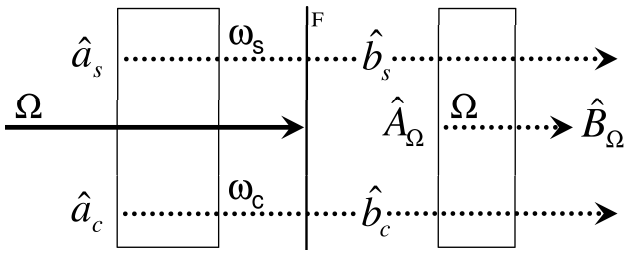


Figure 3

Le filtre F représenté ci-dessus est dichroïque (ce qui signifie que sa transmission dépend de la longueur d'onde) et permet de stopper totalement le faisceau de pompe tout en laissant passer les faisceaux signal et complémentaire. L'état initial du système est le vide pour les modes a_s, a_c et A_Ω. Les opérateurs b_s et b_c entrants dans le second cristal sont les opérateurs sortants du premier et ont été calculés à la partie 2.2.

2.3.1 *Montrer que le nombre moyen de photons produits à la fréquence Ω en sortie du second cristal s'écrit*

$$N_\Omega = \beta^2(n + 2n^2)$$

où n est le nombre de paires de photons jumeaux calculé à la question 1.2.5

$$N_\Omega = \|B_\Omega|0\rangle\|^2 = \|\zeta T b_s b_c|0\rangle\|^2$$

Or d'après la question 2.2.3,

$$\begin{aligned} b_s b_c|0\rangle &= e^{-i\Omega\tau}\left(a_s\cosh\theta - ia_c^+\sinh\theta\right)\left(a_c\cosh\theta - ia_s^+\sinh\theta\right)|0\rangle \\ &= e^{-i\Omega\tau}\left(-i\cosh\theta\sinh\theta a_s a_s^+|0\rangle - \sinh^2\theta a_c^+ a_s^+|0\rangle\right) \\ &= e^{-i\Omega\tau}\left(-i\cosh\theta\sinh\theta|0\rangle - \sinh^2\theta|1,1,0\rangle\right) \end{aligned}$$

et

$$\begin{aligned} N_\Omega &= \beta^2\left(\cosh^2\theta\sinh^2\theta + \sinh^4\theta\right) \\ &= \beta^2\left(\sinh^2\theta + 2\sinh^4\theta\right) \\ &= \beta^2\left(n + 2n^2\right) \end{aligned}$$

2.3.2 *Comparer ce résultat à ce qui était attendu en optique classique. On discutera les cas* $n \gg 1$ *et* $n \ll 1$. *Pouvez-vous suggérer une interprétation physique du résultat remarquable obtenu lorsque* $n \ll 1$ *?*

Dans le cas où $n \gg 1$, le terme en n^2 domine et on trouve un résultat quadratique comme en optique classique. A l'inverse, lorsque $n \ll 1$, c'est le terme linéaire qui devient prépondérant. Ce résultat remarquable s'explique par la forte corrélation entre les deux photons jumeaux. En optique classique, la probabilité de combinaison entre deux photons est simplement proportionnelle au produit entre les nombres de photons des deux faisceaux (comme en 1.1.6 et 2.1.4). Ici, les photons sont produits par paire et le taux de recombinaison est directement proportionnel au nombre de paires.

2.3.3 *L'expérience décrite dans ce problème a été récemment effectuée par B. Dayan et al. (Phys. Rev. Lett.* ***94****, 043602 (2005)). Commenter la figure ci-dessous représentant le nombre de photons détectés à la fréquence* Ω *en fonction du nombre de paires n (porté sur l'axe des abscisses supérieur).*

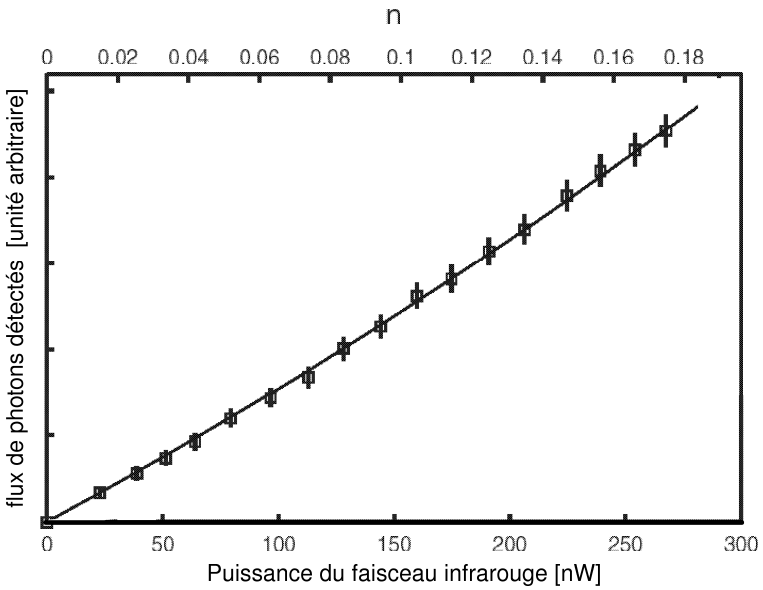


Figure 4

On observe bien une variation linéaire lorsque $n \ll 1$. En y regardant de plus près, on observe lorsque n augmente une légère déviation par rapport à la tangente à l'origine en raison de la contribution du terme en n^2.

2.3.4 *Quelle méthode utiliseriez-vous pour faire varier expérimentalement le nombre de paires n afin d'obtenir la courbe de la question 2.3.3*

Il suffit de faire varier la puissance de pompe qui est directement proportionnelle à ξ^2 et donc à θ^2.

2.4 Modèle multimode

L'objectif de cette question est de comprendre les résultats expérimentaux donnés par la figure 5. La situation etant très proche de ce qui se passe dans l'approche à deux modes développée plus

haut. On ne demande pas de refaire les calculs, mais de comprendre les résultats à la lumière de ce qui a été fait plus haut.

Plutot que de se restreindre à une seule paire de modes, nous souhaitons maintenant prendre en compte un quasi-continuum de modes correspondant aux photons se propageant dans la direction z, associés aux fréquences $\omega_l = l\ \delta\omega$, où l est entier et $\delta\omega$ est l'intervalle entre deux modes (égal par exemple à $2\pi c/D$ où D est une "longueur de quantification"). On a les relations de commutation habituelles $[a_l, a_{l'}^+] = \delta_{l,l'}$.

On suppose que le cristal est pompé par un champ classique de fréquence $\Omega = \omega_L = L\delta\omega$ où L est un nombre entier donné supposé impair. Le processus de fluorescence paramétrique est comme précédemment modélisé par une interaction de durée τ gouvernée par le hamiltonien dépendant du temps en représentation de Schrödinger: $H_S(t) = H_1 + V(t)$ avec maintenant

$$\begin{aligned} H_1 &= \sum_l \hbar\omega_l\ a_l^+ a_l \\ V(t) &= \sum_l \hbar\xi_l \left(\exp(-i\Omega t) a_l^+ a_{L-l}^+ + \exp(i\Omega t) a_l a_{L-l}\right) \end{aligned}$$

où la grandeur réelle ξ_l est déterminée par les conditions d'accord de phase dans le cristal non-linéaire. Cette grandeur est par définition symétrique par rapport à $\Omega/2$, soit $\xi_{L-l} = \xi_l$. On supposera qu'elle prend une valeur non nulle seulement pour $\omega_l \in [\Omega/2 - \Delta\omega/2, \Omega/2 + \Delta\omega/2]$ où $\Delta\omega$ est par définition la largeur d'accord de phase.

Ce système produit des paires de photons que l'on va maintenant injecter dans le dispositif d'addition de fréquences. Dans ce faisceau, tous les photons sont susceptibles de s'associer. En d'autres termes : deux photons de fréquences ω_l et $\omega_{l'}$ pour donner des photons de fréquences $\omega_l + \omega_{l'} = \omega_{l+l'}$. On supposera que la polarisation des photons engendrés par addition de fréquences est perpendiculaire à celle des photons incidents, et que le faisceau engendré est donc décrit par un autre ensemble d'opérateurs, appelés A_m. Comme à la partie 2.1, le processus d'addition de fréquences est modélisé par une interaction de durée T gouvernée par le hamiltonien $H = H_0 + W$ avec maintenant

$$H_0 = \sum_l \hbar\omega_l b_l^+ b_l + \sum_m \hbar\omega_m A_m^+ A_m$$

et, en supposant que la condition d'accord de phase est parfaitement réalisée pour tous les couples de fréquences (cristal mince) :

$$W = \hbar\zeta \sum_{l,l'} \left(A_{l+l'} b_l^+ b_{l'}^+ + A_{l+l'}^+ b_l b_{l'}\right)$$

On appelle N_m le nombre de photons produits dans le mode B_m. Le résultat des calculs est

$$N_m = \beta^2 \left(\delta_{L,m} \left(\sum_l \sqrt{1+n_l}\ \sqrt{n_l} \right)^2 + 2 \sum_l n_l\ n_{m-l} \right)$$

*Interpréter chacun des deux termes intervenant dans l'expression de N_m et discuter la figure ci-dessous représentant N_m en fonction de la longueur d'onde du rayonnement produit à la fréquence somme (I. Abram et al., Phys. Rev. Lett. **57**, 2516 (1986)).*

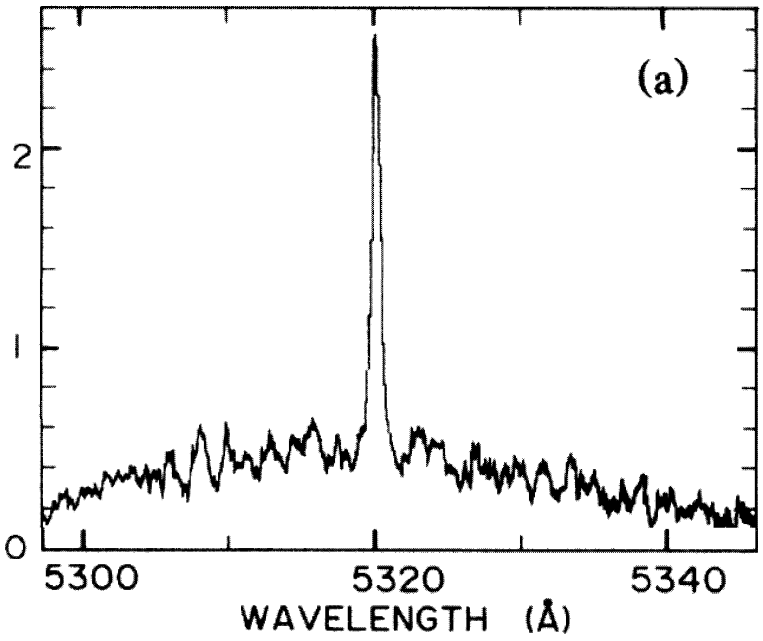


Figure 5

On a les relations de commutation

$$[a_l, H_0] = \hbar\omega_l\ a_l$$

et

$$[a_l, V(t)] = \hbar\xi_l \exp(-i\Omega t) a^+_{L-l}$$

où l'on a utilisé $l \neq L-l$ puisque L est impair, ce qui implique $[a_l, a^+_{L-l}] = 0$. L'évolution temporelle de l'opérateur $a_l(t)$ se déduit de l'équation de Heisenberg

$$\frac{da_l(t)}{dt} = \frac{1}{i\hbar} U^+(t)[a_l, H_0 + V(t)]U(t) = -i\omega_l a_l(t) - i\xi_l \exp(-i\Omega t) a^+_{L-l}(t)$$

On en déduit

$$\frac{d\tilde{a}_l(t)}{dt} = -i\xi_l \tilde{a}^+_{L-l}(t)$$

et donc

$$\frac{d\tilde{a}^+_{L-l}(t)}{dt} = i\xi_{L-l}\tilde{a}_l(t) = i\xi_l \tilde{a}_l(t)$$

En dérivant deux fois (ou en diagonalisant), on en déduit

$$\tilde{a}_l(\tau) = a_l(0)\cosh\xi_l\tau - ia^+_{L-l}\sinh\xi_l\tau$$

et donc

$$b_l = e^{-i\omega_l\tau}\left(a_l\cosh\theta_l - ia^+_{L-l}\sinh\theta_l\right)$$

où $\theta_l = \xi_l\tau$. On retrouve donc le même résultat qu'à la question 2.2.3, le mode $L-l$ jouant par rapport au mode l le rôle du complémentaire par rapport au signal.

$$n_l = \langle 0|b_l^+ b_l|0\rangle = \|b_l|0\rangle\|^2 = \sinh^2\theta_l\left\|a_l^+|0\rangle\right\|^2 = \sinh^2\theta_l$$

On remarque que $n_{L-l} = n_l$, ce qui provient du fait qu'on engendre autant de photons signal que complémentaire.

On obtient

$$\frac{dA_m}{dt} = -i\omega_m A_m(t) - i\zeta\sum_l b_l(t)b_{m-l}(t)$$

Comme dans la partie 2.1, on remplace $b_l(t)$ par $b_l\exp(-i\omega_l t)$ dans l'équation ci-dessus, ce qui donne

$$B_m = A_m(T) = e^{-i\omega_m T}\left(A_m - i\zeta T\sum_l b_l b_{m-l}\right)$$

On trouve donc un résultat similaire à celui de la question 2.1.3, à la différence près qu'il faut maintenant sommer sur un grand nombre de processus d'addition de fréquence $\omega_l + \omega_{m-l} \to \omega_m$.

Le nombre de photons produit dans le mode m s'écrit

$$N_m = \|B_m|0\rangle\|^2 = \|\beta\sum_l b_l b_{m-l}|0\rangle\|^2$$

avec

$$\begin{aligned} b_l b_{m-l}|0\rangle &= e^{-i\omega_l\tau}\left(a_l\cosh\theta_l - ia^+_{L-l}\sinh\theta_l\right)e^{-i\omega_{m-l}\tau}\left(a_{m-l}\cosh\theta_{m-l} - ia^+_{L-m+l}\sinh\theta_{m-l}\right)|0\rangle \\ &= e^{-i\omega_m\tau}\left(-i\cosh\theta_l\sinh\theta_{m-l}\; a_l a^+_{L-m+l}|0\rangle - \sinh\theta_l\sinh\theta_{m-l}\; a^+_{L-l}a^+_{L-m+l}|0\rangle\right) \\ &= e^{-i\omega_m\tau}\left(-i\cosh\theta_l\sinh\theta_l\;\delta_{L,m}|0\rangle - \sinh\theta_l\sinh\theta_{m-l}\; a^+_{L-l}a^+_{L-m+l}|0\rangle\right) \end{aligned}$$

et

$$\sum_l b_l b_{m-l}|0\rangle = e^{-i\omega_m\tau}\left(-i\delta_{L,m}\left(\sum_l\cosh\theta_l\sinh\theta_l\right)|0\rangle - \sum_l\sinh\theta_l\sinh\theta_{m-l}\; a^+_{L-l}a^+_{L-m+l}|0\rangle\right)$$

On en déduit

$$N_m = \beta^2\left(\delta_{L,m}\left(\sum_l\cosh\theta_l\sinh\theta_l\right)^2 + \left\|\sum_l\sinh\theta_l\sinh\theta_{m-l}\; a^+_{L-l}a^+_{L-m+l}|0\rangle\right\|^2\right)$$

Pour le second terme, il faut tenir compte du fait que deux états $a^+_{L-l}a^+_{L-m+l}|0\rangle$ peuvent être identiques pour des valeurs de l différentes, en fait pour $l' = m - l$. On peut écrire

$$\begin{aligned}
&\sum_l \sinh\theta_l \sinh\theta_{m-l}\; a^+_{L-l}a^+_{L-m+l}|0\rangle \\
= &\sum_{l<m/2} \sinh\theta_l \sinh\theta_{m-l}\; a^+_{L-l}a^+_{L-m+l}|0\rangle + \sum_{l>m/2} \sinh\theta_l \sinh\theta_{m-l}\; a^+_{L-l}a^+_{L-m+l}|0\rangle + \sinh^2\theta_{m/2}\; \left(a^+_{L-m/2}\right)^2|0\rangle \\
= &\; 2\sum_{l<m/2} \sinh\theta_l \sinh\theta_{m-l}\; a^+_{L-l}a^+_{L-m+l}|0\rangle + \sinh^2\theta_{m/2}\; \left(a^+_{L-m/2}\right)^2|0\rangle
\end{aligned}$$

étant entendu que le dernier terme n'est présent que si m est un nombre pair. En appliquant maintenant le théorème de Pythagore, on obtient

$$\begin{aligned}
\left\|\sum_l \sinh\theta_l \sinh\theta_{m-l}\; a^+_{L-l}a^+_{L-m+l}|0\rangle\right\|^2 &= 4\sum_{l<m/2} \left(\sinh\theta_l \sinh\theta_{m-l}\right)^2 + 2\sinh^4\theta_{m/2} \\
&= 2\sum_l \left(\sinh\theta_l \sinh\theta_{m-l}\right)^2
\end{aligned}$$

On en déduit

$$N_m = \beta^2\left(\delta_{L,m}\left(\sum_l \cosh\theta_l \sinh\theta_l\right)^2 + 2\sum_l \left(\sinh\theta_l \sinh\theta_{m-l}\right)^2\right)$$

ou encore

$$N_m = \beta^2\left(\delta_{L,m}\left(\sum_l \sqrt{1+n_l}\,\sqrt{n_l}\right)^2 + 2\sum_l n_l\, n_{m-l}\right)$$

Le premier terme de N_m correspond à la recombinaison de photons jumeaux ω_l et ω_{L-l}. La fréquence produite est exactement égale à celle de la pompe $\Omega = \omega_L$, ce qui correspond au pic très fin observé sur la figure. Il s'agit d'un processus cohérent (carré de la somme) résultant d'une interférence entre tous les chemins possible $\Omega \to \omega_l + \omega_{L-l} \to \Omega$, pour toutes les valeurs possibles de l. Le second terme de N_m correspond simplement à la somme incohérente de tous les processus d'addition de fréquences entre des photons de fréquences ω_l et ω_{m-l} pour donner ω_m. Son spectre est simplement l'auto-convolution du spectre de la fluorescence paramétrique, et correspond au spectre large observé sur la figure.

D.6 Absorption à deux photons (2007)

Durée : 1h30

Le cours et les notes personnelles sont autorisés.

On considère un système à trois niveaux soumis au champ électrique $E(t) = (\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}^*(t))/2$ d'une impulsion femtoseconde. Celle-ci induit une transition biphotonique de l'état fondamental $|g\rangle$ vers l'état excité $|e\rangle$ via le niveau relai $|r\rangle$. On appelle $\hat{\mu}$ la projection de l'opérateur dipôle électrique selon la direction de polarisation du champ électrique de l'impulsion et on effectuera un

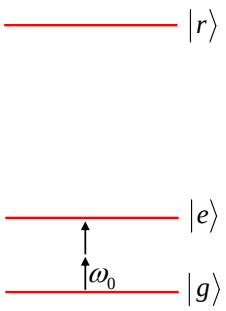
développement perturbatif de l'opérateur densité à l'aide de la relation habituelle

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

où

$$G_{nm}(t) = \frac{i}{\hbar}\Theta(t)\exp(-i\omega_{nm}t - \Gamma_{nm}t) \quad \text{et} \quad G_{nm}(\omega) = \frac{-1/\hbar}{\omega - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm}}$$

Les fréquences de transition sont telles que $\omega_{eg} \approx 2\omega_0$, où ω_0 est la fréquence centrale de l'impulsion, et $\omega_{rg} \gg \omega_0$, comme représenté ci-dessous.



La nature non résonnante des transitions vers l'état $|r\rangle$ permet de poser $\Gamma_{rg} = \Gamma_{re} = 0$. On supposera par ailleurs que Γ_{eg} et Γ_{ee} sont très inférieurs à ω_0. On fait enfin l'hypothèse que μ_{er} et μ_{rg} sont les seuls éléments de matrice non nuls de l'opérateur $\hat{\mu}$ (ainsi bien entendu que les éléments μ_{re} et μ_{gr} obtenus par transposition[1]).

1. *Donner un exemple de symétrie que peut vérifier le système permettant de justifier la dernière hypothèse énoncée ci-dessus.*

Un système invariant par parité a des états propres de parité bien définie, ce qui implique que les termes diagonaux de l'opérateur $\hat{\mu}$ soient nuls. Par ailleurs, seuls des états de parités opposées peuvent être couplés. Donc en supposant que $|e\rangle$ et $|g\rangle$ ont même parité, ce qui est compatible avec une transition à deux photons entre ces deux états, on arrive à l'hypothèse annoncée sur les éléments de matrice de l'opérateur $\hat{\mu}$: seuls μ_{er} et μ_{rg} sont non nuls, ainsi que les éléments de matrice obtenus par transposition[2].

2. *Identifier et calculer le seul élément de matrice non nul de l'opérateur $\hat{\rho}^{(1)}$, sachant que $\hat{\rho}^{(0)} = |g\rangle\langle g|$. On en donnera une valeur approchée en fonction de $\mathcal{E}(t)$ et $\mathcal{E}^*(t)$ en tenant compte du fait que la largeur spectrale de l'impulsion $\Delta\omega$ est très inférieure à ω_{rg}.* NB : dans cette question comme dans les suivantes, on pourra s'aider d'une représentation graphique qualitative dans l'espace des fréquences afin d'identifier les termes pertinents.

Par hypothèse, seul $\rho_{gg}^{(0)}$ est non nul, donc d'après l'expression de $\rho_{nm}^{(1)}$ rappelée dans l'énoncé, seul $\rho_{ng}^{(1)}$ peut être non nul. Par ailleurs, parmi les μ_{ng} intervenant dans l'expression de $\rho_{ng}^{(1)}$, seul μ_{rg} est non nul.

[1] Dans la suite du problème cette dernière précision sera considérée comme implicite à chaque fois que l'on mentionne le seul élément de matrice non nul d'un opérateur hermitien.

[2] Comme dans l'énoncé du problème, cette dernière précision sera considérée comme implicite à chaque fois que l'on mentionne le seul élément de matrice non nul d'un opérateur hermitien.

Donc seul $\rho_{rg}^{(1)}$ est non nul à l'ordre 1. Il s'écrit

$$\rho_{rg}^{(1)}(t) = \mu_{rg} G_{rg}(t) \otimes E(t)$$

ou encore

$$\rho_{rg}^{(1)}(\omega) = \mu_{rg} G_{rg}(\omega) E(\omega) = \frac{\mu_{rg}}{2} G_{rg}(\omega) \left(\mathcal{E}(\omega) + \mathcal{E}^*(-\omega)\right).$$

avec $G_{rg}(\omega) = -1/(\hbar(\omega - \omega_{rg}))$. Par hypothèse, la largeur spectrale du champ est très étroite devant l'échelle de variation de $G_{rg}(\omega)$, donc

$$\rho_{rg}^{(1)}(\omega) \approx \frac{\mu_{rg}}{2} \left(G_{rg}(\omega_0)\mathcal{E}(\omega) + G_{rg}(-\omega_0)\mathcal{E}^*(-\omega)\right).$$

De plus, $\omega_{rg} \gg \omega_0$, donc

$$G_{rg}(\omega_0) \approx G_{rg}(-\omega_0) \approx G_{rg}(\omega = 0) = \frac{1}{\hbar\omega_{rg}}$$

et

$$\rho_{rg}^{(1)}(t) \approx \frac{\mu_{rg}}{2\hbar\omega_{rg}} \left(\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}^*(t)\right) = \frac{\mu_{rg} E(t)}{\hbar\omega_{rg}}.$$

3. *Identifier les éléments de matrice non nuls de l'opérateur $\hat{\rho}^{(2)}$ et exposer les raisons permettant de ne conserver que $\rho_{eg}^{(2)}(t)$.*

Sachant que seuls μ_{er} et μ_{rg} sont non nuls, $\rho_{rg}^{(1)}$ permet d'atteindre $\rho_{rr}^{(2)}$, $\rho_{gg}^{(2)}$ et $\rho_{eg}^{(2)}$ qui sont les seuls éléments de matrice non nuls de $\rho^{(2)}$. Comme la trace de $\rho^{(2)}$ est nulle, on sait que $\rho_{rr}^{(2)} = -\rho_{gg}^{(2)}$. On obtient

$$\rho_{rr}^{(2)}(t) = G_{rr}(t) \otimes \left(E(t)(\mu_{rg}\rho_{gr}^{(1)}(t) - \rho_{rg}^{(1)}(t)\mu_{gr})\right) = G_{rr}(t) \otimes \left(E(t)\left(\mu_{rg}\frac{\mu_{gr}E(t)}{\hbar\omega_{rg}} - \frac{\mu_{rg}E(t)}{\hbar\omega_{rg}}\mu_{gr}\right)\right) = 0$$

Ce résultat n'est pas surprenant : la probabilité de transition de l'état $|g\rangle$ vers l'état $|r\rangle$ est négligeable puisque $\omega_{rg} \gg \omega_0$. Le seul élément de matrice non nul de l'opérateur $\rho^{(2)}$ est donc $\rho_{eg}^{(2)}$.

4. *Calculer $\rho_{eg}^{(2)}(t)$. En ne conservant que le terme résonnant, montrer qu'on obtient*

$$\rho_{eg}^{(2)}(t) = \frac{\tilde{\mu}_{eg}}{2} G_{eg}(t) \otimes \mathcal{E}(t)^2$$

où $\tilde{\mu}_{eg}$ est un élément de matrice effectif dont on donnera l'expression.

On obtient

$$\rho_{eg}^{(2)}(t) = G_{eg}(t) \otimes \left(E(t)(\mu_{er}\rho_{rg}^{(1)}(t)\right) = \frac{\mu_{er}\mu_{rg}}{\hbar\omega_{rg}} G_{eg}(t) \otimes E^{(2)}(t)$$

où

$$E^{(2)}(t) = E(t)^2 = \frac{\mathcal{E}(t)^2}{4} + \frac{\mathcal{E}^*(t)^2}{4} + \frac{|\mathcal{E}(t)|^2}{2}$$

Dans l'espace de Fourier, ces trois termes sont centrés respectivement sur les fréquences $2\omega_0$, $-2\omega_0$ et 0. Seul le premier de ces trois termes contribuera donc au produit $G_{eg}(\omega)E^{(2)}(\omega)$ obtenu par transformée de Fourier du produit de convolution $G_{eg}(t) \otimes E^{(2)}(t)$, puisque $G_{eg}(\omega)$ est une fonction centrée sur $\omega_{eg} \approx 2\omega_0$

et de largeur $\Gamma_{eg} \ll \omega_0$. Donc

$$\rho_{eg}^{(2)}(t) \approx \frac{\mu_{er}\mu_{rg}}{4\hbar\omega_{rg}} G_{eg}(t) \otimes \mathcal{E}(t)^2 = \frac{\tilde{\mu}_{eg}}{2} G_{eg}(t) \otimes \mathcal{E}(t)^2$$

avec

$$\tilde{\mu}_{eg} = \frac{\mu_{er}\mu_{rg}}{2\hbar\omega_{rg}}$$

5. *Calculer la polarisation non-linéaire du second ordre. Commenter le résultat obtenu.*

D'après l'éq. 2.29, on a

$$P^{(2)}(t) = \mathcal{N} \sum_{nm} \mu_{mn}\rho_{nm}^{(2)}(t) = \mathcal{N}\left(\mu_{ge}\rho_{eg}^{(2)}(t) + \mu_{eg}\rho_{ge}^{(2)}(t)\right) = 0$$

puisque $\mu_{eg} = 0$. Ce résultat n'est pas très surprenant puisque nous avons supposé à la question 1 que le système était centro-symétrique, et était donc dépourvu de susceptibilité non-linéaire du deuxième ordre.

6. *Exprimer $\rho_{er}^{(3)}(t)$ à l'aide de $\rho_{eg}^{(2)}(t)$. On simplifiera le résultat obtenu en utilisant une méthode similaire à celle de la question 2.*

On obtient

$$\rho_{er}^{(3)}(t) = -G_{er}(t) \otimes \left(E(t)\rho_{eg}^{(2)}(t)\mu_{gr}\right) \approx -G_{er}(\omega = 0)\mu_{gr}E(t)\rho_{eg}^{(2)}(t)$$

où l'on a utilisé le même raisonnement qu'à la question 2. En utilisant le fait que $\omega_{re} \approx \omega_{rg}$, on obtient

$$\rho_{er}^{(3)}(t) = \frac{\mu_{gr}}{\hbar\omega_{rg}} E(t)\rho_{eg}^{(2)}(t)$$

7. *Déterminer $\rho_{ee}^{(4)}(t)$ en ne conservant que les termes résonnants.*

On a

$$\rho_{ee}^{(4)}(t) = G_{ee}(t) \otimes \left(E(t)(\mu_{er}\rho_{re}^{(3)}(t) - \rho_{er}^{(3)}(t)\mu_{re})\right) = -\mu_{re}G_{ee}(t) \otimes \left(E(t)\rho_{er}^{(3)}(t)\right) + c.c.$$

La fonction $G_{ee}(\omega) = -1/(\hbar(\omega + i\Gamma_{ee}))$ est centrée sur $\omega = 0$. Comme on ne souhaite conserver que les termes résonnants, il faut s'intéresser aux termes n'oscillant pas dans $E(t)\rho_{er}^{(3)}(t)$. Cette dernière quantité s'écrit

$$E(t)\rho_{er}^{(3)}(t) = \frac{\mu_{gr}}{4\hbar\omega_{rg}} \left(\mathcal{E}(t) + \mathcal{E}^*(t)\right)^2 \rho_{eg}^{(2)}(t)$$

Sachant que $\rho_{eg}^{(2)}(t)$ oscille à la fréquence $2\omega_0$, le seul terme n'oscillant pas dans l'expression ci-dessus s'écrit

$$\frac{\mu_{gr}}{4\hbar\omega_{rg}} \mathcal{E}^*(t)^2 \rho_{eg}^{(2)}(t)$$

En utilisant ce résultat dans l'expression de $\rho_{ee}^{(4)}(t)$, et en remplaçant $\rho_{eg}^{(2)}(t)$ par sa valeur, on obtient

$$\rho_{ee}^{(4)}(t) = -\frac{\mu_{gr}\mu_{re}}{4\hbar\omega_{rg}} G_{ee}(t) \otimes \left(\mathcal{E}^*(t)^2 \left(\frac{\tilde{\mu}_{eg}}{2} G_{eg}(t) \otimes \mathcal{E}(t)^2 \right) \right) + c.c.$$

8. *On rappelle l'expression vue en cours de la population au second ordre de la théorie des perturbations pour un système à deux niveaux dans le cadre de l'approximation de l'onde tournante:*

$$\rho_{ee}^{(2)}(t) = -\frac{|\mu_{eg}|^2}{4} G_{ee}(t) \otimes \left(\mathcal{E}^*(t) \left(G_{eg}(t) \otimes \mathcal{E}(t) \right) \right) + c.c.$$

En déduire que le processus d'absorption à deux photons étudié ici est équivalent à un processus d'interaction à un photon entre un champ effectif égal au champ doublé $\mathcal{E}^{(2)}(t) = \mathcal{E}(t)^2$ et un système à deux niveaux effectif dont on précisera les paramètres.

L'expression obtenue à la question ci-dessus peut s'écrire

$$\rho_{ee}^{(4)}(t) = -\frac{|\tilde{\mu}_{eg}|^2}{4} G_{ee}(t) \otimes \left(\mathcal{E}^*(t)^2 \left(G_{eg}(t) \otimes \mathcal{E}(t)^2 \right) \right) + c.c.$$

On retrouve exactement l'expression attendue pour un système à deux niveaux de dipôle de transition $\tilde{\mu}_{eg}$ excité par le champ doublé $\mathcal{E}^{(2)}(t) = \mathcal{E}(t)^2$.

9. *En déduire que la probabilité d'excitation après la fin de l'impulsion est gouvernée par l'intégrale de recouvrement entre le spectre du champ doublé $|\mathcal{E}^{(2)}(\omega)|^2$ et le spectre d'absorption $\alpha(\omega)$ du système à deux niveaux effectif, dont on rappellera l'expression.*

On peut donc appliquer l'éq. 6.21, qui nous donne la population dans l'état excité après la fin de l'impulsion

$$\rho_{ee}^{(4)} \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \alpha^{(2)}(\omega) |E^{(2)}|(\omega)|^2$$

où l'on a remplacé le champ fondamental par le champ doublé, et le coefficient d'absorption par celui du système à deux niveaux effectif introduit ci-dessus. D'après l'éq. 2.35, ce dernier s'écrit

$$\alpha^{(2)}(\omega) = \frac{\mathcal{N}\omega}{\epsilon_0 \hbar c} \left(\frac{|\tilde{\mu}_{eg}|^2 \Gamma_{eg}}{(\omega - \omega_{eg})^2 + \Gamma_{eg}^2} - \frac{|\tilde{\mu}_{eg}|^2 \Gamma_{eg}}{(\omega + \omega_{eg})^2 + \Gamma_{eg}^2} \right)$$

10. *Exprimer $\mathcal{E}^{(2)}(\omega)$ à l'aide d'une intégrale portant sur $\mathcal{E}(\omega')$. Montrer que $|\mathcal{E}^{(2)}(\omega)|$ est majorée par la valeur obtenue pour une impulsion de même spectre mais limitée par transformée de Fourier.*

Par définition, $\mathcal{E}^{(2)}(t) = \mathcal{E}(t)^2$, donc d'après l'éq. A.11, on a

$$\mathcal{E}^{(2)}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \mathcal{E}(\omega) \otimes \mathcal{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{E}(\omega') \mathcal{E}(\omega - \omega') \frac{d\omega'}{2\pi}$$

d'où l'on déduit

$$|\mathcal{E}^{(2)}(\omega)| \leq \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{E}(\omega')|\,|\mathcal{E}(\omega-\omega')|\frac{d\omega'}{2\pi}$$

ce qui est la valeur que l'on obtiendrait pour une impulsion de même spectre mais limitée par transformée de Fourier (i.e. de phase spectrale nulle).

11. *Que dire de* $|\mathcal{E}^{(2)}(\omega_{eg})|^2$ *lorsque la phase spectrale de l'impulsion est telle que* $\varphi(\omega') = -\varphi(\omega_{eg}-\omega')$. *Interpréter ce résultat à l'aide du retard de groupe* $\tau_g(\omega')$ *des différentes composantes spectrales contribuant à l'absorption biphotonique.*

Le champ doublé à la fréquence ω_{eg} s'écrit

$$\mathcal{E}^{(2)}(\omega_{eg}) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{E}(\omega')|\,|\mathcal{E}(\omega-\omega')| \exp\left(i\left(\varphi(\omega') + \varphi(\omega_{eg}-\omega')\right)\right)\frac{d\omega'}{2\pi}$$

On remarque que lorsque la condition de phase antisymétrique proposée dans l'énoncé est vérifiée, le terme de phase apparaissant ci-dessus disparaît. Le spectre doublé à la fréquence ω_{eg} est donc le même que celui que l'on obtiendrait pour une impulsion limitée par transformée de Fourier, bien que l'impulsion puisse être beaucoup plus longue. En dérivant la condition de phase antisymétrique par rapport à ω', on obtient la condition suivante sur le retard de groupe

$$\tau_g(\omega') = \tau_g(\omega_{eg}-\omega')$$

ce qui signifie que les composantes spectrales symétriques par rapport à ω_{eg} arrivent simultanément, et explique qu'elles puissent se combiner avec la même efficacité que pour une impulsion limitée par transformée de Fourier. Naturellement, cette condition n'est valable que pour une fréquence somme égale à ω_{eg}. Pour d'autres valeurs de la fréquence somme, le spectre doublé est très atténué car les composantes spectrales n'arrivent pas simultanément et ne peuvent donc pas se combiner.

12. *Décrire qualitativement ce qui se produit lorsque* $\varphi(\omega') \neq -\varphi(\omega_{eg}-\omega')$.

Dans ce cas, on a des interférences destructives dans l'intégrale et le spectre doublé sera atténué.

13. *Discuter les deux figures ci-dessous, extraites de l'article de Pastirk* et al., *Opt. Express* **11**, *1695 (2003).*

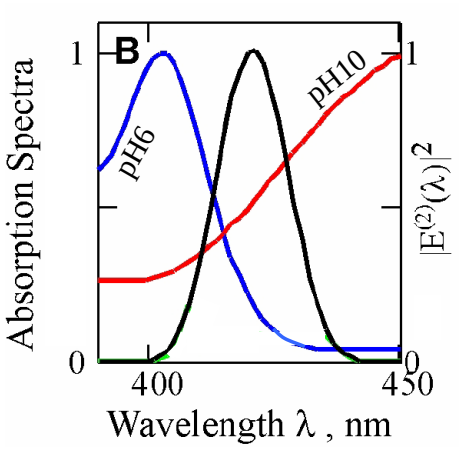


Fig. 1 : Calculated power spectrum of E(t)² for transform-limited pulse (black). Absorption spectrum for HPTS at pH 10 (red line) and pH 6 (blue line).

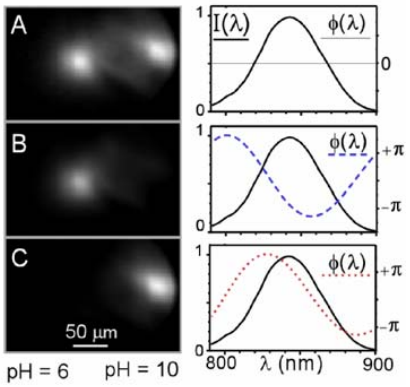


Fig. 2 : Experimental demonstration of pH-sensitive selective two-photon microscopy. The sample being imaged has an acidic (left side of the frame at pH 6) and a basic (right side of the frame at pH 10) region, both labeled with HPTS. The left panel shows the images obtained using 21-fs transform limited pulses centered at 842 nm (a) and shaped pulses with a spectral phase that maximize pH 6 (b) or pH 10 (c) fluorescence.

Dans le cas de la Fig. 2A, le spectre doublé, représenté Fig. 1, a une grande largeur spectrale et excitera les deux espèces, de pH 6 et 10. Dans le cas de la Fig. 2B, la phase spectrale est non nulle et est anti-symétrique autour de la longueur d'onde 830 nm. Le spectre doublé sera donc très atténué sauf autour de la longueur d'onde 415 nm. D'après les spectres d'absorption représentés Fig. 1, l'espèce à pH6 sera excité sélectivement comme cela est confirmé par l'image représentée Fig. 2B. De même, pour la Fig. 2C, la phase est antisymétrique autour de 860 nm, ce qui maximise le spectre doublé à 430 nm, et maximise donc la fluorescence de l'espèce à pH10. Cette méthode d'imagerie sélective, démontrée ici dans le cas d'une molécule en solution [57], a pu être également appliquée à la microscopie non-linéaire d'embryons de drosophile [58].

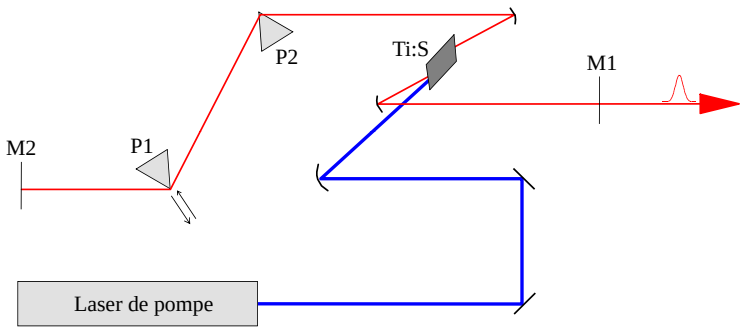
D.7 Oscillateur femtoseconde (2008)

Durée : 1h30

Le cours et les notes personnelles sont autorisés.

Problème proposé par Manuel Joffre et François Hache.

L'objet de ce problème est d'étudier la propagation d'une impulsion dans une cavité laser produisant un train stationnaire d'impulsions femtosecondes. La figure ci-dessous représente le schéma du laser:



La cavité est constituée d'un cristal de saphir dopé au titane (Ti:S) et d'un ensemble de deux prismes P1 et P2 permettant d'introduire une dispersion de vitesse de groupe négative, ajustable par translation du prisme P1. Le chemin optique entre les deux miroirs extrêmes de la cavité, M1 et M2, est noté L. On rappelle que la production d'un train d'impulsions courtes résulte de l'effet conjugué de la dispersion de vitesse de groupe négative intervenant dans la ligne de prismes et de l'effet Kerr optique intervenant dans le cristal de saphir.

On traite la propagation dans la cavité à l'aide d'un modèle à une dimension, et on appellera z la coordonnée le long du trajet du faisceau. On appellera $\mathcal{A}(z,t)$ l'enveloppe complexe de l'impulsion exprimée dans un référentiel se propageant à la vitesse de groupe, ce qui signifie que pour toute valeur de z la fonction $|\mathcal{A}(z,t)|^2$ restera centrée en $t = 0$. De même, la fonction $|\mathcal{A}(z,\omega)|^2$ sera supposée centrée en $\omega = 0$. On admettra que l'action de la ligne de prisme sur l'impulsion se traduit par l'ajout d'une phase spectrale purement quadratique $\varphi(\omega) = \frac{1}{2}\varphi''\omega^2$, où φ'' est négatif. Par ailleurs, on négligera la dispersion linéaire intervenant dans le cristal de saphir, supposé très peu épais, ce qui permettra d'écrire l'équation de propagation dans le cristal sous la forme

$$i\,\frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = -\gamma|\mathcal{A}(z,t)|^2\mathcal{A}(z,t) \tag{D.6}$$

où γ est le coefficient de non-linéarité Kerr dans le cristal.

Partie I : Quelques valeurs numériques

La puissance du laser de pompe est de 5 W. Le rendement du laser femtoseconde est supposé égal à 10 %, et la transmission du miroir de sortie M1 est de 2%. Enfin, on donne la longueur de la cavité, $L = 1.5$ m.

1.1 *Quel est le taux de répétition du laser ?*

Le temps mis pour parcourir la cavité est $2L/c = 10$ ns. Le taux de répétition est donc de 100 MHz.

1.2 *Quelle est l'énergie par impulsion ?*

Compte tenu du rendement, la puissance moyenne du laser femtoseconde est de 500 mW. En divisant par le taux de répétition, on obtient une énergie par impulsion produite égale à 5 nJ.

1.3 *Déterminer l'énergie de l'impulsion circulant dans la cavité.*

Il suffit de diviser l'énergie de l'impulsion produite par la transmission du miroir de sortie, 0.02. On obtient donc une énergie par impulsion de 250 nJ.

Partie II : Modèle continu

On supposera dans cette partie que la déformation de l'impulsion lors de sa propagation dans la cavité est suffisamment faible pour qu'on puisse distribuer l'effet des prismes et du cristal tout le long de la cavité. Cette approximation permet de traiter la propagation dans la cavité comme si l'impulsion se propageait dans un milieu homogène effectif d'épaisseur L, en obéissant à l'équation de Schrödinger non-linéaire

$$i\,\frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = \frac{k_0''}{2}\frac{\partial^2 \mathcal{A}}{\partial t^2} - \gamma_{\text{eff}}|\mathcal{A}(z,t)|^2\mathcal{A}(z,t) \tag{D.7}$$

où k_0'' est un coefficient de dispersion effectif et γ_{eff} est un coefficient Kerr optique effectif, supposé positif. On rappelle que lorsque k_0'' est négatif cette équation admet une solution stationnaire appelée soliton et s'exprimant

$$\mathcal{A}(z,t) = \mathcal{A}_0\frac{\exp\left(i\frac{|k_0''|z}{2\tau^2}\right)}{\cosh(t/\tau)} \tag{D.8}$$

ou, dans l'espace des fréquences,

$$\mathcal{A}(z,\omega) = \pi\tau\mathcal{A}_0\frac{\exp\left(i\frac{|k_0''|z}{2\tau^2}\right)}{\cosh(\pi\omega\tau/2)} \tag{D.9}$$

avec la condition

$$\gamma_{\text{eff}}|\mathcal{A}_0|^2\tau^2 = |k_0''| \tag{D.10}$$

L'objet des deux premières questions de cette partie est de déterminer les valeurs des coefficients effectifs introduits plus haut pour que le modèle représente bien l'effet des prismes ou du cristal dans le cas simple où un seul de ces deux éléments est présent dans la cavité.

2.1 *Ecrire puis résoudre dans l'espace des fréquences l'éq. D.7 sans le terme non-linéaire ($\gamma_{\text{eff}} = 0$). En considérant la propagation sur une distance L, déterminer la relation entre le paramètre φ'' introduit plus haut et le coefficient de dispersion de vitesse de groupe effectif k_0''.*

En posant $\gamma_{\text{eff}} = 0$ et en écrivant l'équation dans l'espace des fréquences, on obtient

$$i\,\frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = -\frac{k_0''}{2}\omega^2\mathcal{A}(z,\omega)$$

dont la solution s'écrit

$$\mathcal{A}(z,\omega) = \mathcal{A}(0,\omega)\exp(i\frac{k_0'' z\omega^2}{2})$$

On en déduit $\varphi'' = k_0'' L$.

2.2 *Ecrire l'éq. D.7 sans le terme de dispersion ($k_0'' = 0$) puis montrer que l'intensité temporelle $I(z,t) = |\mathcal{A}(z,t)|^2$, qui sera simplement noté $I(t)$ dans la suite, ne dépend pas de z. En comparant la solution de cette équation, pour une distance de propagation égale à L, avec la solution de l'éq. D.6, pour une distance de propagation égale à L_c, on en déduira une relation entre γ et γ_{eff}.*

L'équation de propagation en régime non dispersif s'écrit

$$i\,\frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = -\gamma_{\text{eff}}|\mathcal{A}(z,t)|^2\mathcal{A}(z,t)$$

On en déduit aisément que $|\mathcal{A}(z,t)|^2 = I(t)$ est indépendant de z, ce qui permet d'écrire

$$i\,\frac{\partial \mathcal{A}}{\partial z} = -\gamma_{\text{eff}} I(t)\mathcal{A}(z,t)$$

et

$$\mathcal{A}(L,t) = \mathcal{A}(0,t)\exp\left(i\gamma_{\text{eff}} I(t)L\right)$$

L'effet du cristal se ramène donc à une phase temporelle $\Phi(t) = \gamma_{\text{eff}} I(t)L$. Avec l'éq. D.6, on aurait obtenu $\Phi(t) = \gamma I(t) L_c$. En identifiant les deux expressions, on en déduit

$$\gamma_{\text{eff}} = \gamma\frac{L_c}{L}$$

2.3 *En supposant que l'impulsion se propage dans la cavité sous la forme du soliton introduit plus haut, établir une relation entre τ, $|\varphi''|$, γ, L_c et*

$$w = \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{A}(z,t)|^2 dt\ ,$$

grandeur proportionnelle à l'énergie de l'impulsion. Décrire qualitativement la variation de la durée et de la largeur spectrale de l'impulsion en fonction du paramètre $|\varphi''|$ (à énergie par impulsion constante).

On obtient $\gamma L_c |\mathcal{A}_0|^2\tau^2 = |\varphi''|$. Par ailleurs,

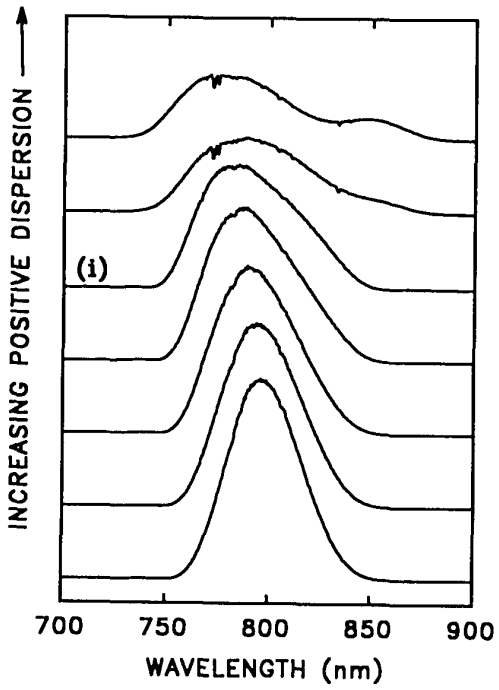
$$w = \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{A}(z,t)|^2 dt = |\mathcal{A}_0|^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{\cosh^2(t/\tau)} dt = 2|\mathcal{A}_0|^2\tau$$

Donc

$$\gamma L_c w\tau = 2|\varphi''|$$

Pour w constant, la durée de l'impulsion est proportionnelle à $|\varphi''|$, tandis que la largeur spectrale est inversement proportionnelle à $|\varphi''|$.

2.4 *La figure ci-dessous, extraite d'un article de P.F. Curley* et al. *(Opt. Lett.* **18**, *54 (1993)) représente une série de spectres produits par un laser femtoseconde pour différentes positions d'un des prismes de la cavité. La dispersion nette de la cavité est négative et $|\varphi''|$ diminue lorsque l'on va de bas en haut (ce qui signifie que φ'' augmente).*



Les spectres obtenus vous semblent-t-ils en accord qualitatif avec le modèle ?

La surface du spectre est approximativement constante, ce qui signifie que l'énergie de l'impulsion est bien constante. On vérifie que la largeur spectrale augmente lorsque $|\varphi''|$ diminue, ce qui correspond à une impulsion de plus en plus courte. Les résultats expérimentaux sont en accord qualitatif avec le modèle théorique. Toutefois, pour de petites valeurs de $|\varphi''|$, le spectre se déforme et ne ressemble plus à une sécante hyperbolique carrée.

2.5 *Les miroirs M1 et M2 sont maintenant tout deux remplacés par des miroirs dont le coefficient de transmission est égal à 1 %, ce qui permet d'observer les impulsions sortant par M1 et par M2. On observe que ces impulsions n'ont pas la même durée, les deux valeurs mesurées étant 35 et 52 fs (à ce stade on ne précise pas de quel côté du laser sort l'impulsion la plus courte). Ce résultat vous semble-t-il compatible avec le modèle utilisé ?*

Ce résultat est en net désaccord avec le modèle, qui pré-suppose que l'impulsion ne se déforme pas lors de sa propagation dans la cavité.

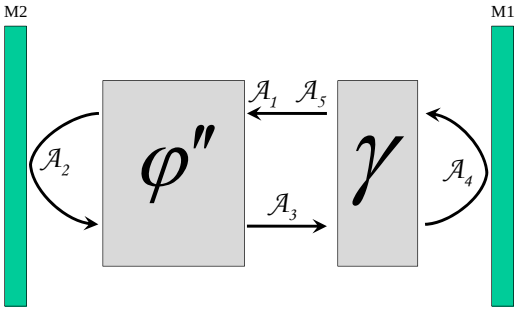
2.6 *Calculer l'ordre de grandeur du déphasage non-linéaire causé par la propagation dans le cristal, sachant que l'indice non-linéaire du cristal de saphir (d'épaisseur $L_c = 2\text{mm}$) est $n_2 = 3 \times$*

$10^{-20}\mathrm{m}^2/\mathrm{W}$. *On prendra pour cette question une impulsion de forme rectangulaire de durée égale à 40 fs. On supposera que le profil spatial est un disque homogène de rayon 20 μm. Que pensez-vous du résultat obtenu ?*

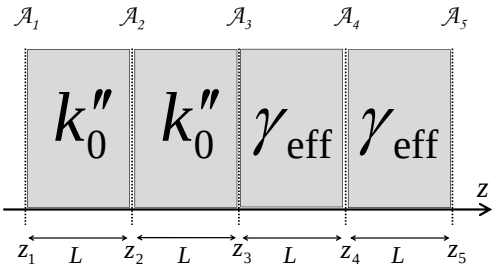
Le déphasage non-linéaire est égal à $n_2 I(2\pi/\lambda)L_c$, où I est ici l'intensité en $\mathrm{W/m}^2$. D'après les valeurs données, on a $I = 250 \times 10^{-9}$ / $(40 \times 10^{-15} \times \pi(20 \times 10^{-6})^2) \approx 5 \times 10^{15}\mathrm{W/m}^2$. Sachant d'après la figure de la question 2.4 que la longueur d'onde centrale est environ 0.8 μm, on en déduit $\Phi = 3 \times 10^{-20} \times 5 \times 10^{15} \times (2\pi/0.8 \times 10^{-6}) \times 2 \times 10^{-3} \approx 2.4$ rad. Ce déphasage est loin d'être négligeable devant π, ce qui signifie que l'impulsion est fortement déformée lors de sa propagation dans le cristal (en accord avec l'observation expérimentale de la question précédente). Le modèle continu n'est donc pas adapté et il est nécessaire d'utiliser un autre modèle physique pour rendre compte de la propagation dans la cavité.

Partie III : Modèle discret

On se propose d'utiliser maintenant un modèle prenant en compte la nature discrète des éléments introduits dans la cavité, comme représenté dans la figure ci-dessous, où φ'' représente la ligne de prismes et γ le cristal de saphir.



On considère les enveloppes $\mathcal{A}_j(t)$ du champ aux points indiqués et les variances associées Δt_j^2 et $\Delta\omega_j^2$. On s'intéressera à une solution stationnaire telle que l'enveloppe se reproduise identique à elle-même (à une phase près) après un tour de cavité, soit $\mathcal{A}_5(t) = e^{i\theta}\mathcal{A}_1(t)$. Pour cela on déplie la cavité et on décrit un aller-retour dans la cavité selon le schéma ci-dessous.[3]



3.1 *Montrer que 4 parmi les 5 Δt_j sont identiques. Montrer de même que 4 parmi les 5 $\Delta\omega_j$ sont identiques.*

[3] on n'attachera pas d'importance au fait que la distance parcourue soit $4L$ au lieu de $2L$ car le résultat final sera indépendant du choix de L.

Pour une solution stationnaire, on a nécessairement $\Delta t_1 = \Delta t_5$ et $\Delta\omega_1 = \Delta\omega_5$. De plus, on sait d'après la question 2.1 que la propagation dans la ligne de prisme ne modifie pas le spectre, donc $\Delta\omega_1 = \Delta\omega_2 = \Delta\omega_3$. Seul $\Delta\omega_4$ prend une valeur différente. De même, on sait d'après la question 2.2 que la propagation dans le cristal conserve l'intensité temporelle, donc $\Delta t_3 = \Delta t_4 = \Delta t_5$. Seul Δt_2 prend une valeur différente.

3.2 *Rappeler la forme générale de la variation avec z de $\Delta t(z)^2$ dans un système dispersif. Déduire des résultats de la question précédente le centre de symétrie de cette fonction puis en déduire une relation entre Δt_1, Δt_2 et $\Delta\omega_1$. Représenter graphiquement la fonction $\Delta t(z)^2$ en fonction de z dans l'intervalle $[z_1, z_5]$ puis discuter à nouveau les résultats expérimentaux de la question 2.5. On indiquera de quel côté de la cavité sort l'impulsion la plus courte.*

On sait d'après le cours que la fonction $\Delta t(z)^2$ est une parabole, le coefficient de z^2 étant égal à $k_0''^2\Delta\omega_1^2$. Par ailleurs, on sait d'après la question précédente que $\Delta t(z_1)^2 = \Delta t(z_3)^2$, donc le sommet de cette parabole est nécessairement en $z = z_2$. On en déduit la relation

$$\Delta t(z)^2 = \Delta t(z_2)^2 + k_0''^2\Delta\omega_1^2(z - z_2)^2$$

et donc

$$\Delta t_1^2 = \Delta t_3^2 = \Delta t_2^2 + \varphi''^2\Delta\omega_1^2$$

La durée d'impulsion la plus courte est donc Δt_2, qui correspond à la sortie M2 de la cavité (35 fs), qui est nettement plus courte que l'impulsion sortant par le miroir M1 (52 fs).

3.3 *On considère maintenant l'évolution de la largeur spectrale lors de la propagation dans le cristal. Ecrire l'expression de la phase temporelle $\Phi(z,t)$ pour $z_3 < z < z_5$, puis écrire la fréquence instantanée $\Omega(z,t) = -d\Phi/dt$. En déduire les moyennes par rapport au temps $\langle\Omega(z,t)\rangle$ et $\langle\Omega(z,t)^2\rangle$, puis la variance correspondante $\Delta\Omega^2$. On rappelle que la variance de la fréquence s'écrit $\Delta\omega^2 = \Delta\omega_{\Phi=0}^2 + \Delta\Omega^2$, où $\Delta\omega_{\Phi=0}^2$ serait la variance obtenue en l'absence de phase temporelle (voir éq. A.34 du cours). En déduire la forme générale de $\Delta\omega(z)^2$ puis une relation entre $\Delta\omega_3$ et $\Delta\omega_4$. Représenter la fonction $\Delta\omega(z)^2$ dans l'intervalle $[z_1, z_5]$.*

On a vu à la question 2.2 que $\Phi(z,t) = \Phi(z_3,t) + \gamma_{\text{eff}}(z - z_3)I(t)$. On en déduit que la fréquence instantanée s'écrit

$$\Omega(z,t) = -\frac{d\Phi}{dt} = \Omega(z_3,t) - \gamma_{\text{eff}}(z - z_3)\frac{dI}{dt}.$$

donc

$$\langle\Omega(z,t)\rangle = \langle\Omega(z_3,t)\rangle - \gamma_{\text{eff}}(z - z_3)\left\langle\frac{dI}{dt}\right\rangle.$$

Or $\langle\Omega(z_3,t)\rangle$ est nul par hypothèse. Par ailleurs,

$$\int_{-\infty}^{+\infty} I(t)\frac{dI}{dt}dt = \frac{1}{2}\left[I(t)^2\right]_{-\infty}^{+\infty} = 0$$

donc $\langle \Omega(z,t) \rangle = 0$, en accord avec l'hypothèse effectuée dans l'introduction. Par ailleurs,

$$\langle \Omega(z,t)^2 \rangle = \left\langle \left(\Omega(z_3,t) - \gamma_{\text{eff}}(z-z_3)\frac{dI}{dt} \right)^2 \right\rangle .$$

Donc $\Delta\Omega(z)^2$ est un polynome du deuxième degré en z. Il en va de même pour $\Delta\omega(z)^2$. Sachant que $\Delta\omega_3 = \Delta\omega_5$, on en déduit que cette parabole est centrée sur z_4, donc

$$\Delta\omega(z)^2 = \Delta\omega_4^2 + \gamma_{\text{eff}}^2 (z-z_4)^2 \left\langle \left(\frac{dI}{dt} \right)^2 \right\rangle$$

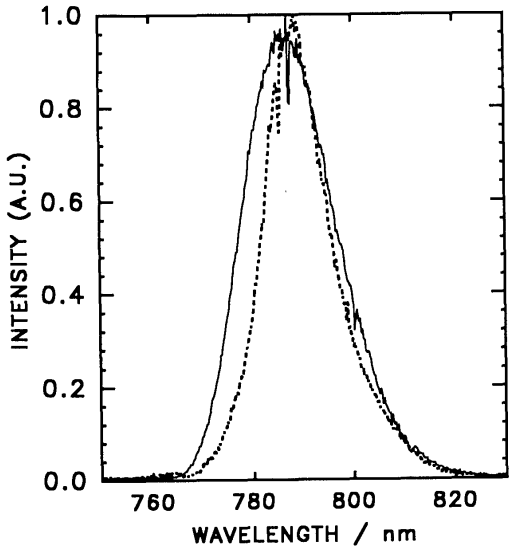
et

$$\Delta\omega_3^2 = \Delta\omega_5^2 = \Delta\omega_4^2 + \gamma_{\text{eff}}^2 L^2 \left\langle \left(\frac{dI}{dt} \right)^2 \right\rangle$$

ou encore

$$\Delta\omega_3^2 = \Delta\omega_5^2 = \Delta\omega_4^2 + \gamma^2 L_c^2 \left\langle \left(\frac{dI}{dt} \right)^2 \right\rangle$$

3.4 *La figure ci-dessous, extraite d'un article de P.F. Curley* et al. *(J. Opt. Soc. Am. B* **10***, 1025 (1993)), représente les spectres mesurés pour les deux sorties de la cavité.*

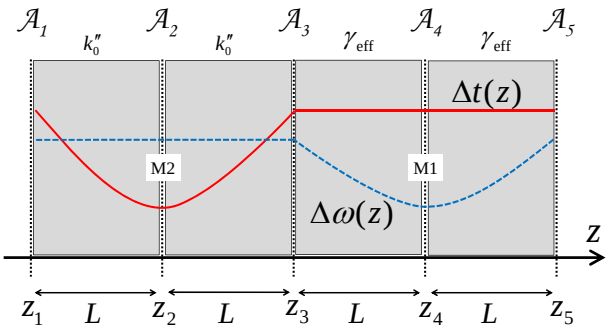


Pouvez-vous expliquer ce résultat et indiquer à quel spectre correspond chacune des deux sorties M1 et M2 de la cavité ?

On a vu à la question précédente que le spectre de l'impulsion est plus étroit au point z_4, qui correspond à la sortie du côté du cristal par le miroir M1. Ce spectre correspond à la courbe en pointillé. Le spectre en trait plein correspond à la sortie par le miroir M2, et est associé à une impulsion plus courte comme mentionné à la question 3.2.

3.5 *Décrire qualitativement la propagation de l'impulsion dans la cavité, en indiquant notamment la dérive de fréquence de l'impulsion aux différents points de la cavité et les phénomènes physiques venant modifier la forme temporelle ou spectrale de l'impulsion.*

En résumé, l'impulsion est plus courte du côté du miroir M1. Elle traverse alors les prismes et acquiert une dérive de fréquence négative qui lui donne une durée plus longue avant d'entrer dans le cristal de saphir. Elle subit alors un phénomène d'automodulation de phase dans le cristal de saphir. Pour une impulsion limitée par transformée de Fourier, l'automodulation de phase élargit le spectre, mais pour une impulsion à dérive de fréquence négative, c'est le contraire qui se produit: le spectre se rétrécit jusqu'à ce que l'impulsion soit limitée par transformée de Fourier en sortant du cristal. Une partie de l'impulsion peut sortir par le miroir M1. Cette impulsion est limitée par transformée de Fourier mais est plus longue et a un spectre plus étroit que pour l'autre sortie de la cavité. L'impulsion repasse alors dans le cristal de saphir où l'automodulation de phase élargit son spectre et produit une impulsion à dérive de fréquence positive, qui sera annulée lors de la traversée de la ligne de prisme pour produire une impulsion courte et de spectre large au niveau du miroir M2.



Même s'il explique une partie des phénomènes observés dans un laser femtoseconde, le modèle développé ici reste très incomplet car il ne prend pas en compte les effets spatiaux de lentille de Kerr qui contribuent à privilégier le régime impulsionnel. En outre, la dispersion du troisième ordre, qui n'a pas été prise en compte dans ce problème, limite la largeur maximale des spectres que l'on peut obtenir dans une telle cavité et explique les deux pics observés pour de faibles valeurs de $|\varphi''|$ sur les spectre de la figure de la question 2.4.

3.6 *On fait l'hypothèse simplificatrice que l'impulsion est de forme gaussienne, supposée limitée par transformée de Fourier en deux points de la cavité que l'on précisera. Etablir un système de deux équations portant sur* Δt_1^2 *et* Δt_2^2*, puis retrouver une relation similaire à celle obtenue à la question 2.3 dans le cas où* γ *et* φ'' *tendent vers zéro. Pour comparer les équations obtenues, on utilisera le fait que, pour une impulsion de type soliton comme celle décrite par l'éq. 3, on a* $\Delta t = \tau\pi^2/12$*. On donne également*

$$\frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{+\infty}\exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma^2}\right)dx = 1 \quad \text{et} \quad \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}}\int_{-\infty}^{+\infty}x^2\exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma^2}\right)dx = \sigma^2.$$

C'est naturellement au niveau des miroirs M1 et M2, qui correspondent tout deux à des minima du produit $\Delta t\Delta\omega$, que l'impulsion sera supposée limitée par transformée de Fourier. L'impulsion étant gaussienne, on a $\Delta t_2\Delta\omega_2 = 1/2$ et $\Delta t_4\Delta\omega_4 = 1/2$. Sachant que $\Delta\omega_1 = \Delta\omega_2 = 1/(2\Delta t_2)$, le résultat de la question 3.2 s'écrit

$$\Delta t_1^2 = \Delta t_2^2 + \frac{\varphi''^2}{4\Delta t_2^2}$$

Par ailleurs, sachant que $\Delta\omega_3 = \Delta\omega_2 = 1/(2\Delta t_2)$ et que $\Delta\omega_4 = 1/(2\Delta t_4) = 1/(2\Delta t_1)$, le résultat de la question 3.3 peut s'écrire

$$\frac{1}{4\Delta t_2^2} = \frac{1}{4\Delta t_1^2} + \gamma^2 L_c^2 \left\langle \left(\frac{dI}{dt}\right)^2 \right\rangle$$

Pour calculer ce dernier terme, on utilise

$$I(t) = \frac{w}{\Delta t_1 \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{t^2}{2\Delta t_1^2}\right)$$

et, en exprimant la valeur moyenne pondérée par la densité de probabilité $I(t)/w$, on obtient

$$\begin{aligned}
\left\langle \left(\frac{dI}{dt}\right)^2 \right\rangle &= \frac{1}{w}\int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{dI}{dt}\right)^2 I(t)dt \\
&= \frac{w^2}{\Delta t_1^3 (2\pi)^{3/2}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{t^2}{\Delta t_1^4} \exp\left(-\frac{3t^2}{2\Delta t_1^2}\right) dt \\
&= \frac{w^2}{\Delta t_1^3 (2\pi)^{3/2}} \left(\frac{\Delta t_1}{\sqrt{3}}\right)^3 \frac{1}{\Delta t_1^4} \int_{-\infty}^{+\infty} x^2 \exp\left(-\frac{x^2}{2}\right) dx \\
&= \frac{w^2}{6\pi\sqrt{3}\Delta t_1^4}
\end{aligned}$$

On en déduit donc le système d'équations

$$\begin{aligned}
\Delta t_1^2 &= \Delta t_2^2 + \frac{\varphi''^2}{4\Delta t_2^2} \\
\frac{1}{\Delta t_2^2} &= \frac{1}{\Delta t_1^2} + \gamma^2 L_c^2 \frac{2w^2}{3\pi\sqrt{3}\Delta t_1^4}
\end{aligned}$$

qui permet de calculer les durées des impulsions sortant des deux côtés de la cavité. On peut retrouver le résultat de la partie II en supposant que la non-linéarité et que la dispersion sont faibles, ce qui permet de supposer que la déformation de l'impulsion est faible (Δt_2 proche de Δt_1). La première équation donne

$$\Delta t_2^2 = \Delta t_1^2 - \frac{\varphi''^2}{4\Delta t_2^2} \approx \Delta t_1^2 - \frac{\varphi''^2}{4\Delta t_1^2}$$

et

$$\frac{1}{\Delta t_2^2} \approx \frac{1}{\Delta t_1^2}\left(1 + \frac{\varphi''^2}{4\Delta t_1^4}\right)$$

En remplaçant dans la deuxième équation, on obtient

$$\frac{1}{\Delta t_1^2} + \frac{\varphi''^2}{4\Delta t_1^6} = \frac{1}{\Delta t_1^2} + \gamma^2 L_c^2 \frac{2w^2}{3\pi\sqrt{3}\Delta t_1^4}$$

soit

$$\gamma L_c w \Delta t_1 = \sqrt{\frac{3\pi\sqrt{3}}{8}} |\varphi''| = 1.43|\varphi''|$$

Le résultat de la question 2.3, exprimé à l'aide de l'écart quadratique moyen, s'écrit

$$\gamma L_c w \Delta t_1 = \frac{\pi^2}{6} |\varphi''| = 1.64|\varphi''|$$

Les deux résultats sont donc très proches, l'écart provenant des hypothèses différentes sur la forme de l'impulsion. On a donc montré que le modèle discret, qui rend mieux compte des observations expérimentales, redonne les résultats du modèle continu dans le cas limite où la déformation de l'impulsion au sein de la cavité peut être négligée.

D.8 Façonnage d'impulsion (2009)

Durée : 1h30

Le cours et les notes personnelles sont autorisés.

Il est **vivement recommandé** *de consulter au préalable le formulaire situé à la fin de ce document, puis de s'y reporter régulièrement, car on y trouvera certaines formules mathématiques utiles à la résolution du problème. Les quatre parties peuvent le plus souvent être traitées indépendamment à condition d'admettre les résultats annoncés dans le sujet.*

De nombreuses expériences utilisant des impulsions femtosecondes nécessitent un contrôle précis de la forme temporelle des impulsions, par exemple pour compenser la déformation subie lors de la propagation, ou bien pour des expériences de contrôle cohérent. On utilise pour cela un dispositif de façonnage d'impulsion, ou façonneur, qui est en fait un filtre linéaire programmable caractérisé par sa fonction de transfert complexe $R(\omega)$, déterminant la relation entre l'impulsion incidente, $\mathcal{E}_{in}(\omega)$, et l'impulsion produite par le façonneur, $\mathcal{E}_{out}(\omega)$. On a ainsi $\mathcal{E}_{out}(\omega) = R(\omega)\mathcal{E}_{in}(\omega)$, ou encore $\mathcal{E}_{out}(t) = R(t) \otimes \mathcal{E}_{in}(t)$ dans le domaine temporel. Comme il s'agit d'un filtre passif, on a obligatoirement $|R(\omega)| \leq 1$, ce qui signifie qu'il n'y a pas d'amplification. Dans le cas idéal, le façonneur permet de programmer le module et la phase de la fonction $R(\omega)$. Un exemple très répandu de façonneur est le dispositif représenté Fig. 1 et 2, et dont l'étude approfondie fait l'objet de ce problème. La Fig. 1 représente le trajet des différentes composantes spectrales constituant l'impulsion, tandis que la Fig. 2 représente la propagation du faisceau lumineux associé à la longueur d'onde centrale.

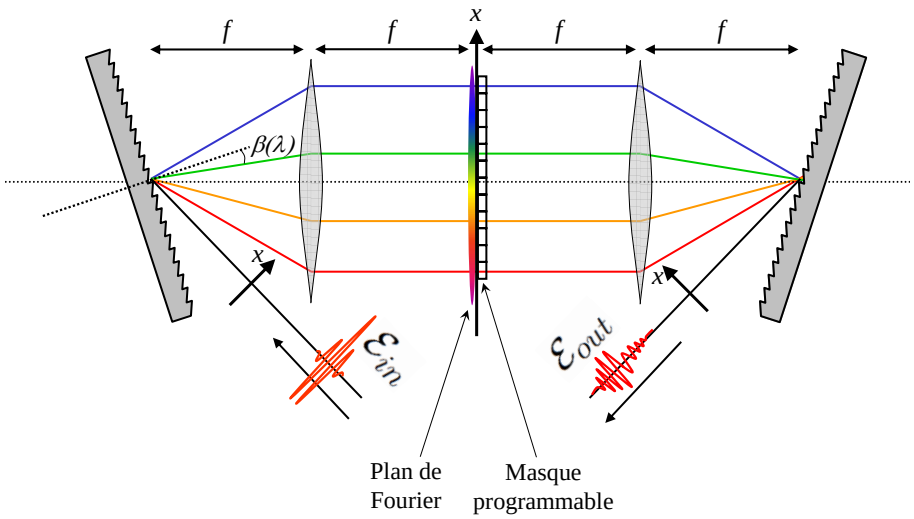


Fig. 1

Le faisceau incident est tout d'abord diffracté sur un réseau de diffraction, qui décompose les différentes composantes spectrales de l'impulsion. Chaque longueur d'onde est focalisée dans un plan appelé plan de Fourier situé dans le plan focal d'une lentille cylindrique, placée elle-même à une distance f du réseau de diffraction. Un masque, utilisant par exemple une matrice de cristaux liquides adressable spatialement et caractérisé par sa fonction de transfert complexe $M(x)$ permet de contrôler le module et la phase en chaque point du plan de Fourier. Puis le faisceau initial est reconstitué à l'aide d'un arrangement symétrique. Dans le cas où le masque est neutre ($M(x) = 1$), l'impulsion initiale est reconstituée identique à elle-même. A l'inverse, une modification de la fonction de transfert du masque permet de modifier la forme de l'impulsion transmise.

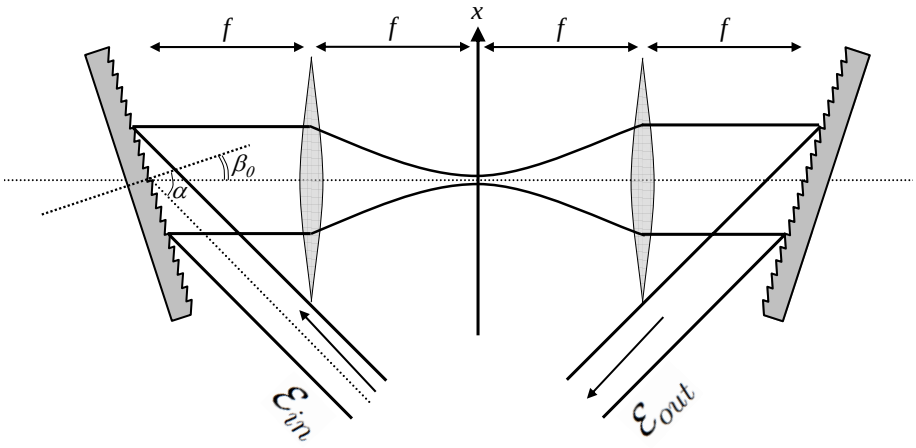


Fig. 2

Partie I : Introduction

1.1 *On rappelle que la diffraction sur un réseau de période d obéit à la relation*

$$\sin\alpha + \sin\beta(\lambda) = \frac{\lambda}{d} \tag{D.11}$$

où α est l'angle entre le faisceau incident et la normale au réseau, tandis que $\beta(\lambda)$ (ou $\beta(\omega)$) est l'angle du faisceau diffracté. On appellera $\beta_0 = \beta(\omega_0)$ l'angle associé au faisceau diffracté pour la fréquence centrale, ω_0, de l'impulsion (voir Fig. 2). On appellera $x(\omega)$ la coordonnée dans le plan de Fourier où est focalisée la composante de fréquence ω, en supposant que la fréquence centrale ω_0 est focalisée au centre ($x = 0$). En effectuant un développement au plus bas ordre en $\omega - \omega_0$, montrer que $x(\omega) \approx \xi(\omega - \omega_0)$, où ξ est un facteur que l'on déterminera.

Lorsque ω est suffisamment proche de ω_0, on a

$$x(\omega) = -f(\beta(\omega) - \beta(\omega_0))$$

en utilisant comme convention que l'angle β_0 représenté Fig. 2 est positif. On obtient alors

$$x(\omega) = -f\frac{d\beta}{d\omega}(\omega - \omega_0) = \xi(\omega - \omega_0)$$

avec

$$\xi = -f\frac{d\beta}{d\lambda}\frac{d\lambda}{d\omega}$$

En dérivant l'éq. D.11, on obtient

$$\cos\beta\frac{d\beta}{d\lambda} = \frac{1}{d}$$

Par ailleurs, $\lambda = 2\pi c/\omega$, donc

$$\frac{d\lambda}{d\omega} = -\frac{2\pi c}{\omega_0^2}$$

d'où l'on déduit

$$\xi = \frac{2\pi f c}{d\omega_0^2\cos\beta_0}$$

1.2 *On considère une impulsion limitée par transformée de Fourier, de forme gaussienne, et de durée $\Delta t = 10$ fs (au sens de l'écart quadratique moyen). Quelle sera l'extension Δx (au sens de l'écart quadratique moyen) du faisceau dans le plan de Fourier ? On donne la longueur d'onde centrale, $\lambda_0 = 800$ nm, le nombre de traits par mm gravés sur le réseau, $1/d = 300$ mm^{-1}, l'angle d'incidence du faisceau sur le réseau, $\alpha = 10°$, et la distance focale, $f = 250$ mm.*

D'après la question précédente, on a

$$\Delta x = \frac{f\lambda_0^2}{2\pi cd\cos\beta_0}\Delta\omega = \frac{f\lambda_0^2}{4\pi cd\Delta t\cos\beta_0}$$

où l'on a utilisé $\Delta\omega = 1/(2\Delta t)$ pour une gaussienne limitée par transformée de Fourier. Par ailleurs, d'après l'éq. D.11, on a $\beta_0 = 3.8°$ et $\cos\beta_0 = 0.998 \approx 1$. On obtient donc

$$\Delta x \approx 1.27\text{mm}$$

1.3 *On cherche à utiliser le façonneur pour produire deux répliques de l'impulsion incidente décalées l'une par rapport à l'autre d'un retard τ:*

$$\mathcal{E}_{out}(t) = \eta\left(\mathcal{E}_{in}(t+\tau/2) + \mathcal{E}_{in}(t-\tau/2)\right) \tag{D.12}$$

Déterminer le module et la phase de la fonction de transfert correspondante. Calculer la valeur de η associée à la meilleure transmission possible pour ce filtre (en supposant que τ est très supérieur à la durée Δt de l'impulsion incidente). Comment cette transmission se compare-t-elle à celle d'un interféromètre de Michelson que l'on aurait utilisé pour réaliser la même fonction ?

En prenant la transformée de Fourier inverse, on obtient

$$\mathcal{E}_{out}(\omega) = \eta(\exp(-i\omega\tau/2) + \exp(i\omega\tau/2))\mathcal{E}_{in}(\omega) = 2\eta\cos(\omega\tau/2)\mathcal{E}_{in}(\omega)$$

On a donc $R(\omega) = 2\eta\cos(\omega\tau/2)$ et $|R(\omega)| = 2\eta|\cos(\omega\tau/2)$. La phase à appliquer est une fonction périodique de période $2\pi/\tau$ et qui vaut 0 lorsque le cosinus est positif et π lorsqu'il est négatif. Comme $|R(\omega)| \leq 1$, on a $2\eta \leq 1$. La valeur maximale que l'on puisse prendre pour un filtre passif est donc $\eta = 1/2$. Chacune des impulsions comporte donc $\eta^2 = 1/4$ de l'énergie de l'impulsion incidente. C'est exactement ce qu'on aurait obtenu avec un interféromètre de Michelson, puisque chaque impulsion passe deux fois par une lame semi-réfléchissante, soit une transmission de 25% par impulsion, et une transmission globale de 50 %. Le façonneur permet donc de réaliser exactement la même fonction qu'un interféromètre de Michelson.

Partie II : Modélisation d'une ligne 4f

L'objet de cette partie est de modéliser la partie centrale du façonneur (à l'exception des réseaux de diffraction), appelée ligne 4f et représentée à nouveau Fig. 3.

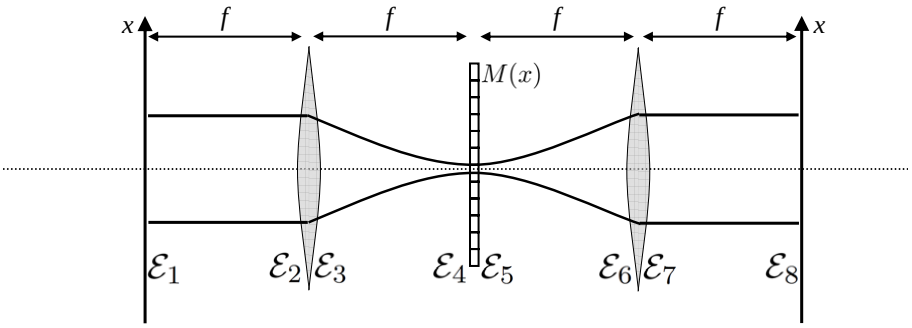


Fig. 3

Le système étant invariant par translation selon la dimension y (perpendiculaire au schéma des Fig. 1 à 3), on ne considérera qu'une seule variable transverse, x, et le champ sera donc caractérisé par la grandeur complexe $\mathcal{E}(x,\omega)$ en différents points du dispositif, comme représenté Fig. 3. Pour

éviter toute confusion, on utilisera la notation $\tilde{\mathcal{E}}(k_x,\omega)$ pour exprimer le champ dans l'espace des fréquences spatiales, qui est relié à $\mathcal{E}(x,\omega)$ par les relations de Fourier habituelles (voir eq. D.23 et D.24).

On rappelle les relations de transfert entre le champ entrant, $\mathcal{E}$, et le champ sortant, $\mathcal{E}'$ pour les éléments optiques suivants:

- Propagation libre sur une distance L

$$\tilde{\mathcal{E}}'(k_x,\omega) = \tilde{\mathcal{E}}(k_x,\omega)\exp\left(-i\frac{k_x^2 c}{2\omega}L + i\frac{\omega}{c}L\right) \tag{D.13}$$

- Traversée d'une lentille de distance focale f

$$\mathcal{E}'(x,\omega) = \mathcal{E}(x,\omega)\exp\left(-i\frac{\omega x^2}{2fc}\right) \tag{D.14}$$

2.1 *On considère tout d'abord la première moitié de la ligne. Exprimer le champ $\tilde{\mathcal{E}}_4$ en fonction de $\tilde{\mathcal{E}}_3$, puis $\tilde{\mathcal{E}}_3$ en fonction de $\tilde{\mathcal{E}}_2$, puis $\tilde{\mathcal{E}}_2$ en fonction de $\tilde{\mathcal{E}}_1$. En déduire l'expression de $\tilde{\mathcal{E}}_4(k_x,\omega)$ en fonction de la fonction $\tilde{\mathcal{E}}_1$. On explicitera le produit de convolution obtenu pour finalement exprimer $\tilde{\mathcal{E}}_4(k_x,\omega)$ en fonction de $\mathcal{E}_1$.*

En appliquant les relations données plus haut, on a, pour la propagation libre,

$$\tilde{\mathcal{E}}_2(k_x,\omega) = \tilde{\mathcal{E}}_1(k_x,\omega)\exp\left(i\frac{\omega f}{c} - i\frac{k_x^2 cf}{2\omega}\right)$$

et

$$\tilde{\mathcal{E}}_4(k_x,\omega) = \tilde{\mathcal{E}}_3(k_x,\omega)\exp\left(i\frac{\omega f}{c} - i\frac{k_x^2 cf}{2\omega}\right)$$

et, pour la traversée de la lentille,

$$\mathcal{E}_3(x,\omega) = \mathcal{E}_2(x,\omega)\exp\left(-i\frac{\omega x^2}{2fc}\right)$$

Cette dernière relation peut également s'écrire dans l'espace de Fourier comme un produit de convolution. En utilisant l'éq. D.26, on obtient

$$\begin{aligned}
\tilde{\mathcal{E}}_3(k_x,\omega) &= \frac{1}{2\pi}\tilde{\mathcal{E}}_2(k_x,\omega)\otimes e^{i\frac{\pi}{4}}\sqrt{\frac{2\pi fc}{\omega}}\exp\left(i\frac{fck_x^2}{2\omega}\right)\\
&= e^{i\frac{\pi}{4}}\sqrt{\frac{2\pi fc}{\omega}}\int\tilde{\mathcal{E}}_2(k'_x,\omega)\exp\left(i\frac{fc}{2\omega}(k_x^2+k_x'^2-2k_xk'_x)\right)\frac{dk'_x}{2\pi}\\
&= e^{i\frac{\pi}{4}}e^{i\omega f/c}\sqrt{\frac{2\pi fc}{\omega}}\int\tilde{\mathcal{E}}_1(k'_x,\omega)\exp\left(i\frac{fc}{2\omega}(k_x^2-2k_xk'_x)\right)\frac{dk'_x}{2\pi}
\end{aligned}$$

soit

$$\begin{aligned}\tilde{\mathcal{E}}_4(k_x,\omega) &= \exp\left(i\frac{\omega f}{c} - i\frac{k_x^2 cf}{2\omega}\right) e^{i\frac{\pi}{4}} e^{i\omega f/c}\sqrt{\frac{2\pi fc}{\omega}}\int \tilde{\mathcal{E}}_1(k'_x,\omega)\exp\left(i\frac{fc}{2\omega}(k_x^2 - 2k_x k'_x)\right)\frac{dk'_x}{2\pi}\\ &= e^{i\frac{\pi}{4}} e^{2i\omega f/c}\sqrt{\frac{2\pi fc}{\omega}}\int \tilde{\mathcal{E}}_1(k'_x,\omega)\exp\left(-i\frac{fck_x}{\omega}k'_x\right)\frac{dk'_x}{2\pi}\\ &= e^{i\frac{\pi}{4}} e^{2i\omega f/c}\sqrt{\frac{2\pi fc}{\omega}}\mathcal{E}_1\left(-\frac{fck_x}{\omega},\omega\right)\end{aligned}$$

2.2 *En prenant la transformée de Fourier de l'équation obtenue ci-dessus, et à l'aide d'un changement de variable approprié, exprimer $\mathcal{E}_4(x,\omega)$ à l'aide de la fonction $\tilde{\mathcal{E}}_1$. Discuter les résultats obtenus aux questions 2.1 et 2.2.*

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_4(x,\omega) &= \int \tilde{\mathcal{E}}_4(k_x,\omega)\exp(ik_x x)\frac{dk_x}{2\pi}\\ &= e^{i\frac{\pi}{4}} e^{2i\omega f/c}\sqrt{\frac{2\pi fc}{\omega}}\int \mathcal{E}_1\left(-\frac{fck_x}{\omega},\omega\right)\exp(ik_x x)\frac{dk_x}{2\pi}\\ &= e^{i\frac{\pi}{4}} e^{2i\omega f/c}\sqrt{\frac{2\pi fc}{\omega}}\frac{\omega}{2\pi fc}\int \mathcal{E}_1(x',\omega)\exp\left(-i\frac{\omega x}{fc}x'\right)dx'\\ &= e^{i\frac{\pi}{4}} e^{2i\omega f/c}\sqrt{\frac{\omega}{2\pi fc}}\tilde{\mathcal{E}}_1\left(\frac{\omega x}{fc},\omega\right)\end{aligned}$$

On observe que les champs à une distance f de part et d'autre de la lentille sont transformés de Fourier l'un de l'autre, propriété qui est à la base de l'optique de Fourier.

2.3 *On considère maintenant la ligne 4f dans son ensemble, comme représenté Fig. 3. L'effet du masque est simplement donné par la relation $\mathcal{E}_5(x,\omega) = M(x)\mathcal{E}_4(x,\omega)$. Exprimer $\tilde{\mathcal{E}}_8(k_x,\omega)$ en fonction de $\mathcal{E}_5$ puis montrer que*

$$\tilde{\mathcal{E}}_8(k_x,\omega) = i\exp\left(i\frac{4\omega f}{c}\right)M(\zeta k_x)\tilde{\mathcal{E}}_1(-k_x,\omega) \tag{D.15}$$

où $\zeta = -fc/\omega$.

La relation entre $\tilde{\mathcal{E}}_8$ et $\tilde{\mathcal{E}}_5$ est évidemment la même que celle entre $\tilde{\mathcal{E}}_4$ et $\tilde{\mathcal{E}}_1$. D'après la réponse à la question 2.1, on a donc

$$\begin{aligned}\tilde{\mathcal{E}}_8(k_x,\omega) &= e^{i\frac{\pi}{4}} e^{2i\omega f/c}\sqrt{\frac{2\pi fc}{\omega}}\mathcal{E}_5\left(-\frac{fck_x}{\omega},\omega\right)\\ &= e^{i\frac{\pi}{4}} e^{2i\omega f/c}\sqrt{\frac{2\pi fc}{\omega}}M\left(-\frac{fck_x}{\omega}\right)\mathcal{E}_4\left(-\frac{fck_x}{\omega},\omega\right)\\ &= ie^{4i\omega f/c}M\left(-\frac{fck_x}{\omega}\right)\tilde{\mathcal{E}}_1(-k_x,\omega)\end{aligned}$$

ce qui est bien la relation demandée.

2.4 *Donner l'interprétation physique du facteur* $\exp(i4\omega f/c)$ *et indiquer un changement de variable simple sur le champ* $\mathcal{E}_{out}(x,t)$ *permettant de s'en affranchir. Dans la suite du problème, on utilisera donc l'expression simplifiée*

$$\tilde{\mathcal{E}}_8(k_x,\omega) = iM(\zeta k_x)\tilde{\mathcal{E}}_1(-k_x,\omega) \tag{D.16}$$

Ce facteur est une phase spectrale linéaire qui correspond simplement à un retard temporel $4f/c$ qui n'est autre que le temps mis par la lumière pour parcourir la distance $4f$ entre l'entrée et la sortie de la ligne. C'est donc un terme trivial qui pourra être simplement ignoré dans la suite en considérant $\mathcal{E}_{out}(x,t-4f/c)$ au lieu de $\mathcal{E}_{out}(x,t)$.

2.5 *Discuter le résultat obtenu en l'absence de masque* ($M(x)=1$)*, puis dans le cas général. Quel type d'opération ce dispositif permet-il d'effectuer ?*

En l'absence de masque, on obtient $\tilde{\mathcal{E}}_8(k_x,\omega) = i\tilde{\mathcal{E}}_1(-k_x,\omega)$ et $\mathcal{E}_8(x,\omega) = i\mathcal{E}_1(-x,\omega)$. Le champ obtenu est une image parfaite du champ incident avec un grandissement égal à -1, ce qui est bien ce que l'on attend d'après l'optique géométrique. On obtient un déphasage de $\pi/2$ par passage au foyer au lieu de π habituellement car il s'agit ici de lentilles cylindriques et non sphériques (on a une seule dimension transverse au lieu de deux). En présence du masque, on a

$$\mathcal{E}_8(x,\omega) = i\tilde{M}\left(-\frac{\omega x}{fc}\right) \otimes \mathcal{E}_1(x,\omega)$$

Le champ obtenu est donc le produit de convolution entre le champ initial et la transformée de Fourier du masque, ce qui permet d'effectuer des fonctions utiles comme des produits de corrélation entre deux images ou encore le filtrage spatial d'un faisceau lumineux.

Partie III : Modélisation du dispositif de façonnage

On s'intéresse maintenant à la modélisation du façonneur dans son ensemble, tel que représenté Fig. 1. Il s'agit pour cela de prendre en compte l'effet de la diffraction sur les réseaux placés en amont et en aval de la ligne 4f étudiée lors de la partie précédente. On appellera $\mathcal{E}_{in}(x,\omega)$ le champ incident juste avant la diffraction sur le premier réseau, et $\mathcal{E}_{out}(x,\omega)$ le champ produit juste après la diffraction sur le second réseau, avec le choix d'axe transverse x comme représenté Fig. 1.

3.1 *On admet que la diffraction sur le premier réseau peut être caractérisée par la relation*

$$\mathcal{E}_1(x,\omega) = \sqrt{b}\mathcal{E}_{in}(bx,\omega)\exp\left(i\gamma(\omega-\omega_0)x\right) \tag{D.17}$$

où $b = \cos\alpha/\cos\beta_0$ *et*

$$\gamma = \frac{2\pi}{\omega_0 d\cos\beta_0}$$

De même, la diffraction sur le second réseau sera gouvernée par la relation

$$\mathcal{E}_{out}(x,\omega) = \frac{1}{\sqrt{b}}\mathcal{E}_8(x/b,\omega)\exp\left(i\frac{\gamma(\omega-\omega_0)x}{b}\right) \tag{D.18}$$

Commenter les relations ci-dessus sans chercher à les démontrer rigoureusement. On pourra notamment s'intéresser à l'extension transverse du faisceau juste avant et juste après le premier réseau, et à la dispersion angulaire du faisceau diffracté.

On sait d'après le cours qu'un gradient de phase spatiale est lié à l'angle de propagation du faisceau selon la relation

$$\frac{d\phi}{dx} = \frac{\omega}{c}(\beta_0 - \beta)$$

Le gradient de phase proposé correspond donc à

$$\frac{d\beta}{d\omega} = -\frac{\gamma c}{\omega_0} = -\frac{2\pi c}{\omega_0^2 d\cos\beta_0}$$

ce qui correspond bien à la relation que nous avions établie à la question 1.1. Le facteur $1/b$ dans l'argument de $\mathcal{E}_{in}$ correspond à une dilatation du profil transverse du faisceau en raison de la nature non spéculaire de la réflexion sur le réseau. En effet, si on écrit l'expression de Δx_1^2 comme une intégrale faisant intervenir $|\mathcal{E}_1(x,\omega)|^2 \propto |\mathcal{E}_{in}(bx,\omega)|^2$, un simple changement de variable fera apparaître un facteur $1/b^2$. D'où $\Delta x_1 = \Delta x_{in}/b$. Ceci est compatible avec le fait que la projection des faisceaux incident et diffracté est la même, soit

$$\frac{\Delta x_{in}}{\cos\alpha} = \frac{\Delta x_1}{\cos\beta}$$

Enfin, la diffraction sur le deuxième réseau est décrite par une relation similaire à celle pour le premier réseau, à la différence près que les rôles de α et β sont inversés, ce qui change b en $1/b$. Par ailleurs, le terme de phase spatiale en γ/b permet de faire apparaître $1/\cos\alpha$ à la place de $1/\cos\beta$.

3.2 *Montrer que*

$$\tilde{\mathcal{E}}_{out}(k_x,\omega) = iM(\zeta(bk_x - \gamma(\omega-\omega_0)))\tilde{\mathcal{E}}_{in}(-k_x,\omega) \tag{D.19}$$

D'après l'éq. D.17, on a

$$\begin{aligned}
\tilde{\mathcal{E}}_1(k_x,\omega) &= \sqrt{b}\int \mathcal{E}_{in}(bx,\omega)\exp\left(i\gamma(\omega-\omega_0)x\right)\exp(-ik_x x)dx \\
&= \frac{1}{\sqrt{b}}\int \mathcal{E}_{in}(x',\omega)\exp\left(-i\frac{k_x-\gamma(\omega-\omega_0)}{b}x'\right)dx' \\
&= \frac{1}{\sqrt{b}}\tilde{\mathcal{E}}_{in}\left(\frac{k_x-\gamma(\omega-\omega_0)}{b},\omega\right)
\end{aligned}$$

On peut de même exprimer $\tilde{\mathcal{E}}_{out}$ en fonction de $\tilde{\mathcal{E}}_8$ en remplaçant b par $1/b$ et γ par γ/b. On obtient donc

$$\tilde{\mathcal{E}}_{out}(k_x,\omega) = \sqrt{b}\tilde{\mathcal{E}}_8\left(bk_x - \gamma(\omega-\omega_0),\omega\right)$$

$$\begin{aligned} &= i\sqrt{b}M(\zeta(bk_x - \gamma(\omega-\omega_0)))\tilde{\mathcal{E}}_1(-bk_x + \gamma(\omega-\omega_0)),\omega) \\ &= iM(\zeta(bk_x - \gamma(\omega-\omega_0)))\tilde{\mathcal{E}}_{in}(-k_x,\omega) \end{aligned}$$

Partie IV : Couplage spatio-temporel

4.1 *On suppose, uniquement dans cette question, que la divergence angulaire du faisceau est suffisamment faible pour qu'on puisse poser $k_x = 0$ dans l'éq. D.19. Exprimer dans cette limite la fonction de transfert $R(\omega)$ du dispositif de façonnage en fonction de la fonction M caractérisant le masque programmable (on pourra remplacer ζ par $-fc/\omega_0$ en supposant que la largeur spectrale de l'impulsion est faible devant ω_0). Comparer l'expression obtenue au résultat de la question 1.1.*

On obtient immédiatement

$$R(\omega) = iM(-\zeta\gamma(\omega-\omega_0)) = iM\left(\frac{\gamma fc}{\omega}(\omega-\omega_0)\right) = iM\left(\frac{2\pi fc}{\omega_0^2 d\cos\beta_0}(\omega-\omega_0)\right) = iM(\xi(\omega-\omega_0))$$

ce qui est en parfait accord avec l'expression de $x(\omega)$ obtenue en 1.1.

4.2 *On cherche à produire une impulsion décalée d'un retard τ variable. Donner l'expression de la fonction de transfert correspondante $R(\omega)$, puis celle de la fonction $M(x)$ correspondante selon l'approximation de la question 4.1.*

On a $R(\omega) = \exp(i\omega\tau)$ et donc

$$M(x) = -ie^{i\omega_0\tau}\exp\left(i\frac{\tau x}{\xi}\right)$$

4.3 *Calculer le champ $\mathcal{E}_{out}(k_x,\omega)$ que l'on obtiendrait avec le masque $M(x)$ obtenu en 4.2, puis en déduire l'expression du champ $\mathcal{E}_{out}(x,t)$ en fonction de $\mathcal{E}_{in}(x,t)$. Qu'observe-t-on ?*

En remplaçant la fonction M par sa valeur dans l'éq. D.19, on obtient

$$\tilde{\mathcal{E}}_{out}(k_x,\omega) = \exp\left(i\omega\tau - i\frac{b\tau}{\gamma}k_x\right)\tilde{\mathcal{E}}_{in}(-k_x,\omega)$$

On a donc une phase linéaire dans l'espace des ω et dans l'espace des k_x. Lorsqu'on effectue une double transformée de Fourier pour aller de l'espace des (k_x,ω) vers l'espace des (x,t), chacune de ces phases linéaires va donner lieu à un décalage.

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{out}(x,t) &= \int\int \tilde{\mathcal{E}}_{out}(k_x,\omega)\exp(ik_x x - \omega t)\frac{dk_x}{2\pi}\frac{d\omega}{2\pi} \\ &= \int\int \tilde{\mathcal{E}}_{in}(-k_x,\omega)\exp\left(ik_x\left(x-\frac{b\tau}{\gamma}\right) - i\omega(t-\tau)\right)\frac{dk_x}{2\pi}\frac{d\omega}{2\pi} \\ &= \int\int \tilde{\mathcal{E}}_{in}(k_x,\omega)\exp\left(ik_x\left(-x+\frac{b\tau}{\gamma}\right) - i\omega(t-\tau)\right)\frac{dk_x}{2\pi}\frac{d\omega}{2\pi} \\ &= \mathcal{E}_{in}\left(-x+\frac{b\tau}{\gamma}, t-\tau\right) \end{aligned}$$

On observe qu'un décalage temporel de l'impulsion s'accompagne d'un décalage du faisceau proportionnel à τ. C'est le couplage spatio-temporel, qui est une limite importante du dispositif de façonnage étudié ici : toute modification du profil temporel de l'impulsion s'accompage d'une déformation de son profil spatial, comme illustré ici dans le cas simple d'une translation du profil spatio-temporel.

4.4 *La Fig. 4, extraite d'un article de F. Frei et al. (J. Chem. Phys.* **130**, *034302 (2009)), représente le profil transverse du faisceau lumineux mesuré en sortie du façonneur pour* $\tau = 0$ *(a) et* $\tau = 500$ fs *(b). Commenter le résultat expérimental sachant que les paramètres numériques sont les mêmes que ceux donnés à la question 1.2. A quel type de profil temporel pourrait correspondre le profil spatial mesuré en (c) ?*

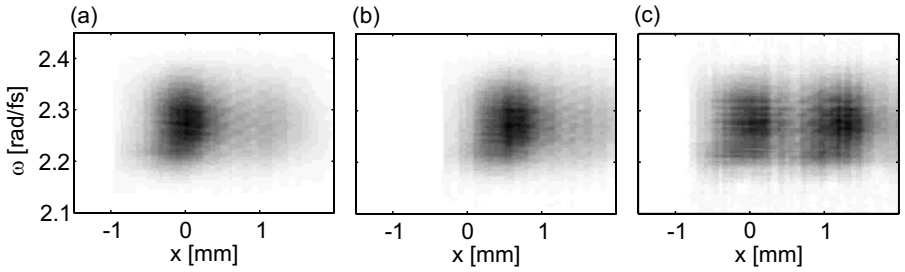


Fig. 4

Le résultat expérimental est en accord avec la théorie : tout décalage temporel τ s'accompagne d'un décalage spatial $(b/\gamma)\tau$. Le coefficient de proportionnalité s'écrit

$$\frac{b}{\gamma} = \frac{\omega_0 d \cos\alpha}{2\pi} = \frac{cd\cos\alpha}{\lambda_0} = 1.23\ \mu\text{m/fs}$$

Un décalage temporel de 500 fs est donc associé à un décalage du faisceau d'environ 600 μm, ce qui correspond exactement à l'image observée. La Fig. 4(c) montre deux taches, ce qui correspond donc à la superposition de deux impulsions, l'une centrée en $t = 0$, et l'autre décalée d'environ 1 ps.

N.B. : les valeurs numériques ont été modifiées par rapport à l'article original pour éviter les risques d'erreurs associés aux angles négatifs correspondant aux valeurs réelles des paramètres. Le retard correspondait en fait au double de la valeur indiquée, de même que le nombre de traits du réseau.

Formulaire

$$f(t) = \int f(\omega)\exp(-i\omega t)\frac{d\omega}{2\pi} \tag{D.20}$$

$$f(\omega) = \int f(t)\exp(i\omega t)dt \tag{D.21}$$

$$\int f(t-\tau)\exp(i\omega t)dt = f(\omega)\exp(i\omega\tau) \tag{D.22}$$

$$\mathcal{E}(x,\omega) = \int \tilde{\mathcal{E}}(k_x,\omega)\exp(ik_x x)\frac{dk_x}{2\pi} \tag{D.23}$$

$$\tilde{\mathcal{E}}(k_x,\omega) = \int \mathcal{E}(x,\omega)\exp(-ik_x x)dx \tag{D.24}$$

$$\int f_1(x,\omega)f_2(x,\omega)\exp(-ik_x x)dx = \frac{1}{2\pi}\tilde{f}_1(k_x,\omega)\otimes\tilde{f}_2(k_x,\omega) = \int \tilde{f}_1(k'_x,\omega)\tilde{f}_1(k_x - k'_x,\omega)\frac{dk'_x}{2\pi} \tag{D.25}$$

$$\int \exp\left(-i\frac{ax^2}{2}\right)\exp(-ik_x x)dx = e^{i\frac{\pi}{4}}\sqrt{\frac{2\pi}{a}}\exp\left(i\frac{k_x^2}{2a}\right) \tag{D.26}$$

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. Froehly, 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 Magnetique Resonnance 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.

[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. Lozovoy, 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).