

UNIVERSITÉ DE STRASBOURG

*ÉCOLE DOCTORALE DE PHYSIQUE ET
CHIMIE-PHYSIQUE*

Institut de Physique et de Chimie des Matériaux de Strasbourg

THÈSE présentée par :

Déborah PERSUY

soutenue le : **16 juillet 2015**

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université de Strasbourg**

Discipline/ Spécialité : Physique

**Nanoscopie résolue en temps :
étude de la réponse spatiale
et temporelle pour
l'imagerie ultra-rapide**

THÈSE dirigé par :

M. HONERLAGE Bernd Professeur, Université de Strasbourg

RAPPORTEURS :

M. LOUNIS Brahim Professeur, Université de Bordeaux

M. GUILLET Thierry Professeur, Université de Montpellier

EXAMINATEURS :

M. CHARITAT Thierry Professeur, Université de Strasbourg

M. GUILLON Marc Maître de conférences, Université Paris Descartes

M. GILLIOT Pierre Directeur de recherches, Université de Strasbourg

Á Agnès et Gérard PERSUY

Remerciements

Tout d'abord je tiens à remercier tous les membres de mon jury, Messieurs Brahim Lounis, Thierry Guillet, Thierry Charitat et Marc Guillon pour l'honneur qu'ils m'ont fait en acceptant de siéger à mon jury de thèse.

Je désire exprimer ma reconnaissance au Professeur Bernd Hönerlague qui, en m'accueillant dans le groupe d'Optique ultra-rapide et de Nanophotonique de l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg et en acceptant de diriger mes travaux de recherche, m'a permise de découvrir un domaine passionnant de la physique. Je tiens également à le remercier pour ses précieuses explications sur la théorie des bandes, qui restait jusqu'alors très mystérieuse pour moi.

Je dois beaucoup à Monsieur Pierre Gilliot, Directeur de recherche au CNRS, qui m'a initiée à la recherche et dont les compétences scientifiques et les idées novatrices m'ont permise de mener à bien ce travail. Il m'a également fait découvrir les subtilités du monde de la recherche où l'illusion côtoie souvent la réalité...Je le remercie sincèrement.

Monsieur Mathieu Gallart m'a constamment aidé et soutenu tout au long de ce travail. Son aide, ses encouragements et ses conseils m'ont été précieux. Sa disponibilité, sa bonne humeur, sa patience et ses qualités humaines sont exceptionnelles. Qu'il en soit vivement remercié. Je le remercie également d'avoir relu ce mémoire avec une grande minutie.

Un grand merci à Monsieur Marc Ziegler, ingénieur d'étude, sans qui je n'aurais pas pu commencer les manips. Je lui suis redevable pour les nombreuses discussions et heures passées ensemble autour de nos montages expérimentaux. Qu'il soit assuré de ma sincère reconnaissance et de ma sympathie.

Je remercie également Monsieur Olivier Crégut, Ingénieur de recherche, « l'oracle » des salles d'optiques, pour ses nombreux conseils et son aide précieuse.

Les problèmes électroniques des montages expérimentaux, ont été résolus avec compétence et rigueur par Monsieur Jean-Pierre Vola. Je l'en remercie.

Je remercie Monsieur Gautier Dekyndt pour la qualité des pièces mécaniques réalisées avec ses mains expertes et pour m'avoir laissé le loisir de bricoler quelques pièces dans son atelier.

Je tiens à mentionner le plaisir que j'ai eu à travailler au sein du « DON », et j'en remercie tous les membres.

Je voudrais saluer tant mes compagnons successifs de bureau que ceux de pause grâce auxquels ce travail s'est toujours déroulé dans la bonne humeur.

Merci enfin à ma famille, à mes amis et à Manuel de m'avoir supportée et aidée.

Table des matières

Introduction générale	1
I Mesure de réponses optiques : dynamique temporelle et résolution spatiale	7
1 Techniques de spectroscopie ultra-rapide	11
1.1 Réponse d'un matériau à une excitation lumineuse	11
1.2 Processus non-linéaires d'ordre 3 : effet Kerr optique	13
1.2.1 Définition	13
1.2.2 Les différents processus du troisième ordre	14
1.3 Dynamique des non-linéarités : équations de Bloch	15
1.4 Détermination des non-linéarités optiques	20
1.4.1 Mélange à quatre ondes	20
1.4.2 Pompe-sonde	25
1.5 Conclusion	26
2 Extension de la microscopie à des dimensions submicroniques	29
2.1 Limite de résolution de la microscopie optique	30
2.1.1 Approche qualitative	30
2.1.2 Optique de Fourier	32
2.1.3 Instrument d'optique à symétrie circulaire	35
2.1.4 Limite de diffraction intrinsèque	38
2.2 Microscopie en champ proche	40
2.2.1 L'onde évanescente de Fresnel	40
2.2.2 Ondes évanescentes créées par diffraction	43
2.2.3 Détection des ondes évanescentes	44
2.2.4 Microscope optique en champ proche	45
2.3 Microscopie en champ lointain	46
2.3.1 Nano-objets luminescents	47

2.3.2	Microscopie de photoluminescence	49
2.3.3	Microscopies d'hyper-résolution	50
2.4	Conclusion	62
 II Effet d'une modulation spatiale sur la réponse optique : étude du mélange d'ondes avec des faisceaux de Laguerre- Gauss		63
	Introduction	67
3	Les modes de Laguerre-Gauss	69
3.1	Les modes propagatifs du champ électromagnétique : du mode Gaussien au mode de Laguerre-Gauss	69
3.1.1	L'équation d'onde	69
3.1.2	Solutions de l'équation d'onde paraxiale	70
3.1.3	Particularités des modes de Laguerre-Gauss	74
3.2	Le moment orbital angulaire	76
3.3	Génération et caractérisation de faisceaux de Laguerre-Gauss	78
3.3.1	Interférence entre deux faisceaux de Laguerre-Gauss	78
3.3.2	Caractérisation des modes de Laguerre-Gauss	82
3.3.3	Génération de modes de Laguerre-Gauss	83
4	Équations de Bloch et modes de Laguerre-Gauss	87
4.1	Expression de la polarisation du troisième ordre	88
4.2	Expression simple du signal généré par la polarisation du troisième ordre : conservation du moment orbital angulaire	90
4.3	Expression générale du signal généré par la polarisation du troisième ordre	100
4.3.1	Modes généralisés d'Hermite-Laguerre-Gauss	100
4.3.2	Fonction génératrice des modes	102
4.3.3	Produits de modes de Laguerre-Gauss	102
4.3.4	Exemples et interprétations	111
5	Échantillon étudié : puits quantique de CdTe/CdZnTe	115
5.1	Propriétés générales des matériaux massifs CdTe et CdZnTe	115
5.1.1	Structure cristallographique	115
5.1.2	Structure de bande	116
5.1.3	Les excitons	116
5.2	Description de l'échantillon	118
5.2.1	Croissance épitaxiale par jet moléculaire de puits quantique	118

5.2.2	Structure de bande et propriétés optiques	120
5.3	Refroidissement de l'échantillon	125
6	Expérience de mélange d'ondes en géométrie non-colinéaire	127
6.1	Montage expérimental	127
6.1.1	Génération des impulsions	127
6.1.2	Modulateur acousto-optique	128
6.1.3	Configuration du montage expérimental	129
6.1.4	Contrôle du retard, précision des mesures résolues en temps . .	129
6.2	Détections et caractérisations des faisceaux générés	130
6.2.1	Imagerie et mesure du moment orbital angulaire des faisceaux générés	130
6.2.2	Mesures résolues en temps	133
6.3	Conclusion	136
7	Expérience de mélange d'ondes en géométrie colinéaire	137
7.1	Le montage expérimental	137
7.2	Résultats	138
7.3	Conclusion	140
III	Développement d'une expérience d'imagerie résolue en temps	143
8	Principes et contraintes du montage expérimental	147
8.1	Objectifs	147
8.2	Technique de spectroscopie ultra-rapide pompe-sonde	148
8.3	Proposition de montage	148
8.4	Cahier des charges	149
9	Bases nécessaires à l'expérience	151
9.1	Échantillon utilisé	151
9.1.1	Élaboration de l'échantillon	151
9.1.2	Structure cristallographique	152
9.1.3	Structure de bande	153
9.1.4	Transitions optiques bande à bande	153
9.1.5	Spectres d'absorption et de photoluminescence : propriétés optiques	155
9.2	Génération des impulsions	159
9.2.1	Source laser	159

9.2.2	L'amplificateur paramétrique optique non-colinéaire (NOPA) : préparation des impulsions pompe et sonde	160
10	Montage d'imagerie pompe-sonde	165
10.1	Détection interférométrique	165
10.1.1	Configuration du montage expérimental	165
10.1.2	Le compensateur de Babinet-Soleil et son point de fonctionnement	168
10.2	Imagerie	170
10.2.1	Disposition du montage expérimental	170
10.2.2	Image en champ large de l'échantillon	170
10.2.3	Grandissement réel	171
10.3	Dispositif pompe-sonde	173
10.3.1	Configuration finale du montage expérimental	173
10.3.2	Résolution temporelle	174
10.4	Mesures pompe-sonde intégrées spatialement	175
10.4.1	Pompe centrée à $395nm$	175
10.4.2	Pompe centrée à $500nm$	177
10.5	Mesures pompe-sonde résolues spatialement	178
10.5.1	Images enregistrées	178
10.5.2	Coupes spatiales	182
10.5.3	Résolution spatiale	184
10.6	Modélisation des mesures réalisées	184
11	Conclusions et perspectives	189
11.1	Bilan	189
11.2	Perspectives	189
	Conclusion générale	195
Annexe		198
A	Modes optiques et non-linéarité	199
A.1	Modes gaussiens	199
A.1.1	Modes d'Hermite-Gauss	199
A.1.2	Modes de Laguerre-Gauss	200
A.1.3	Modes généralisés d'Hermite-Laguerre-Gauss	200
A.2	Fonction génératrice des modes	202
A.2.1	Modes généralisés d'Hermite-Laguerre-Gauss	202
A.2.2	Modes d'Hermite-Gauss	203

A.2.3	Modes de Laguerre-Gauss	203
A.3	Produits de modes gaussiens	203
A.3.1	Produits de polynômes d’Hermite	203
A.3.2	Produits de modes d’Hermite-Gauss de même <i>waist</i>	205
A.3.3	Produit des polynômes de Laguerre	206
A.3.4	Produits de polynômes de Laguerre-Gauss pour des <i>waists</i> différents	211
A.3.5	Produits de modes de Laguerre-Gauss de <i>waists</i> différents	219
B	Illumination structurée : mise en forme spatiale du faisceau d’excitation	225
B.1	<i>Spatial light modulator</i> (SLM)	225
B.2	Le montage « 4f »	225
	Bibliographie	231
	Publications et conférences	233

Introduction générale

Contexte scientifique

L'Avènement des lasers impulsionnelles dans les années 90 a permis le développement de la spectroscopie résolue en temps. De nombreuses techniques, telle que les expériences pompe-sonde ou de mélange d'onde, ont alors été conçues pour explorer les cinétiques de relaxations, électroniques ou vibrationnelles, des objets étudiés sur des échelles de temps descendant à la femtoseconde en couplant leur mesure à celle de non-linéarités optiques, et principalement celles du troisième ordre. Mais, elles se restreignent la plupart du temps à des mesures d'ensemble. En effet, la diffraction limite la taille minimal du volume excité par un faisceau lumineux à quelques dizaines de micromètres et, au mieux, au micromètre.

Récemment, les techniques d'exploration optique de nano-objets et d'extension de la microscopie à des dimensions sub-diffraction ont cependant connu une évolution soutenue. Il a alors été montré que ce sont les objets étudiés eux-mêmes, *via* leurs niveaux électroniques et leurs non-linéarités optiques, qui peuvent permettre de descendre à des résolutions de l'ordre de la dizaine de nanomètre tandis que la microscopie optique conventionnelle est limitée à des résolutions de l'ordre de la centaine de nanomètre. Le STED, par exemple, utilise le caractère fortement non-linéaire de l'émission stimulée qui, dans la partie sombre d'un faisceau de Laguerre-Gauss limitée par la diffraction, sélectionne une zone beaucoup plus petite où l'intensité lumineuse est en dessous du seuil de stimulation [32]. De fait, cette technique a montré sa capacité à mesurer la spectroscopie de fluorescence de nano-objets individuels [56] et a valu à ses inventeurs le prix Nobel de chimie en 2014. Cette technique a aussi permis d'imager des objets non fluorescents en la couplant avec une technique de spectroscopie ultra-rapide : la technique pompe-sonde, donnant naissance à un nouveau type de microscopie sub-longueur d'onde, la microscopie à saturation d'absorption transitoire [66]. La microscopie à illumination structurée permet elle aussi d'imager efficacement des nano-objets non fluorescent [24]. Cette microscopie est basée sur l'effet Moiré, c'est à dire le battement entre les fréquences spatiales des détails nanométriques d'un échantillon et celles générées par la réponse non-linéaire de l'échantillon soumis à un éclaircissement

modulé spatialement. Elle donne alors accès à des informations non accessibles par des microscopes conventionnels ou confocaux.

Ces nouvelles microscopies utilisent des faisceaux d'excitation mis en forme spatialement qui couplés aux non-linéarités optiques des objets étudiés permettent de dépasser la barrière de diffraction formulée par Ernst Abbe vers 1870 et qui semblait être une « limite infranchissable ». On peut noter cependant que ce physicien allemand n'a lui-même jamais considéré qu'il puisse s'agir d'une limite définitive. Il écrivait ainsi en 1870 : « *Il se peut que dans l'avenir, l'esprit humain découvre des processus et des forces permettant de franchir ce mur qui nous paraît actuellement infranchissable. Je pense personnellement que cela se fera. Mais en même temps, je crois que quel qu'il soit, l'outil qui nous permettra d'étudier l'infiniment petit de manière plus efficace que notre microscope actuel n'aura en commun avec lui que le nom* ».

On voit en effet que la prise en compte de la variation spatiale de l'intensité d'excitation et de la réponse non-linéaire induite est primordiale dans ces évolutions. Il est à noter en outre que la réponse spatiale à des faisceaux toujours focalisés est presque systématiquement négligée en spectroscopie non-linéaire et résolue en temps. Il est donc pertinent d'examiner la réponse à des faisceaux structurés spatialement et avec d'autres modes, plus réalistes, que des simples ondes planes.

Cette thèse a donc pour objectifs à la fois d'examiner la réponse des échantillons à des excitations mises en forme spatialement dans des expériences résolues en temps et d'accéder à des informations sur la dynamique temporelle comme sur les non-linéarités optiques de nano-objets individuels. Plusieurs défis expérimentaux doivent alors être relevés, d'une part en terme de mise en forme spatiale des faisceaux d'excitation, qui, grâce aux couplages avec les non-linéarités optiques, permettra de dépasser la limite de résolution imposée par la diffraction et d'autre part en termes de détection puisqu'il va être nécessaire de mesurer des variations d'intensité de l'ordre de quelques photons par impulsion lumineuse. Tandis que ce dernier point relève uniquement d'un développement expérimental et technique, le premier est d'une importance théorique plus fondamentale. En effet, la forme spatiale des impulsions dans la modélisation des processus non-linéaires n'est jamais prise en compte et les champs électriques incidents sont supposés posséder un front d'onde plan alors que lors des expériences les faisceaux sont fortement focalisés et de nombreux phénomènes (tels que la saturation) modifient de manière importante leurs formes spatiales.

Organisation du manuscrit

Ce manuscrit est organisé en trois parties.

Dans la première partie nous introduirons les concepts clefs des mesures de réponses optiques, autant dynamiques que statiques. Les mesures dynamiques réalisées par des techniques de spectroscopie ultra-rapide nous renseignent sur les cinétiques de relaxation des excitations électroniques sur des échelles de temps descendant à la femtoseconde grâce au couplage avec la mesure de non-linéarités optiques. L'étude de ces techniques fera l'objet d'un premier chapitre. Nous montrerons alors qu'un développement perturbatif en champs des équations de Bloch sur le modèle simple du système à deux niveaux permettent de décrire correctement les évolutions temporelles des populations et des cohérences électroniques lors d'une interaction lumière-matière *via* des processus non-linéaires. Dans le deuxième chapitre nous nous interrogerons sur la possibilité de l'extension de la microscopie à des dimensions submicroniques. La diffraction de la lumière limitant la dimension de la taille minimal des faisceaux, elle constitue à ce titre une barrière *a priori* infranchissable dont nous étudierons en détails son origine et ses conséquences. Pour finir, nous présenterons les différentes techniques qui ont été mises au point pour dépasser cette « barrière de diffraction ».

Dans la deuxième partie, nous nous intéresserons à la réponse non-linéaire d'un échantillon de semi-conducteur soumis à une excitation modulée spatialement. Nous nous sommes alors concentrés sur le cas particulier des modes de Laguerre-Gauss qui forment une base complète de l'équation d'onde paraxiale et qui possède une symétrie de révolution autour de leur axe de propagation, propriétés communes pour tous les faisceaux laser. Nous décrirons alors ces modes particuliers et leurs caractéristiques, notamment en terme de moment orbital angulaire, dans un premier chapitre. Nous étudierons ensuite quantitativement l'influence de la forme spatiale des faisceaux de Laguerre-Gauss sur la réponse optique non-linéaire du troisième ordre à travers les équations de Bloch. Puis, après avoir décrit et donné les caractéristiques optiques du puits quantique de CdTe/CdZnTe utilisé, nous présenterons l'expérience de mélange d'onde réalisée avec des faisceaux de Laguerre-Gauss en géométrie non-colinéaire. Les résultats de cette expérience nous ont permis de concevoir une expérience de mélange d'onde en géométrie colinéaire grâce aux modes de Laguerre-Gauss. Le développement expérimental qui lui est associé ainsi que les résultats obtenus seront présentés dans le dernier chapitre de cette deuxième partie.

La troisième partie de ce manuscrit est consacrée au développement d'une expérience d'imagerie résolue en temps dont l'objectif est de disposer d'une méthode d'exploration optique permettant de cartographier les caractéristiques optiques d'un échantillon ainsi que les cinétiques de relaxation de ses inhomogénéités, s'il y a lieu. Le premier chapitre permettra de bien préciser les objectifs que l'on veut atteindre avec ce nouveau type d'expérience et de déterminer les contraintes qui lui sont associées d'une part en terme de résolution temporelle et d'autre part en terme de détection. Nous présenterons le matériau utilisé pour la mise au point de l'expérience de nanoscopie résolue en temps ainsi que la génération des impulsions, base nécessaire au développement expérimental, dans le deuxième chapitre de cette troisième partie. Nous détaillerons ensuite le montage expérimental que nous avons conçu et montrerons qu'il nous permet d'imager efficacement l'échantillon étudié ainsi que d'effectuer des mesures résolues en temps et spatialement. Nous présenterons enfin une modélisation de notre montage expérimental qui permettra un bilan de nos résultats et donnera les perspectives d'évolution de notre montage expérimental.

Première partie

Mesure de réponses optiques : dynamique temporelle et résolution spatiale

1	Techniques de spectroscopie ultra-rapide	11
1.1	Réponse d'un matériau à une excitation lumineuse	11
1.2	Processus non-linéaires d'ordre 3 : effet Kerr optique	13
1.2.1	Définition	13
1.2.2	Les différents processus du troisième ordre	14
1.3	Dynamique des non-linéarités : équations de Bloch	15
1.4	Détermination des non-linéarités optiques	20
1.4.1	Mélange à quatre ondes	20
1.4.2	Pompe-sonde	25
1.5	Conclusion	26
2	Extension de la microscopie à des dimensions submicroniques	29
2.1	Limite de résolution de la microscopie optique	30
2.1.1	Approche qualitative	30
2.1.2	Optique de Fourier	32
2.1.3	Instrument d'optique à symétrie circulaire	35
2.1.4	Limite de diffraction intrinsèque	38
2.2	Microscopie en champ proche	40
2.2.1	L'onde évanescente de Fresnel	40
2.2.2	Ondes évanescentes créées par diffraction	43
2.2.3	Détection des ondes évanescentes	44
2.2.4	Microscope optique en champ proche	45
2.3	Microscopie en champ lointain	46
2.3.1	Nano-objets luminescents	47
2.3.2	Microscopie de photoluminescence	49
2.3.3	Microscopies d'hyper-résolution	50
2.4	Conclusion	62

Chapitre 1

Techniques de spectroscopie ultra-rapide

La spectroscopie optique linéaire, c'est à dire à basse intensité d'excitation, basée sur les sources continues, a prouvé depuis longtemps qu'elle est un moyen puissant pour étudier les états stationnaires et d'équilibre des électrons dans les matériaux. Le développement rapide des lasers impulsionsnels durant ces dernières décennies a fait progresser l'application de la spectroscopie optique à l'analyse des différents comportements dynamiques et des réponses non-linéaires.

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser à l'interaction lumière-matière afin de décrire ces différents comportements. La description de la réponse d'un milieu à une excitation lumineuse par un développement perturbatif de la densité de polarisation nous permettra de distinguer l'optique linéaire de l'optique non-linéaire. Elle nous permettra ensuite de décrire la cinétique des différents processus non-linéaires pouvant avoir lieu, et principalement les processus du troisième ordre. Enfin, nous présenterons le principe des différentes techniques expérimentales utilisées pour mesurer ces cinétiques. Nous appliquerons ces modèles principalement à des composés semi-conducteurs.

1.1 Réponse d'un matériau à une excitation lumineuse

La lumière, dans son interaction avec la matière, polarise les atomes ou les molécules d'un milieu par l'action du champ électrique \mathbf{E} . La polarisation \mathbf{P} du matériau est alors la grandeur macroscopique correspondant à la somme des moments dipolaires microscopiques créés dans le milieu par unité de volume. La réponse d'un matériau est donc caractérisée par sa polarisation \mathbf{P} qui est une fonction du champ électrique \mathbf{E} . Dans l'approximation où les perturbations induites par le champ électrique restent

faibles, on peut développer la polarisation en puissances du champ électrique. Les non-linéarités sont ensuite traitées comme des phénomènes perturbatifs du champ [59]. Pour un champ électrique \mathbf{E} résultant d'une superposition d'ondes planes progressives monochromatiques¹ (OPPM) $\mathbf{E} = \sum_i \mathbf{E}_i(\mathbf{k}_i, \omega_i)$, avec \mathbf{k}_i et ω_i le vecteur d'onde et la pulsation, respectivement, de chaque OPPM, la polarisation du milieu induite par ce champ s'écrit dans l'espace des vecteurs d'onde (espace réciproque) :

$$\begin{aligned}
\mathbf{P}(\mathbf{k}, \omega) &= \sum_i \epsilon_0 [\chi^{(1)}(\mathbf{k}_i, \omega_i)] \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) \\
&+ \sum_{i,j} \epsilon_0 [\chi^{(2)}(\mathbf{k} = \pm \mathbf{k}_i \pm \mathbf{k}_j, \omega = \pm \omega_j \pm \omega_j)] \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}_j, \omega_j) \\
&+ \sum_{i,j,l} \epsilon_0 [\chi^{(3)}(\mathbf{k} = \pm \mathbf{k}_i \pm \mathbf{k}_j \pm \mathbf{k}_l, \omega = \pm \omega_j \pm \omega_j \pm \omega_l)] \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}_j, \omega_j) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{k}_l, \omega_l) \\
&+ \dots
\end{aligned} \tag{1.1}$$

où ϵ_0 est la perméabilité diélectrique du vide et $[\chi^{(n)}]$ le tenseur de susceptibilité d'ordre (n) , qui est une matrice 3×3 . Dans cette description, les différents ordres de la susceptibilité correspondent à des processus différents, d'autant plus difficiles à observer que l'ordre est élevé. Le terme en $[\chi^{(1)}]$ rend compte des phénomènes linéaires tels que l'indice de réfraction linéaire, l'absorption à un photon. Les termes en $[\chi^{(2)}]$, $[\chi^{(3)}]$ et d'ordre supérieur traitent des processus non-linéaires. Plus particulièrement, le terme d'ordre 2 correspond au processus de génération de deuxième harmonique et aux effets paramétriques qui ont permis le développement d'oscillateurs et d'amplificateurs paramétriques. Un matériau est caractérisé par des tenseurs de susceptibilité qui possède les propriétés de symétrie du milieu. Dans le cas où le matériau étudié possède un centre d'inversion, on a :

$$\begin{aligned}
\mathbf{P}(\mathbf{E}) &= -\mathbf{P}(-\mathbf{E}) \\
\mathbf{E}(\mathbf{k}) &= \mathbf{E}(-\mathbf{k})
\end{aligned} \tag{1.2}$$

Ce qui implique que les susceptibilités d'ordres pairs sont nulles. Ainsi, pour des matériaux centro-symétriques, les premières non-linéarités sont des processus du troisième ordre. Ce sont des processus qui interviennent dans les différentes expériences que nous avons effectuées.

1. Nous reviendrons sur l'importance de cette description dans la partie 3.1

1.2 Processus non-linéaires d'ordre 3 : effet Kerr optique

1.2.1 Définition

D'un point de vue expérimental, en optique, les grandeurs physiques qui caractérisent le matériau étudié sont l'indice de réfraction n et l'absorption α , qui sont pris en compte dans le formalisme de l'indice de réfraction complexe $\tilde{n} = n + i\kappa$, où κ est le coefficient d'extinction qui est relié à l'absorption par la relation $\kappa = \alpha c/2\omega$, c étant la vitesse de la lumière dans le vide et ω la pulsation considérée. L'indice complexe est lui-même relié à la susceptibilité par la fonction diélectrique relative ϵ_r . En effet, si on se place dans un matériau isotrope et si on définit la polarisation dans le système d'unité international par la relation ² :

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi \mathbf{E} \quad (1.3)$$

nous pouvons alors exprimer l'indice de réfraction sous la forme :

$$\tilde{n}^2(\omega) = \epsilon_r(\omega) = 1 + \chi(\omega)$$

ce qui nous donne finalement en écrivant $\chi = \chi' + i\chi''$ et en considérant κ négligeable par rapport à n (nous nous plaçons dans un matériau diélectrique possédant une absorption faible à la pulsation considérée) :

$$\begin{aligned} n(\omega) &= \sqrt{1 + \chi'(\omega)} \\ \alpha(\omega) &= \frac{2\omega}{c} \frac{\chi''(\omega)}{\sqrt{1 + \chi'(\omega)}} \end{aligned}$$

Un champ électrique intense peut induire la variation d'une de ces deux grandeurs ou même des deux selon le processus qui interviendra. Dans l'hypothèse d'un matériau centro-symétrique, la polarisation s'écrira, dans une forme simplifiée :

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} \times E + \epsilon_0 \chi^{(3)} \times E.E.E \quad (1.4)$$

et la fonction diélectrique ³ :

$$\epsilon_r = (\tilde{n}_0 + \Delta(\tilde{n}))^2 = [n_0 + \Delta n + i(\kappa_0 + \Delta\kappa)]^2$$

où Δn et $\Delta\kappa$ sont les variations induites de l'indice de réfraction n et de la partie imaginaire κ de l'indice complexe \tilde{n} . En développant l'expression précédente, nous

2. Nous traitons ici le cas d'un matériau isotrope où $[\chi] = \chi$ est identique dans toutes les directions, ce qui suit reste transposable au cas anisotrope

3. Pour un matériau anisotrope, la fonction diélectrique est une matrice 3 comme l'est la susceptibilité

obtenons après avoir négligé les termes d'ordre 2 (Δn^2 , $\Delta \kappa^2$ et $\Delta n \Delta \kappa$) :

$$\Delta \tilde{n} = \frac{\chi^{(3)} I}{\epsilon_0 n_0^2 c} \quad (1.5)$$

où I est l'intensité du champ qui vaut dans le système d'unités international $\langle |E|^2 \rangle / n_0 c \epsilon_0$ ($\langle \rangle$ représente la moyenne temporelle). Nous pouvons alors introduire l'indice complexe non-linéaire \tilde{n}_2 par la relation :

$$\tilde{n} = \tilde{n}_0 + \frac{1}{2} \tilde{n}_2 I \quad (1.6)$$

avec

$$\tilde{n}_2 = \chi^{(3)} / \epsilon_0 n_0^2 c \quad (1.7)$$

Cette dépendance linéaire de l'indice de réfraction complexe avec l'intensité du champ électrique d'excitation qui met en jeu la réponse non-linéaire d'ordre 3 porte le nom d'« effet Kerr optique ».

1.2.2 Les différents processus du troisième ordre

Quand un faisceau lumineux entre en interaction avec un matériau diélectrique tel qu'un semi-conducteur, il induit une variation de l'indice complexe du matériau proportionnelle à l'intensité du faisceau pour les processus du troisième ordre (équations 1.6 et 1.7). C'est le cas de nombreux phénomènes dont certains peuvent apparaître simultanément. Notons que des effets d'ordre supérieur peuvent aussi avoir lieu (proportionnels au carré de l'intensité, etc), ils ont une amplitude plus faible et sont donc plus difficiles à mesurer, c'est pourquoi nous nous limitons ici aux processus d'ordre (3). Parmi les plus importants :

- la génération de troisième harmonique ;
- le mélange à quatre ondes ;
- l'absorption induite ;
- la diffusion Raman ;
- l'absorption à deux photons ;
- l'autofocalisation ;
- l'automodulation de phase ;
- la saturation de gain ou d'absorption.

Ces processus dépendent de la ou des longueurs d'onde des champs électromagnétiques d'excitation, de la variation de leur intensité en fonction du temps et de l'espace, et de la structure électronique du matériau étudié.

1.3 Dynamique des non-linéarités : équations de Bloch

Les non-linéarités optiques sont des caractéristiques du matériau étudié et dépendent donc de sa structure électronique. Le recours à la mécanique quantique est nécessaire pour traiter le système en interaction avec la lumière, notamment en ce qui concerne la dynamique des processus qui entrent en jeu (il s'agit, en fait, d'une description semi-quantique car le champ électromagnétique est traité classiquement). Cependant, le problème de l'interaction entre le milieu et le rayonnement est en général extrêmement complexe en raison du nombre considérable de degrés de liberté intervenant dans le matériau. On est donc contraint d'effectuer un certain nombre d'approximations. En premier lieu, on divise le système électronique en deux parties : d'une part un système quantique à deux niveaux d'énergie et d'autre part, le reste du système appelé bain thermique, figure 1.1. Nous supposons que seul le système à deux 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. Le formalisme de la matrice densité est alors très pratique pour introduire les divers temps caractéristiques de ces processus.

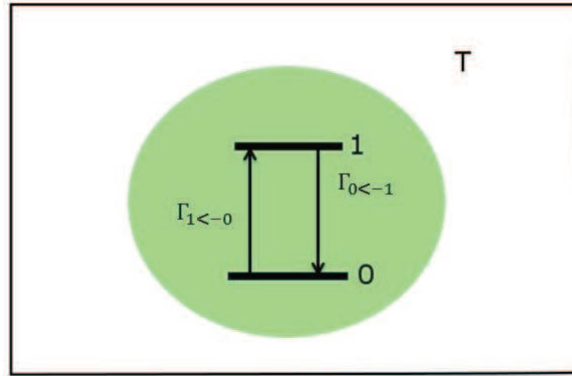


FIGURE 1.1

Soit ψ la fonction d'onde du système en interaction avec le champ électromagnétique. L'opérateur densité ρ est défini par la moyenne statistique du produit « ket » et « bra » des vecteurs d'états ψ [12] :

$$\hat{\rho} = |\psi\rangle\langle\psi| \quad (1.8)$$

On note \hat{H}_0 le hamiltonien du système non perturbé dont les états propres $|n\rangle$ ont pour énergies $\hbar\omega_n$: $\hat{H}_0 |n\rangle = \hbar\omega_n |n\rangle$. Le hamiltonien d'interaction s'écrit : $\hat{V}(\mathbf{r}, t) = -\hat{\boldsymbol{\mu}} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ où $\hat{\boldsymbol{\mu}}$ est l'opérateur moment dipolaire et $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ le champ électrique. La

matrice densité du système obéit à l'équation :

$$\frac{d\hat{\rho}(\mathbf{r}, t)}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [\hat{H}_0 + \hat{V}(\mathbf{r}, t), \hat{\rho}(\mathbf{r}, t)] + \left(\frac{d\hat{\rho}(\mathbf{r}, t)}{dt} \right)_{relax} \quad (1.9)$$

où $\left(\frac{d\hat{\rho}(\mathbf{r}, t)}{dt} \right)_{relax}$ décrit les différents processus de relaxation dûs au couplage du système avec le bain. La polarisation sera ensuite donnée par la moyenne de l'opérateur dipolaire, ce qui s'écrit dans le formalisme de la matrice densité :

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \langle \hat{\mu} \rangle (\mathbf{r}, t) = Tr(\hat{\rho}(\mathbf{r}, t) \cdot \hat{\mu}) \quad (1.10)$$

Les éléments diagonaux ρ_{ii} donnent les populations dans l'état i , c'est à dire la probabilité moyenne de trouver le système dans cet état. En notant $\Gamma_{i \leftarrow k}$ la probabilité de transition de l'état $|k\rangle$ vers l'état $|i\rangle$, on a :

$$\frac{d\rho_{ii}}{dt}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{\hbar} \sum_k \Gamma_{i \leftarrow k} \rho_{kk}(\mathbf{r}, t) + \frac{i}{\hbar} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \sum_k (\boldsymbol{\mu}_{ik} \rho_{ki}(\mathbf{r}, t) - \rho_{ik}(\mathbf{r}, t) \boldsymbol{\mu}_{ki}) \quad (1.11)$$

où on pose :

$$\Gamma_{i \leftarrow i} = - \sum_{k \neq i} \Gamma_{i \leftarrow k} \quad (1.12)$$

Les éléments non-diagonaux ρ_{ij} traduisent les effets d'interférence entre les états i et j qui peuvent apparaître lorsque l'état $|\psi\rangle$ est une superposition linéaire cohérente de ces états. Ce sont les cohérences. Leurs relaxations sont décrites par les constantes :

$$\Gamma_{ij} = \frac{1}{2} \left(\sum_{k \neq i} \Gamma_{i \leftarrow k} + \sum_{k \neq j} \Gamma_{j \leftarrow k} \right) + \Gamma_{ij}^{ad.} \quad (1.13)$$

où les termes en parenthèses correspondent aux processus de déphasage impliquant des transferts de populations entre niveaux, tandis que le dernier terme correspond aux processus dits de « déphasage pur ». Ainsi, l'évolution des termes non-diagonaux de la matrice densité est donnée par l'équation :

$$\frac{d\rho_{ij}}{dt}(\mathbf{r}, t) = -\frac{i}{\hbar} \hbar \omega_{ij} \rho_{ij}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{\hbar} \Gamma_{ij} \rho_{ij}(\mathbf{r}, t) + \frac{i}{\hbar} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \sum_k (\boldsymbol{\mu}_{ik} \rho_{kj}(\mathbf{r}, t) - \rho_{ik}(\mathbf{r}, t) \boldsymbol{\mu}_{kj}) \quad (1.14)$$

Le champ électromagnétique avec lequel va interagir le système correspond à une succession d'impulsions lumineuses. L'impulsion numéro p , arrivant à l'instant τ_p , a pour enveloppe complexe $\mathcal{E}_p(\mathbf{r}, t - \tau_p)$, pour fréquence centrale ω_p , pour vecteur d'onde \mathbf{k}_p , pour phase φ_p , pour polarisation (linéaire pour simplifier) $\underline{\mathbf{e}}_p$:

$$\mathbf{E}_p(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_p(\mathbf{r}, t - \tau_p) \cos(\omega_p(t - \tau_p) - \mathbf{k}_p \cdot \mathbf{r} - \varphi_p) \underline{\mathbf{e}}_p \quad (1.15)$$

On s'intéresse ici au cas d'une excitation « uniforme » par des ondes planes. On peut alors écrire :

$$\mathcal{E}_p(\mathbf{r}, t - \tau_p) = \mathcal{E}_p \quad (1.16)$$

De plus, on considère un système à deux niveaux $|0\rangle$ et $|1\rangle$. L'élément de matrice du hamiltonien d'interaction entre les deux états s'écrit donc :

$$-\langle 1 | \mu \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) | 0 \rangle = -\mathcal{E}_p \frac{\mu_{p,10}}{\sqrt{2}} \left(e^{-i(\omega_p(t-\tau_p) - \mathbf{k}_p \mathbf{r} - \varphi_p)} + e^{i(\omega_p(t-\tau_p) - \mathbf{k}_p \mathbf{r} - \varphi_p)} \right) \quad (1.17)$$

où :

$$\mu_{p,10} = \langle 1 | \mu \cdot \mathbf{e}_p | 0 \rangle \quad (1.18)$$

Les différents ordres des processus non-linéaires s'obtiennent à partir d'un développement de la matrice densité en puissances du champ :

$$\rho_{ij}(\mathbf{r}, t) = \sum_{n=0}^{\infty} \rho_{ij}^{(n)}(\mathbf{r}, t) = \rho_{ij}^{(0)}(\mathbf{r}, t) + \rho_{ij}^{(1)}(\mathbf{r}, t) + \rho_{ij}^{(2)}(\mathbf{r}, t) + \rho_{ij}^{(3)}(\mathbf{r}, t) + \dots \quad (1.19)$$

Et on obtient à l'ordre (n) pour les éléments diagonaux :

$$\frac{d\rho_{ii}^{(n)}}{dt}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{\hbar} \sum_k \Gamma_{i \leftarrow k} \rho_{kk}^{(n)}(\mathbf{r}, t) + \frac{i}{\hbar} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \sum_k \left(\mu_{ik} \rho_{ki}^{(n-1)}(\mathbf{r}, t) - \rho_{ik}^{(n-1)}(\mathbf{r}, t) \mu_{ki} \right) \quad (1.20)$$

et pour les éléments non diagonaux :

$$\frac{d\rho_{ij}^{(n)}}{dt}(\mathbf{r}, t) = -\frac{i}{\hbar} \hbar \omega_{ij} \rho_{ij}^{(n)}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{\hbar} \Gamma_{ij} \rho_{ij}^{(n)}(\mathbf{r}, t) + \frac{i}{\hbar} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \sum_k \left(\mu_{ik} \rho_{kj}^{(n-1)}(\mathbf{r}, t) - \rho_{ik}^{(n-1)}(\mathbf{r}, t) \mu_{kj} \right) \quad (1.21)$$

Ces équations se résolvent par itération.

On considère qu'initialement le système est dans l'état fondamental et qu'il n'y a pas de cohérences, ce qui se traduit pour le terme à l'ordre (0) par :

$$\rho_{ij}^{(0)}(\mathbf{r}, t) = \delta_{i0} \delta_{j0} \quad (1.22)$$

À l'ordre (1), les populations sont nulles et les cohérences sont telles que $\rho_{ij}^{(1)}(\mathbf{r}, t) = 0$ si $i \neq 0$ et $j \neq 0$.

$$\frac{d\rho_{10}^{(1)}}{dt}(\mathbf{r}, t) = -\frac{i}{\hbar} \hbar \omega_{10} \rho_{10}^{(1)}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{\hbar} \Gamma_{10} \rho_{10}^{(1)}(\mathbf{r}, t) + \frac{i}{\hbar} \mathbf{E}_a(\mathbf{r}, t) \cdot \mu_{10} \rho_{00}^{(0)}(\mathbf{r}, t) \quad (1.23)$$

où $\mathbf{E}_a(\mathbf{r}, t)$ est donné par la formule 1.15. On résout ces équations en utilisant l'approximation de « l'onde tournante » et en considérant des « impulsions de Dirac », c'est-à-dire des impulsions de durées longues devant les périodes optiques, mais très

courtes comparées aux constantes de relaxation Γ .

La première étape consiste à résoudre l'équation homogène. On obtient :

$$\rho_{10}^{(1)} = A(\mathbf{r}, t) e^{-\frac{\Gamma_{10}}{\hbar} t} e^{-i\omega_{10} t} \quad (1.24)$$

Ensuite, on applique la méthode de variation de la constante :

$$\frac{dA}{dt}(\mathbf{r}, t) = \frac{i}{\hbar} \mathcal{E}_a e^{\frac{\Gamma_{10}}{\hbar} t} e^{i(\omega_{10} \pm \omega_a) t} e^{\pm i(-\omega_a \tau_a - \mathbf{k}_a \mathbf{r} - \varphi_a)} \mu_{a,10} \quad (1.25)$$

L'approximation de « l'onde tournante » implique de négliger le terme $e^{i(\omega_{10} + \omega_a) t}$ qui oscille trop rapidement comparé aux oscillations de l'impulsion (a). Puis en considérant cette impulsion comme une « impulsion de Dirac » on obtient $e^{i(\omega_{10} - \omega_a) t} = \delta(t - \tau_a)$.

On a alors :

$$A(\mathbf{r}, t) = \theta(t - \tau_a) \frac{i}{\hbar} \mathcal{E}_a e^{\frac{\Gamma_{10}}{\hbar} \tau_a} e^{-i(-\omega_a \tau_a - \mathbf{k}_a \mathbf{r} - \varphi_a)} \mu_{a,10} \quad (1.26)$$

En incluant $\omega_a \tau_a$ dans φ_a , on obtient pour les termes d'ordre (1) :

$$\begin{aligned} \rho_{10}^{(1)}(\mathbf{r}, t) &= \theta(t - \tau_a) \frac{i}{2\hbar} \mu_{a,10} \mathcal{E}_a(r, z) e^{-\frac{\Gamma_{10}}{\hbar}(t - \tau_a)} e^{-i(\omega_{10}(t - \tau_a) - \mathbf{k}_a \mathbf{r} - \varphi_a)} \\ &\quad + C.C. \end{aligned} \quad (1.27)$$

Les cohérences à l'ordre (1) décroissent après l'impulsion (a) avec comme constante de temps \hbar/Γ_{10} .

À l'ordre (2) apparaissent des populations, à condition que les impulsions présentent une composante commune de polarisation. On considérera ici des impulsions co-polarisées ($\mu_{b,10} = \mu_{a,10} = \mu_{10}$) :

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{11}^{(2)}}{dt}(\mathbf{r}, t) &= -\frac{1}{\hbar} \left(\Gamma_{1 \leftarrow 0} \rho_{00}^{(2)}(\mathbf{r}, t) - \Gamma_{0 \leftarrow 1} \rho_{11}^{(2)}(\mathbf{r}, t) \right) \\ &\quad + \frac{i}{\hbar} \mathbf{E}_b(\mathbf{r}, t) \cdot \left(\mu_{10} \rho_{01}^{(1)}(\mathbf{r}, t) - \rho_{10}^{(1)}(\mathbf{r}, t) \mu_{01} \right) \end{aligned} \quad (1.28)$$

et

$$\rho_{00}^{(2)}(\mathbf{r}, t) = -\rho_{11}^{(2)}(\mathbf{r}, t) \quad (1.29)$$

Toujours dans le cadre de l'approximation de l'onde tournante et en considérant des impulsions courtes, on obtient à l'ordre 2 :

$$\begin{aligned} \rho_{11}^{(2)}(\mathbf{r}, t) &= \frac{1}{4\hbar^2} \mathcal{E}_a \mathcal{E}_b |\mu_{10}|^2 \theta(t - \tau_b) \theta(\tau_b - \tau_a) \\ &\quad e^{-\frac{(\Gamma_{1 \leftarrow 0} + \Gamma_{0 \leftarrow 1})}{\hbar}(t - \tau_b)} e^{-\frac{\Gamma_{10}}{\hbar}(\tau_b - \tau_a)} \\ &\quad \cos(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + (\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a) \mathbf{r} + \varphi_b - \varphi_a) \end{aligned} \quad (1.30)$$

Les populations à l'ordre (2) apparaissent après l'arrivée de l'impulsion (b), avec une amplitude déterminée par la décroissance de la cohérence créée par la première impulsion (a). Elles décroissent après l'arrivée de l'impulsion (b) avec comme constante de

temps $\hbar/(\Gamma_{1\leftarrow 0} + \Gamma_{0\leftarrow 1})$. Si les deux faisceaux (a) et (b) ne sont pas colinéaires, une modulation spatiale des populations apparaît. En effet, le terme

$$\cos(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + (\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a)\mathbf{r} + \varphi_b - \varphi_a) \quad (1.31)$$

représente l'interférence entre la polarisation créée par la première impulsion et le champ de la deuxième.

En tenant compte des populations uniformes créées isolément par chacun des faisceaux, on obtient :

$$\rho_{00}(\mathbf{r}, t) = \rho_{00}^{(0)}(\mathbf{r}, t) + \rho_{00}^{(2)}(\mathbf{r}, t) = 1 - \rho_{11}^{(2)}(\mathbf{r}, t) \quad (1.32)$$

$$\rho_{11}(\mathbf{r}, t) = \rho_{11}^{(2)}(\mathbf{r}, t) \quad (1.33)$$

$$\begin{aligned} &\propto \mathcal{E}_a^2 \theta(t - \tau_a) \mathcal{E}_a^2 e^{-\frac{(\Gamma_{1\leftarrow 0} + \Gamma_{0\leftarrow 1})}{\hbar}(t - \tau_a)} \\ &+ \mathcal{E}_a \theta(t - \tau_a) e^{-\frac{(\Gamma_{1\leftarrow 0} + \Gamma_{0\leftarrow 1})}{\hbar}(t - \tau_a)} \mathcal{E}_b \theta(\tau_a - \tau_b) e^{-\frac{\Gamma_{10}}{\hbar}(\tau_a - \tau_b)} \\ &\quad \cos((\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b)\mathbf{r} - \Phi) \\ &+ \mathcal{E}_b \theta(t - \tau_b) e^{-\frac{(\Gamma_{1\leftarrow 0} + \Gamma_{0\leftarrow 1})}{\hbar}(t - \tau_b)} \mathcal{E}_a \theta(\tau_b - \tau_a) e^{-\frac{\Gamma_{10}}{\hbar}(\tau_b - \tau_a)} \\ &\quad \cos((\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a)\mathbf{r} + \Phi) \\ &+ \mathcal{E}_b^2 \theta(t - \tau_b) e^{-\frac{(\Gamma_{1\leftarrow 0} + \Gamma_{0\leftarrow 1})}{\hbar}(t - \tau_b)} \end{aligned} \quad (1.34)$$

Nous constatons que la population $\rho_{11}^{(2)}$ à l'ordre 2 contient deux termes correspondant à l'action des champs (a) et (b) et donnant une modulation en $\cos(\pm(\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a)\mathbf{r} + \Phi)$. Dans ce qui va suivre, on se restreindra au cas où l'impulsion (a) précède l'impulsion (b) et on ne gardera que le terme correspondant à l'interférence entre la polarisation créée par la première impulsion et le champ de la deuxième.

Pour terminer, on calcule les polarisations à l'ordre (3) en partant de :

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{10}^{(3)}}{dt}(\mathbf{r}, t) &= -\frac{i}{\hbar} \hbar \omega_{10} \rho_{10}^{(3)}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{\hbar} \Gamma_{10} \rho_{10}^{(3)}(\mathbf{r}, t) \\ &+ \frac{i}{\hbar} \mathbf{E}_c(\mathbf{r}, t) \left(\mu_{10} \rho_{00}^{(2)}(\mathbf{r}, t) - \rho_{11}^{(2)}(\mathbf{r}, t) \mu_{10} \right) \end{aligned} \quad (1.35)$$

$$\begin{aligned} \rho_{10}^{(3)}(\mathbf{r}, t) &= -\frac{i}{\hbar^3} \frac{\mu_{10}}{16} |\mu_{10}|^2 \mathcal{E}_c \mathcal{E}_b \mathcal{E}_a \theta(t - \tau_c) \theta(\tau_c - \tau_b) \theta(\tau_b - \tau_a) \\ &e^{-\frac{\Gamma_{10}}{\hbar}(t - \tau_c)} e^{-i\omega_{10}(t - \tau_c)} e^{-\frac{\Gamma_{10}}{\hbar}(\tau_b - \tau_a)} e^{-\frac{(\Gamma_{1\leftarrow 0} + \Gamma_{0\leftarrow 1})}{\hbar}(\tau_c - \tau_b)} \\ &\left(e^{-i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a))} e^{-i((\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a - \mathbf{k}_c)\mathbf{r} + \varphi_b - \varphi_a - \varphi_c)} \right. \\ &+ \left. e^{i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a))} e^{i((\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a + \mathbf{k}_c)\mathbf{r} + \varphi_b - \varphi_a + \varphi_c)} \right) \\ &+ C.C. \end{aligned} \quad (1.36)$$

Pour la suite, on note :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{(\Gamma_{1\leftarrow 0} + \Gamma_{0\leftarrow 1})}{\hbar} \quad (1.37)$$

et

$$\frac{1}{T_2} = \frac{\Gamma_{10}}{\hbar}. \quad (1.38)$$

Le temps T_1 est donc caractéristique de la décroissance des populations photo-cr ees alors que T_2 est relatif   la relaxation des coh erences.

La moyenne de l'op rateur moment dipolaire du troisi me ordre donne la polarisation   l'ordre (3) :

$$\langle \hat{\mu}^{(3)} \rangle(\mathbf{r}, t) = Tr(\hat{\rho}^{(3)}(\mathbf{r}, t) \cdot \hat{\mu}) \quad (1.39)$$

$$= \rho_{10}^{(3)}(\mathbf{r}, t) \cdot \hat{\mu}_{01} + \rho_{01}^{(3)}(\mathbf{r}, t) \cdot \hat{\mu}_{10} \quad (1.40)$$

$$\begin{aligned} &= -\frac{i}{\hbar^3} \frac{|\mu_{10}|^3}{16} \mathcal{E}_c \mathcal{E}_b \mathcal{E}_a \theta(t - \tau_c) \theta(\tau_c - \tau_b) \theta(\tau_b - \tau_a) \\ &\quad e^{-\frac{(t-\tau_c)}{T_2}} e^{-i\omega_{10}(t-\tau_c)} e^{-\frac{(\tau_c-\tau_b)}{T_1}} e^{-\frac{(\tau_b-\tau_a)}{T_2}} \\ &\quad \left(e^{-i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a))} e^{-i((\mathbf{k}_b-\mathbf{k}_a-\mathbf{k}_c)\mathbf{r}+\varphi_b-\varphi_a-\varphi_c)} \right. \\ &\quad \left. + e^{i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a))} e^{i((\mathbf{k}_b-\mathbf{k}_a+\mathbf{k}_c)\mathbf{r}+\varphi_b-\varphi_a+\varphi_c)} \right) \\ &\quad + C.C. \end{aligned} \quad (1.41)$$

On voit qu'  partir des populations g n r es   l'ordre deux par les impulsions (a) et (b), l'impulsion (c) g n re des polarisations caract ris es par deux vecteurs d'onde diff rents : $\mathbf{k}_c - (\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a)$ et $\mathbf{k}_c + (\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a)$.

1.4 D termination des non-lin arit s optiques

1.4.1 M lange   quatre ondes

Les exp riences de m lange   quatre ondes mesurent directement la polarisation du troisi me ordre d crite ci-dessus. Cette polarisation, issue de l'interaction des trois impulsions (a), (b) et (c) sert de terme source dans l' quation d'onde et est   l'origine de l' mission d'une quatri me onde.

La mesure de la d croissance du signal en fonction du retard entre les deux premi res impulsions permet de mesurer la dynamique de d phasage. En effet, la deuxi me impulsion ne peut interagir qu'avec ce qu'il reste de la polarisation induite par la premi re impulsion : $\langle \hat{\mu} \rangle(\mathbf{r}, t) \propto e^{-\frac{(\tau_b-\tau_a)}{T_2}}$

Dans la pratique, seules deux impulsions sont n cessaires, la seconde intervenant   l'ordre 2 dans le processus. Cela revient   confondre \mathbf{E}_b et \mathbf{E}_c dans le mod le. L'intensit  du signal, proportionnelle au carr  de la polarisation, d cro t alors comme $T_2/2$ donnant acc s au temps de d phasage des excitations photo-cr ees.

Condition d'accord de phase

Un signal est émis dans une direction donnée par la condition d'accord de phase. Celle-ci peut être calculée en considérant l'interférence entre les champs émis en différents endroits à l'intérieur de l'échantillon. Chaque point \mathbf{r} émet dans une direction quelconque, définie par le vecteur \mathbf{k} une onde dont l'amplitude est donnée par $E(\mathbf{r}, t)$ et dont la phase est décrite par $e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}}$ (diffraction à l'infini, dite de Fraunhofer). Le champ total émis dans la direction \mathbf{k} est donc donné par l'intégrale sur le volume V excité de l'échantillon (on considère pour simplifier dans un premier temps un volume homogène, c'est à dire qu'on néglige la propagation et donc l'atténuation des faisceaux) :

$$E(\mathbf{k}, t) = \int_V E(\mathbf{r}, t) e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} d\mathbf{r} \quad (1.42)$$

qui correspond à la transformée de Fourier spatiale de l'amplitude $E(\mathbf{r}, t)$. Cette dernière est donnée par (en résumant la formule 1.41) :

$$E(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_s e^{-i(\Omega t - \mathbf{K}\mathbf{r})} \quad (1.43)$$

Dans le cas où on regarde la réponse linéaire (transmission ou réflexion), on a :

$$\mathbf{K} = \mathbf{k} \quad (1.44)$$

avec \mathbf{k} qui va donner la direction de transmission ou de réflexion.

Dans le cas du mélange d'onde :

$$\mathbf{K} = \mathbf{k}_c \pm (\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a) \quad (1.45)$$

Si on considère l'échantillon comme une couche infinie dans les directions x et y , d'épaisseur L dans la direction z c'est à dire comprise entre $-L/2$ et $L/2$, l'intégrale en \mathbf{r} donne :

$$\begin{aligned} E(\mathbf{k}, t) \propto \int_V e^{i\mathbf{K}\mathbf{r}} e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} d\mathbf{r} &= \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(K_x - k_x)x} dx \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(K_y - k_y)y} dy \int_{-L/2}^{L/2} e^{i(K_z - k_z)z} dz \\ &= \delta(K_x - k_x) \delta(K_y - k_y) \frac{e^{i(K_z - k_z)L/2} - e^{-i(K_z - k_z)L/2}}{i(K_z - k_z)} \\ &= \delta(K_x - k_x) \delta(K_y - k_y) L \frac{\sin(K_z - k_z)L/2}{(K_z - k_z)L/2} \end{aligned} \quad (1.46)$$

Le vecteur d'onde \mathbf{K} est donc strictement conservé dans le plan de la couche, mais il existe un désaccord de phase dans la direction perpendiculaire au plan :

$$\mathbf{K}_\perp \neq \mathbf{k}_\perp \text{ et } \mathbf{K}_\parallel = \mathbf{k}_\parallel \quad (1.47)$$

Pour trouver la direction d'émission du signal, la deuxième relation à utiliser est la conservation de l'énergie. Elle implique que la norme du vecteur d'onde est strictement

conservée, ce qui, dans le cas général où les fréquences des impulsions excitatrices ω_p sont non-dégénérées, se traduit par :

$$\Omega = \omega_c \pm (\omega_b - \omega_a) \quad (1.48)$$

$$K = k_c \pm (k_b - k_a) \quad (1.49)$$

mais revient à

$$K = k_a = k_b = k_c = \frac{\omega}{c} \quad (1.50)$$

dans le cas dégénéré.

En introduisant les angles d'incidence, θ_p , des faisceaux excitateurs par rapport à la normale à la couche et en considérant pour simplifier des faisceaux co-planaires, on a :

$$\mathbf{K} = \begin{vmatrix} K_{\parallel} \\ K_z \end{vmatrix} = \mathbf{k}_c \pm (\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a) = \frac{\omega}{c} \begin{vmatrix} \sin \theta_c \pm (\sin \theta_b - \sin \theta_a) \\ \cos \theta_c \pm (\cos \theta_b - \cos \theta_a) \end{vmatrix} \quad (1.51)$$

La conservation de la composante parallèle au plan de la couche implique :

$$\mathbf{k} = \begin{vmatrix} k_{\parallel} \\ k_z \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} \frac{\omega}{c} \cdot (\sin \theta_c \pm (\sin \theta_b - \sin \theta_a)) \\ k_z \end{vmatrix} \quad (1.52)$$

tandis que la conservation de la norme implique :

$$k_{\parallel}^2 + k_z^2 = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \quad (1.53)$$

On obtient :

$$k_z = \frac{\omega}{c} \sqrt{1 - (\sin \theta_c \pm (\sin \theta_b - \sin \theta_a))^2} \quad (1.54)$$

et

$$k_z = -\frac{\omega}{c} \sqrt{1 - (\sin \theta_c \pm (\sin \theta_b - \sin \theta_a))^2} \quad (1.55)$$

On constate que deux directions d'émission sont possibles. Si la première solution correspond à une émission en avant, proche de $\mathbf{k}_c \pm (\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a)$, il existe une autre émission, vers l'arrière, correspondant à la deuxième solution, avec un fort désaccord de phase, comme on peut le voir sur la figure 1.2.

Ce cas d'une couche mince infinie correspond généralement bien aux expériences réalisées. Soit on a affaire à des puits quantiques d'épaisseur très faible par rapport à la longueur d'onde et la condition d'accord de phase est alors complètement relâchée dans la direction perpendiculaire à la couche : le signal est émis dans les deux directions, en avant et en arrière, avec la même intensité. Soit on a affaire à un échantillon épais, mais l'épaisseur à prendre en compte est alors limitée par la profondeur d'absorption des faisceaux excitateurs : si le signal émis en arrière reste faible, le signal émis vers l'avant peut rester non-négligeable pour peu qu'on limite l'angle entre les faisceaux incidents pour conserver $(K_z - k_z) \ll 2\pi/L$.

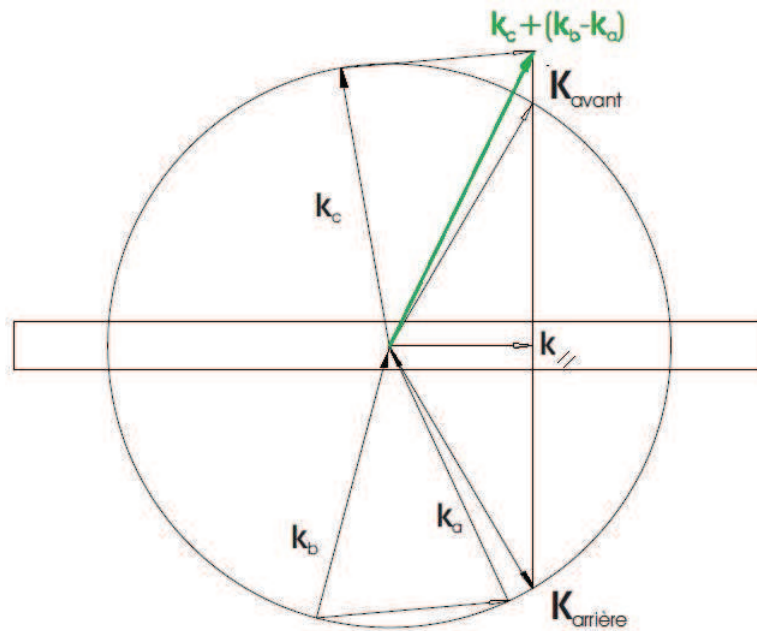


FIGURE 1.2 – Directions d'émission $\mathbf{K}_{\text{avant}}$ et $\mathbf{K}_{\text{arrière}}$ d'un signal en accord de phase. Ces directions sont différentes de celles données par la combinaison $\mathbf{k}_c + (\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a)$ des vecteurs d'onde des faisceaux incidents, même si elle en est proche dans le cas « en avant » .

Un autre point peut être souligné ici. La direction d'émission du signal n'est pas déterminée strictement par la combinaison des vecteurs d'onde des faisceaux excitateurs, mais plutôt par l'interférence entre les signaux émis par les différents points de l'échantillon. Le signal est donc émis dans une direction préférentielle selon laquelle toutes les contributions dipolaires interfèrent de manière constructive. Dans le cas d'expériences en microscopie, où l'on s'intéresse à l'émission individuelle d'objets de très petites dimensions, le signal devrait être émis de façon isotrope, et non plus dans une direction privilégiée, du fait de la faiblesse des dimensions du volume émetteur dans toutes les directions⁴.

Réseaux induits

La formule 1.30 illustre le fait qu'une partie des processus de mélanges d'ondes peut être interprétée en terme de « réseaux induits par laser ». La séquence de deux impulsions (*a*) et (*b*) crée un réseau de population sur lequel vient se diffracter la troisième impulsion (*c*). La modulation décrite par la formule 1.34 correspond à l'interférence entre la polarisation créée par la première impulsion et le champ de la deuxième. Cette interférence entre les deux faisceaux excitateurs (*a*) et (*b*) est imprimée dans le matériau

4. Avec un effet supplémentaire si l'excitation se fait sur un très petit volume : l'ouverture nécessaire des faisceaux incidents, indispensable pour la focalisation sur un très petit spot, aura aussi pour effet de faire perdre la définition des vecteurs d'onde des impulsions excitatrices.

via les non-linéarités optiques. Le pas de cette modulation est donné par la différence des vecteurs d'onde $\Lambda = 2\pi / |\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a|$ et dépend donc de l'angle entre les deux faisceaux excitateurs. Sa phase spatiale Φ est influencée par la différence de phase $\varphi_b - \varphi_a$ et par le retard $\omega_{10}(\tau_b - \tau_a)$ entre les impulsions excitatrices. La position spatiale des franges peut donc varier d'un tir à l'autre si ces paramètres ne sont pas bien contrôlés.

Mélange d'onde dégénéré à deux faisceaux

Comme expliquer précédemment, pour effectuer une expérience de mélange d'onde seuls deux impulsions sont nécessaires, la deuxième (*b*) et la troisième (*c*) étant confondues. Dans ce cas, cette deuxième impulsion (*b*) « s'auto-diffracte » sur le réseau d'indice qu'elle forme avec la première impulsion (*a*). La polarisation du troisième ordre s'écrit dans ce cas :

$$\begin{aligned}
\langle \hat{\mu}^{(3)} \rangle(\mathbf{r}, t) &= -\frac{i}{\hbar^3} \frac{|\mu_{10}|^3}{16} \mathcal{E}_b^2 \mathcal{E}_a \theta(t - \tau_b) \theta(\tau_b - \tau_a) \\
&\quad e^{-\frac{(t-\tau_b)}{T_2}} e^{-i\omega_{10}(t-\tau_b)} e^{-\frac{(\tau_b-\tau_a)}{T_2}} \\
&\quad (e^{-i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a))} e^{-i(\mathbf{k}_a \mathbf{r} + \varphi_a)} \\
&\quad + e^{i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a))} e^{i((2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a) \mathbf{r} + \varphi_b - \varphi_a + \varphi_c)}) \\
&\quad + C.C.
\end{aligned} \tag{1.56}$$

Les deux signaux de mélange d'onde générés correspondent à l'ordre (+1) et (-1) de diffraction sur le réseau caractérisé par son pas $1/\mathbf{k}_g$ tel que $\mathbf{k}_g = \mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$ [45]. On obtient alors des signaux dans les directions $(\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a) \pm \mathbf{k}_b$. L'ordre (-1) de diffraction donne alors un signal dans la direction \mathbf{k}_a qui se superpose à l'impulsion (*a*) et au signal généré par la polarisation à l'ordre (1), il sera donc difficilement détectable. L'ordre (+1) de diffraction du réseau induit correspond à un signal de mélange d'onde la direction $2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$, comme on le voit schématiquement sur la figure 1.3. L'intensité de ce signal, proportionnelle au carré de la polarisation, décroît alors, en fonction du retard $(\tau_b - \tau_a)$, comme $T_2/2$.

Lorsqu'on inverse l'ordre temporel des impulsions et que l'impulsion (*b*) précède l'impulsion (*a*) alors les signaux de mélange d'onde sont générés dans les directions symétriques \mathbf{k}_b et $2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$ dont les intensités décroissent évidemment avec la même constante de temps.

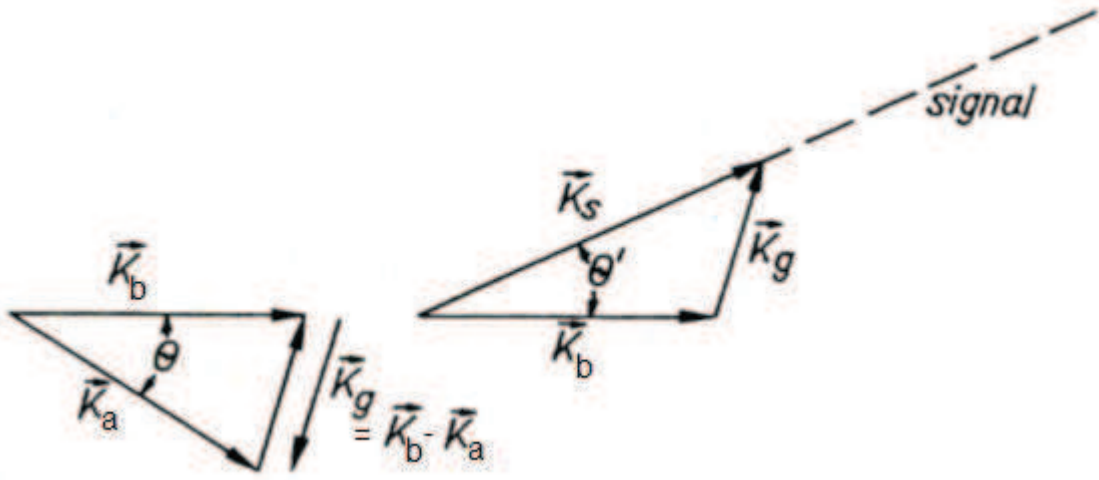


FIGURE 1.3 – Schéma de principe du mélange d'onde dégénéré à deux faisceaux [45].

1.4.2 Pompe-sonde

Dans le cas où les deux premières impulsions (*a*) et (*b*) sont confondues, on se trouve dans le cas de ce que l'on nomme une expérience « pompe-sonde » : l'impulsion test (*c*) sonde le matériau modifié par la première impulsion. Quand arrive cette impulsion de test, la population d'ordre (2) produite par la première impulsion (équation 1.30 avec $\tau_b = \tau_a$ et $\mathbf{k}_a = \mathbf{k}_b$) a décré :

$$e^{-\frac{(\Gamma_{1\leftarrow 0} + \Gamma_{0\leftarrow 1})}{\hbar}(t - \tau_b)}. \quad (1.57)$$

Cette expérience donne donc accès aux relaxations des populations. En effet, la polarisation à l'ordre (3) s'écrit dans ce cas :

$$\begin{aligned} \langle \hat{\mu}^{(3)} \rangle(\mathbf{r}, t) = & -\frac{i}{\hbar^3} \frac{|\mu_{10}|^3}{16} \mathcal{E}_c \mathcal{E}_a^2 \theta(t - \tau_c) \theta(\tau_c - \tau_a) \\ & e^{-\frac{(t - \tau_c)}{T_2}} e^{-\frac{(\tau_c - \tau_a)}{T_1}} e^{-i(\omega_{10}(t - \tau_c) - \mathbf{k}_c \mathbf{r} + \varphi_c)} \end{aligned} \quad (1.58)$$

On obtient donc bien un signal dans la direction de la sonde (*c*) dont l'intensité décroît en fonction du retard pompe-sonde ($\tau_c - \tau_a$) avec une constante de temps $\frac{T_1}{2}$. On obtient de la même manière un signal dans la direction \mathbf{k}_a lorsque l'impulsion (*c*) précède l'impulsion (*a*) qui décroît avec la même constante de temps.

Une manière de se représenter la spectroscopie pompe-sonde est montrée figure 1.4. En l'absence de faisceau pompe, le faisceau sonde dont l'énergie est résonnante avec la bande interdite du semi-conducteur est partiellement absorbée et induit un certain nombre de transitions électroniques entre bande de valence et bande de conduction. Si une impulsion pompe excite l'échantillon avant l'arrivée de la sonde et modifie l'occupation des états entre bande de valence et bande de conduction, l'absorption de la

sonde qui est proportionnelle à la fois au nombre d'états occupés dans la bande de valence et au nombre d'états libres dans la bande de conduction, s'en trouve alors diminuée. Cette modification transitoire de l'absorption perdure donc pendant le temps de vie T_1 des excitations électroniques. En jouant sur le retard entre pompe et sonde, il est possible de mesurer l'évolution temporelle de la variation d'absorption et donc de déterminer le temps de relaxation des excitations électroniques.

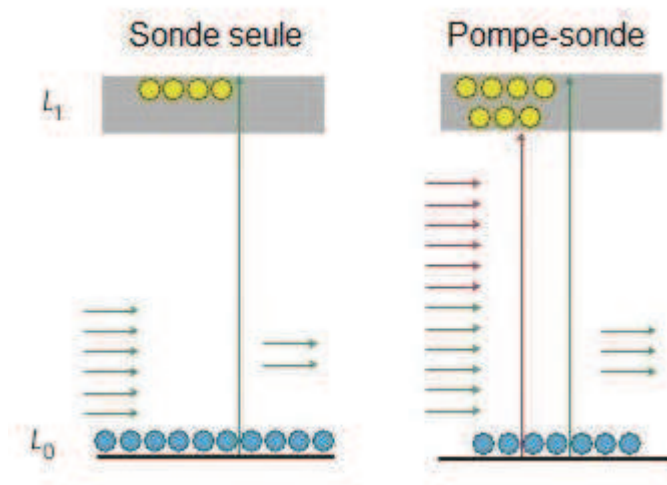


FIGURE 1.4 – Représentation schématique d'une expérience pompe-sonde sur un système à deux niveaux.

1.5 Conclusion

Nous avons montré dans ce chapitre que l'approche en perturbation des équations de Bloch est un outil puissant pour modéliser la décroissance temporelle ainsi que la direction des signaux générés dans les expériences d'optique non-linéaire, c'est à dire réalisées avec des impulsions lumineuses de forte densité d'excitation. Ces expériences permettent notamment de mettre en évidence la localisation des porteurs de charges et de comprendre ce qui l'influence. En effet, si les excitations électroniques ne sont pas localisées de nombreux processus déphasant brouillent la cohérence optique en quelques femtosecondes (les collisions avec les phonons, qui décrivent les modes de vibrations du matériaux, sont un exemple de processus déphasant). Tandis que si les excitations électroniques sont localisées leurs temps de cohérence peuvent être beaucoup plus long. Par exemple, la figure 1.5 nous montre la décroissance du signal de mélange d'ondes obtenu sur des boîtes quantiques (quantum dots) d'InGaAs, structures à confinement

tridimensionnel, pour différentes températures. Ces mesures montrent un temps de déphasage (ou de cohérence) à basse température de plusieurs centaines de picosecondes alors qu'à plus haute température on observe des temps de cohérence d'à peine quelques picosecondes. L'existence de temps de cohérence extrêmement longs apporte un résultat supplémentaire à ce qui était alors connu sur la spectroscopie de boîte quantique unique et ouvre la voie à des applications dans l'informatique quantique [5].

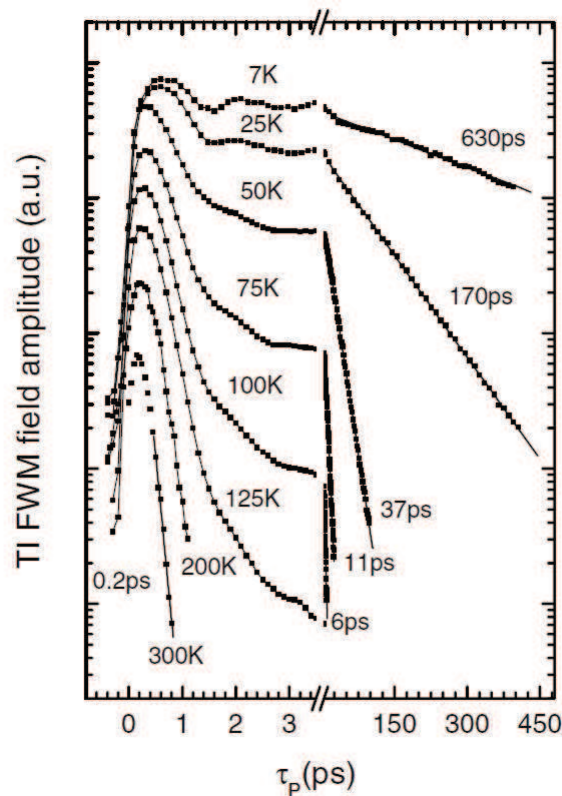


FIGURE 1.5 – Intensité du signal de mélange à quatre ondes dans des boîtes quantiques d'In-GaAs intégrée en temps en fonction du retard entre les deux impulsions excitatrices à différentes températures. Image extraite de [5].

Bien que notre approche permet d'exploiter un grand nombre de résultats expérimentaux, notons qu'elle présente une lacune importante : nous avons décrit les champs électriques comme des ondes planes sans prendre en considération la forme spatiale des faisceaux excitateurs. Or, le calcul de la polarisation du troisième ordre implique d'effectuer le produit des différents champs incidents. S'ils possèdent des facteurs de phases et des intensités dépendants des coordonnées spatiales, il en sera de même pour les signaux générés. On peut alors se demander qu'elle en sera l'influence sur la direction et la forme spatiale des signaux générés par les processus non-linéaires tel que le mélange d'onde. Nous étudierons cette question dans la partie II.

Chapitre 2

Extension de la microscopie à des dimensions submicroniques

L'image donnée par un instrument d'optique « classique » tel qu'un microscope conventionnel, ne restitue pas les détails trop fins de l'objet : tout instrument possède un pouvoir de résolution limité.

Pour étudier cette notion très importante, nous allons rappeler les différentes causes qui sont à l'origine de la limitation du pouvoir de résolution, en mettant principalement l'accent sur une barrière fondamentale : celle due à la diffraction. Le formalisme de l'optique de Fourier apporte dans cette étude un éclairage théorique assez général et performant, qui permet de traiter efficacement ces questions de résolution.

Cette question devenant de plus cruciales au vu de l'augmentation continue de la capacité à contrôler et à structurer des objets à l'échelle nanométrique, il s'avère nécessaire de développer de nouveaux outils de mesure à de telles dimensions. La microscopie optique est alors une technique de choix car elle constitue un outil de mesure non invasif. Ces dernières années la microscopie optique a été étendue à des échelles de l'ordre du nanomètre grâce à des techniques de champ proche puis, récemment, de champ lointain. Les techniques de champ lointain sont basées sur la détection d'ondes propagatives à des distances de la source supérieures à la longueur d'onde de l'onde électromagnétique, tandis que les techniques de champ proche exploitent les ondes évanescentes de courtes portées, nécessitant d'approcher l'objet à une distance inférieure à la longueur d'onde.

Dans ce chapitre, nous allons donc tout d'abord expliquer en détail le phénomène de la diffraction pour en déduire les limites de résolution de la microscopie optique. Puis nous présenterons les différentes techniques de microscopies optiques permettant d'aller sonder la matière à des dimensions sub-longueur d'onde. Nous commencerons alors par la microscopie en champ proche, nous décrirons ensuite différentes techniques de microscopie sub-diffraction en champ lointain.

2.1 Limite de résolution de la microscopie optique

La microscopie optique est une technique adéquate pour observer des objets de petites dimensions. Cependant, on sait que, comme pour tout système optique, l'image d'un point n'est pas un point mais une petite tache lumineuse; la résolution d'un microscope optique est donc limitée et ceci du fait de plusieurs facteurs :

- la qualité de la mise au point qui demande parfois des précisions inférieures au μm ;
- les aberrations du système qui font que l'image d'un point est une tache irisée dans le cas d'une aberration chromatique, circulaire pour une aberration sphérique ou en aigrette pour la coma ou encore elliptique dans le cas d'astigmatisme ;
- le pouvoir de résolution fini du récepteur d'image.

Ces différents facteurs sont déterminés par la théorie de l'optique géométrique dans l'approximation de Gauss. Or, cette théorie est basée sur la nature corpusculaire de la lumière *via* le principe de Fermat (qui dérive directement du **principe de moindre action** en mécanique). On a donc oublié le caractère ondulatoire de la lumière, qui nous apporte une nouvelle limitation à la résolution des microscopes optiques : la diffraction. Les améliorations technologiques ont permis de se prémunir des aberrations chromatiques et géométriques des systèmes optiques, citons par exemple les lentilles achromatiques ou large bande qui permettent de s'affranchir largement des aberrations chromatiques. Elles ont aussi permis de mettre au point des récepteurs d'image de très bonne résolution tels que les CCD (Charge coupled device) dont les pixels font $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$. Mais ces progrès techniques n'empêchent pas la diffraction de la lumière indissolublement liée à sa nature ondulatoire. Ainsi, la limitation du pouvoir de résolution due à la diffraction est indépendante des aberrations et du détecteur et elle apparaît ici comme une limite indépassable.

2.1.1 Approche qualitative

Déterminons l'ordre de grandeur de cette limite de résolution apparemment « infranchissable ». Considérons un objectif de microscope à immersion, figure 2.1, d'ouverture numérique $O.N. = n_0 \sin u_0$. Le diaphragme d'ouverture de l'objectif de microscope ne laisse pénétrer dans l'instrument que les ondes planes dont le vecteur d'onde \mathbf{k} fait, avec la direction de l'onde incidente, un angle inférieur à la valeur limite u_0 , définie par la pupille d'entrée. On traduit ce résultat par une double inégalité, à laquelle satisfait la composante k_\perp de \mathbf{k} , suivant une direction perpendiculaire à l'axe optique :

$$-k \sin u_0 \leq k_\perp \leq k \sin u_0 \quad (2.1)$$

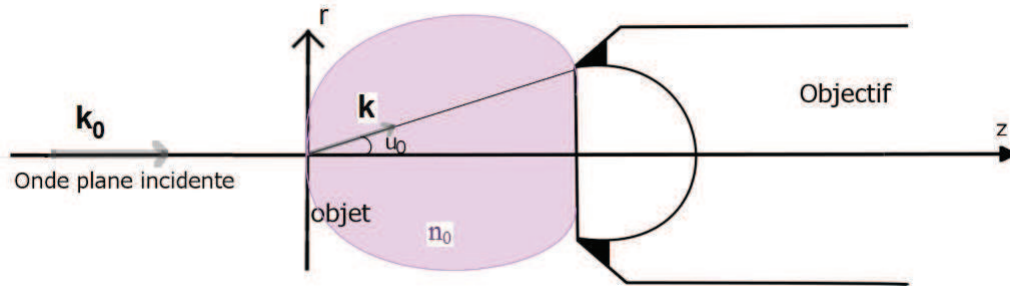


FIGURE 2.1 – Schéma d'un objectif de microscope d'ouverture numérique $O.N. = n_0 \sin u_0$

où k est le module du vecteur d'onde dans le milieu d'indice n_0 donné par $k = \frac{2n_0\pi}{\lambda_0}$, avec λ_0 la longueur d'onde de la lumière d'excitation éclairant l'échantillon ou la longueur d'onde de la lumière émise par l'échantillon. Un tel domaine de variation de k_{\perp} , $\Delta k_{\perp} = 2k \sin u_0$, implique, du fait de la diffraction et donc de la dualité onde-corpuscule de la lumière, une limitation de l'extension spatiale Δr du plus petit détail observé sur l'objet, telle que :

$$\Delta r \Delta k_{\perp} \geq 2\pi \quad (2.2)$$

soit,

$$\Delta r \geq \frac{2\pi}{\Delta k_{\perp}} = \frac{\lambda_0}{2n_0 \sin u_0} = \frac{\lambda_0}{2O.N.} \quad (2.3)$$

Comme $O.N./n_0 \sim 1$, la taille du plus petit détail détectable par un instrument formant une image, est de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde de la lumière utilisée

$$\Delta r \geq \frac{\lambda}{2n_0} \quad (2.4)$$

où n_0 est l'indice du milieu entre l'échantillon et l'objectif de microscope. n_0 correspond donc à l'indice du liquide d'immersion.

Introduisons alors **la résolution spatiale** R d'un instrument d'optique, comme étant la distance minimale entre deux points objets telle que leur images données par l'instrument d'optique puissent être séparées. Nous avons donc ici $R = \frac{\lambda}{2}$.

On comprend maintenant ce qui a motivé le développement de microscopes électroniques : la longueur d'onde d'un électron accéléré à des vitesses v proche de la vitesse de la lumière est de l'ordre de la dizaine de picomètre donnant alors des résolutions 1000 fois plus grandes que celle des microscopes optiques. Cependant, cette méthode, très intrusive, ne permet que d'imager la densité d'états des atomes constituant l'échantillon étudié et ne donne pas les mêmes informations sur les différents états électroniques

disponibles de ce dernier. C'est pourquoi la microscopie optique reste une technique essentielle pour la compréhension des phénomènes électroniques, même si elle semble limitée en résolution. Afin de voir s'il est possible de lever cette limitation due à la diffraction, étudions plus précisément cette notion.

2.1.2 Optique de Fourier

Introduction et notation

En considérant des faisceaux lumineux peu écartés de l'axe optique z , les angles de diffraction sont petits et on se situe dans l'approximation paraxiale, c'est à dire qu'on travaille dans les conditions de Gauss. Cette approximation revient à supposer que l'ouverture diffractante possède une surface grande devant la longueur d'onde des faisceaux. Ainsi, les champs vectoriels \mathbf{E} et \mathbf{B} liés par les équations de Maxwell peuvent être découplés et on travaille alors dans l'approximation scalaire des champs.

Dans ce cadre, un instrument d'optique est considéré comme un système par le fait qu'il fait correspondre, à tout signal lumineux E_e à l'entrée, un signal lumineux unique en sortie E_s . La propagation se faisant suivant l'axe z , les signaux d'entrée et de sortie, E_e et E_s , sont fonctions des coordonnées (x, y) dans le plan de front, que l'on exprimera de façon plus condensée par le vecteur \mathbf{r} du système de coordonnées polaires. Nous allons voir que la relation mathématique entre l'objet et son image par un instrument d'optique, tenant compte de ses aberrations (défauts de mise au point inclus) et de la diffraction relève de la théorie du signal, comme en électronique et en télécommunication. La différence est qu'on s'intéresse ici à la forme spatiale et non temporelle du signal traité ; ainsi les spectres seront ici exprimés en terme de fréquences spatiales.

En effet, pour un système optique linéaire, invariant et continu, cette correspondance peut simplement s'écrire :

$$E_s(\mathbf{r}) = \int E_e(\mathbf{r}')h(\mathbf{r} - \mathbf{r}') d\mathbf{r}' \quad (2.5)$$

où on somme la réponse du système optique pondérée par le signal d'entrée (dépendant des coordonnées dans le plan d'entrée \mathbf{r}) en chaque point du plan de sortie \mathbf{r}' . Cette relation entre l'entrée et la sortie est une convolution.

De plus, le signal d'entrée peut être décomposé comme une somme d'ondes planes (la base des ondes planes constitue une base complète des solutions de l'équation de propagation des ondes dans l'approximation paraxiale), ce qui s'écrit mathématiquement :

$$E_e(\mathbf{r}) = \int \hat{E}_e(\mathbf{u})e^{i\mathbf{u}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{u} = TF^{-1}(\hat{E}_e(\mathbf{u})) \quad (2.6)$$

avec

$$\hat{E}_e(\mathbf{u}) = \int E_e(\mathbf{r})e^{-i\mathbf{u}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{r} = TF(E_e(\mathbf{r})) \quad (2.7)$$

qui est la transformée de Fourier (TF) du champ $E_e(\mathbf{r})$ (et donc $E_e(\mathbf{r})$ est la transformée de Fourier inverse de $\hat{E}_e(\mathbf{u})$). Comme chacune des composantes sinusoïdales d'entrée $\hat{E}_e(\mathbf{u})e^{i\mathbf{u}\cdot\mathbf{r}}$ correspond une sortie unique $\hat{E}_s(\mathbf{u})e^{i\mathbf{u}\cdot\mathbf{r}}$, le signal de sortie s'exprime en recombinaison ces réponses sinusoïdales et on obtient :

$$E_s(\mathbf{r}) = \int \hat{E}_s(\mathbf{u})e^{i\mathbf{u}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{u} = TF^{-1}(\hat{E}_s(\mathbf{u})) \quad (2.8)$$

La relation de convolution dans l'espace réel s'exprime alors plus simplement dans l'espace des fréquences spatiales : $\hat{E}_s(\mathbf{u}) = \hat{E}_e(\mathbf{u})\hat{h}(\mathbf{u})$.

Théorie de la diffraction

Le principe fondamental de la diffraction est le **principe d'Huygens-Fresnel** qui fût formulé pour la première fois en 1678 par Christian Huygens sous la forme suivante : « chaque point du front d'onde d'une perturbation peut être considéré comme une nouvelle source (c'est à dire une source secondaire) émettant des ondes sphériques, à un instant ultérieur le front d'onde peut alors être obtenu en construisant une enveloppe des ondelettes sphériques secondaires » ; ceci est illustré figure 2.2.

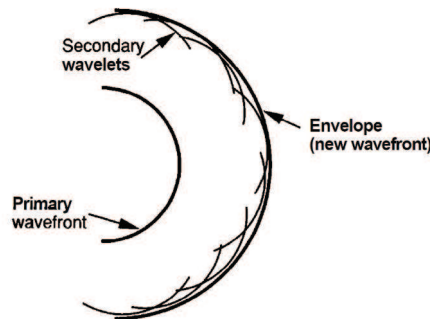


FIGURE 2.2 – Construction de l'enveloppe des ondelettes secondaires de Huygens, image tirée de [22].

Cependant ce principe basé sur la théorie ondulatoire de la lumière a dû attendre plusieurs décennies pour prendre son ampleur. En effet, les progrès de la compréhension de la diffraction ont été entravés durant tout le XVIII^e siècle par le fait qu'Isaac Newton, scientifique de grande renommée par ses contributions nombreuses en physique en général et particulièrement en optique, favorisait la théorie corpusculaire de la lumière. Même si cette théorie a pu rendre compte des phénomènes de réfraction et de réflexion avec les **lois de Snell-Descartes** qui dérivent du **principe de moindre action** bien connu en mécanique, elle était incapable d'expliquer l'étalement de la lumière sur un plan situé en arrière d'un écran troué et éclairé par une source ponctuelle. C'est grâce

au physicien anglais Thomas Young que des progrès significatifs ont pu être faits. Il renforça la théorie ondulatoire de la lumière et introduisit le concept d'interférence, une idée révolutionnaire à cette époque : de la lumière pouvait s'ajouter à de la lumière pour produire de l'obscurité !

Les idées de Young et d'Huygens furent formalisées mathématiquement par Augustin Jean Fresnel dans le mémoire qu'il présenta en 1818 devant l'Académie des Sciences. Malgré les contestations de la part des partisans du modèle corpusculaire de la lumière, la capacité de Fresnel à modéliser les comportements connus de la lumière et, surtout, à prédire correctement les résultats d'expériences inédites là où échouait la théorie corpusculaire, acheva de convaincre les plus réfractaires de ses opposants.

Selon le principe d'Huygens Fresnel, lorsqu'une onde monochromatique d'amplitude complexe \hat{E}_e de nombre d'onde $k_0 = 2\pi/\lambda$ tombe sur un diaphragme \mathcal{D} , l'amplitude complexe de l'onde diffractée \hat{E}_s en un point P (figure 2.3) est la somme des amplitudes complexes des ondes sphériques émises par les points situés à l'intérieur du domaine \mathcal{D} . $\hat{E}_s(P)$ s'exprime alors dans l'approximation paraxiale sous la forme suivante :

$$\hat{E}_s(P) = \int_{\mathcal{D}} \hat{E}_e(M) Q \frac{e^{ik_0 r}}{r} dS \quad (2.9)$$

où $r = MP$, dS désigne l'élément de surface entourant le point M appartenant à l'objet diffractant \mathcal{D} et Q , un coefficient d'inclinaison. Supposons maintenant que c'est une onde monochromatique plane $E_0 e^{i(k_0 z - \omega t)}$ qui arrive sur le diaphragme \mathcal{D} , situé dans le plan $(x, y, z = 0)$. Puis regardons le champ résultant après le diaphragme en un point P défini par ses coordonnées (x_i, y_i, z) situé à une distance D_i grande devant toutes les autres dimensions du problème, figure 2.3, ce qui implique que tous les rayons diffractés doivent être parallèles entre eux pour se superposer à grande distance. Dans ce cadre, appelé approximation de Fraunhofer ou **diffraction à l'infini**, l'amplitude du champ électrique en P s'écrit (en condensant l'écriture de l'onde incidente en $\hat{E}_0 e^{ik_0 z}$ par souci de clarté) :

$$\hat{E}_s(x_i, y_i, z) = \int \int \hat{E}_e(x, y, z) e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{OM}} dx dy \quad (2.10)$$

où \mathbf{k} est la direction des rayons diffractés.

On peut aisément exprimer $\mathbf{k} \cdot \mathbf{OM}$ grâce aux données du problème comme $\|\mathbf{k}\| = k_0 = \frac{2\pi}{\lambda}$ ¹ :

$$\mathbf{k} \cdot \mathbf{OM} = \frac{2\pi}{\lambda} \left(\frac{x_i}{d_i} x + \frac{y_i}{d_i} y \right) \quad (2.11)$$

1. Notons que k_0 et $\|\mathbf{k}\|$ sont déterminés par l'équation de propagation des ondes dans l'approximation paraxiale que doivent satisfaire le champ électrique d'entrée et de sortie. Cette équation donne la relation $\omega = kc/n$, reliant la pulsation ω et le nombre d'onde k .

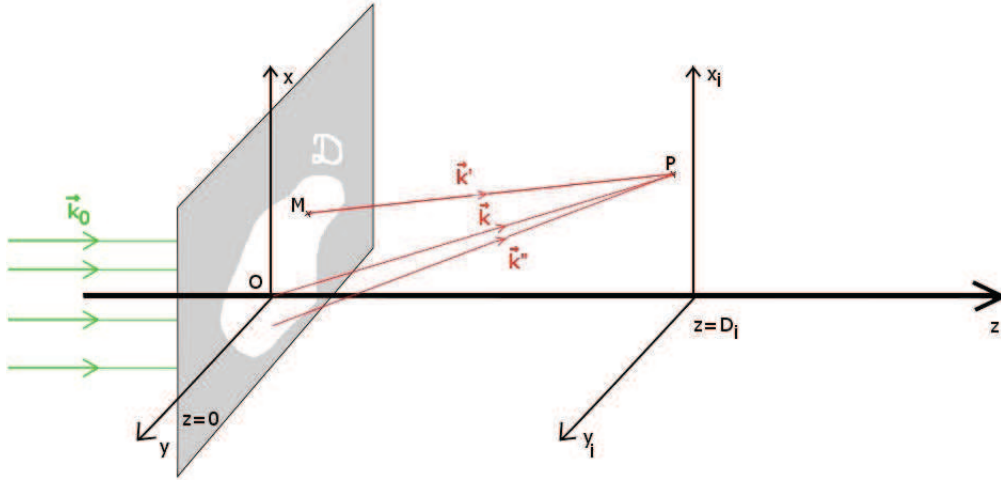


FIGURE 2.3 – Le diaphragme \mathcal{D} diffracte les rayons incidents de vecteur d'onde \mathbf{k}_0 . Les rayons diffractés arrivant en un point P ont pour vecteur d'onde \mathbf{k} , \mathbf{k}' , \mathbf{k}'' . Pour une distance D_i très grande devant les autres dimensions du problème, ces vecteurs d'onde sont supposés être tous parallèles entre eux et on fait l'approximation $\mathbf{k} = \mathbf{k}' = \mathbf{k}''$, c'est l'approximation de Fraunhofer.

De plus, $\hat{E}_e(x, y, z) = E_0 T(x, y) e^{ik_0 z}$ avec $T(x, y)$ la fonction de transparence décrivant le diaphragme. Finalement,

$$\hat{E}_s(x_i, y_i, z) = e^{ik_0 z} \iint \hat{E}_0 T(x, y) e^{-i \frac{2\pi}{\lambda} \left(\frac{x_i}{D_i} x + \frac{y_i}{D_i} y \right)} dx dy \quad (2.12)$$

où l'on voit apparaître les fréquences spatiales $f_x = \frac{x_i}{\lambda D_i}$ et $f_y = \frac{y_i}{\lambda D_i}$. Ainsi,

$$\hat{E}_s(f_x, f_y, z) = e^{ik_0 z} \iint \hat{E}_0 T(x, y) e^{-i 2\pi (f_x x + f_y y)} dx dy \quad (2.13)$$

On remarquera que cette relation correspond à la transformée de Fourier de la fonction de transparence $T(x, y)$ du diaphragme \mathcal{D} . Nous obtenons finalement une expression très simple de l'amplitude du champ électrique à grande distance de l'objet diffractant :

$$\hat{E}_s\left(f_x = \frac{x_i}{D_i}, f_y = \frac{y_i}{D_i}\right) = \hat{E}_0 TF(T(x, y)) \quad (2.14)$$

Étudions maintenant des cas particuliers d'objets diffractants et en particulier celui d'une ouverture circulaire.

2.1.3 Instrument d'optique à symétrie circulaire

Figure d'Airy

La plupart des instruments d'optique présentent la symétrie de révolution et sont donc

limités par un diaphragme circulaire de diamètre d . La fonction de transparence de la pupille d'entrée $P(x, y)$ est la fonction $disq(\frac{r}{d})$ définie par :

$$disq\left(\frac{r}{d}\right) = \begin{cases} 1 & \text{pour } r \leq \frac{d}{2} \\ 0 & \text{autrement} \end{cases} \quad (2.15)$$

Pour le calcul de \hat{P} , il est naturel d'utiliser les coordonnées polaires : \mathbf{r} et θ dans le plan (x, y) tels que $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ et $\theta = \arctan\left(\frac{x}{y}\right)$; \mathbf{R}_i et ϕ_i dans le plan image (x_i, y_i) tels que $R_i = \sqrt{x_i^2 + y_i^2}$ et $\phi_i = \arctan\left(\frac{x_i}{y_i}\right)$. Il vient, en posant $\rho_i = R_i/(\lambda D_i)$:

$$\hat{P}(\rho_i) = \int_0^{D/2} \int_0^{2\pi} e^{-i2\pi\rho_i r (\cos\theta \cos\phi_i + \sin\theta \sin\phi_i)} r dr d\theta \quad (2.16)$$

soit

$$\hat{P}(\rho_i) = \int_0^{D/2} r dr \left[\int_0^{2\pi} e^{-i2\pi\rho_i r \cos(\theta - \phi_i)} d\theta \right] \quad (2.17)$$

où l'on reconnaît dans le crochet la fonction de Bessel d'ordre 0, J_0 , a un facteur 2π près ; sa valeur est fournie par des tables. En fonction de J_0 , \hat{P} s'écrit en introduisant $w = 2\pi\rho_i r$:

$$\hat{P}(\rho_i) = \int_0^{D/2} 2\pi r J_0(2\pi\rho_i r) dr = \frac{1}{2\pi\rho_i^2} \int_0^{\pi\rho_i d} w J_0(w) dw = \frac{\pi d}{4} \left[\frac{2J_1(\pi\rho_i d)}{\pi\rho_i d} \right] \quad (2.18)$$

où J_1 est la fonction de Bessel d'ordre 1. L'amplitude du champ électrique de "sortie" est directement égale à $\hat{P}(\rho_i)$ son intensité est donc :

$$I(\rho_i) = |\hat{P}(\rho_i)|^2 = S^2 \left[\frac{2J_1(\pi\rho_i d)}{\pi\rho_i d} \right]^2 \quad (2.19)$$

avec $S = \pi d^2/4$ qui est l'aire de la pupille. Si nous traçons la fonction $(2J_1(x)/x)^2$ avec $x = \pi\rho_i d$, nous obtenons la courbe 2.4 appelé figure d'Airy. Nous pouvons aussi exprimer x en fonction de l'ouverture numérique de l'instrument à ouverture circulaire :

$$x = \pi \frac{R_i}{\lambda D_i} d = \frac{\pi R_i}{\lambda} 2O.N. \quad (2.20)$$

Le premier zéro est obtenu pour $x = 3.83$ c'est à dire pour :

$$\Delta\rho_i = \frac{\Delta R_i}{\lambda D_i} = \frac{1.22}{d} \quad (2.21)$$

Cette valeur correspond aussi au rayon de la tache centrale.

Pour un objectif de microscope d'ouverture numérique $O.N. = 0.3$, pour $\lambda = 500nm$, le rayon de la tache centrale de diffraction est de $\Delta R_i = \frac{1.22\lambda}{2O.N.} \approx 1\mu m$.

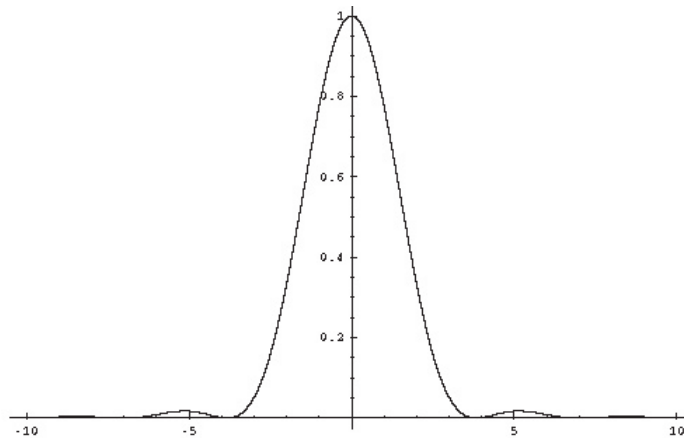


FIGURE 2.4 – *Figure d’Airy : $(2J_1(x)/x)^2$ tracée en fonction de $x = \pi \frac{R_i}{\lambda D_i} d$.*

Critère de Rayleigh

Du fait de la diffraction, deux points objets rapprochés peuvent donner, *via* un instrument d’optique, deux images trop proches pour être distinguées si la distance entre ces images est du même ordre de grandeur que la taille de la tache de diffraction. On appelle alors résolution l’écart minimal entre deux points objets tel qu’on puisse les distinguer avec l’instrument d’optique considéré. Pour un système à symétrie de révolution, un objectif de microscope par exemple, on utilise le critère de Rayleigh selon lequel deux image A’ et B’ correspondant à deux points A et B sont distincts si le sommet de la tache (centrale) de diffraction de l’une correspond au premier minimum nul de l’autre. Ainsi dans l’espace image nous avons, d’après l’équation 2.21,

$$\frac{\Delta R_i}{D_i} = \frac{1.22\lambda}{d} \quad (2.22)$$

Or, on peut exprimer en champ lointain, l’espacement dans le plan objet selon (voir figure 2.5)

$$\frac{A'B'}{D_i} = \frac{\Delta R_i}{D_i} = \frac{AB}{D} = \frac{1.22\lambda}{d} \quad (2.23)$$

où, rappelons-le, d est le diamètre de la pupille d’entrée de l’instrument d’optique considéré.

Ainsi le pouvoir de résolution d’un instrument d’optique à ouverture circulaire est

$$R = \frac{1.22\lambda}{d} D \quad (2.24)$$

Notons que le critère de Rayleigh est un critère de séparation des images de deux points objets éclairés par de la lumière incohérente, c’est à dire ne possédant pas de relation de phase entre eux, qu’en donne un système d’imagerie.

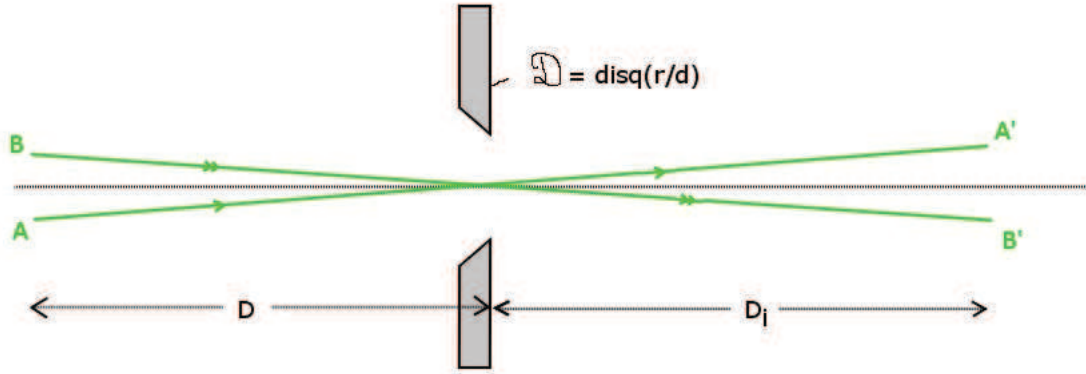


FIGURE 2.5 – Deux objet A et B donne deux images A' et B' par un instrument d'optique à ouverture circulaire si $AB = \frac{1.22\lambda}{d} D$

2.1.4 Limite de diffraction intrinsèque

Nous avons vu qu'une limitation de l'espace impliquait un étalement spatial dû au phénomène de la diffraction autour de l'image stigmatique d'un point objet. Celui-ci provient directement de la nature ondulatoire de la lumière qui implique qu'un photon est décrit par son vecteur d'onde \mathbf{k} . Nous allons montrer ici, grâce au formalisme de l'optique de Fourier, qu'il existe une limitation intrinsèque du vecteur d'onde.

Un objet émetteur est décrit par sa répartition spatiale $E_e(\mathbf{r})$ dont la transformée de Fourier est $\hat{E}_e(\mathbf{k})$. La propagation des ondes émises à la fréquence ω_0 ne garde que les composantes de norme $k_0 = \omega_0 c/n$ puisqu'elles doivent respecter l'équation de propagation des ondes². L'image de l'objet est donc au mieux donnée, si l'on arrive à conserver toutes les composantes angulaires, par :

$$\hat{E}_s(\mathbf{k}) = \hat{E}_e(\mathbf{k})\delta(k - k_0) \quad (2.25)$$

Ainsi, dans l'espace réel, cette relation de convolution devient :

$$E_s(\mathbf{r}) = \int E_e(\mathbf{r}')TF^{-1}[\delta(k - k_0)](\mathbf{r} - \mathbf{r}') d\mathbf{r}' \quad (2.26)$$

2. Nous travaillons toujours dans l'approximation paraxiale

Le cas ultime est donné par un objet ponctuel pour lequel on a : $E_e(\mathbf{r}) = \delta(\mathbf{r})$, et

$$\begin{aligned}
 E_s(\mathbf{r}) &= TF^{-1}[\delta(k - k_0)(\mathbf{r})] \\
 &= \frac{1}{8\pi^3} \int \int \int \delta(k - k_0) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} d\mathbf{k} \\
 &= \frac{1}{8\pi^3} \int \int \int \delta(k - k_0) e^{ikr \cos \theta} k^2 \sin \theta dk d\theta d\varphi \\
 &= \frac{k_0^2}{4\pi^2} \int_0^\pi e^{ik_0 r \cos \theta} \sin \theta d\theta
 \end{aligned} \tag{2.27}$$

En effectuant le changement de variable : $u = \cos \theta$ c'est à dire $du = -\sin \theta d\theta$, on obtient :

$$\begin{aligned}
 E_s(\mathbf{r}) &= -\frac{k_0^2}{4\pi^2} \int_1^{-1} e^{ik_0 r u} du \\
 &= \frac{k_0^2}{4\pi^2} \left[\frac{e^{ik_0 r} - e^{-ik_0 r}}{ik_0 r} \right] \\
 &= \frac{k_0^2}{2\pi^2} \frac{\sin k_0 r}{k_0 r}
 \end{aligned} \tag{2.28}$$

L'image d'un point possède donc un étalement spatial de largeur $\Delta(r)$ tel que

$\Delta k_0 r = k_0 \Delta(r) = 2\pi$, ainsi deux points images pourront être distincts si le maximum de la tache centrale de diffraction de l'une concorde avec le premier minimum de l'autre, figure 2.6 :

$$\Delta r = \frac{\pi}{k_0} = \frac{\lambda}{2} \tag{2.29}$$

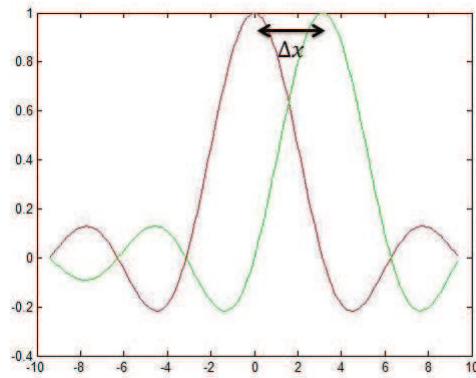


FIGURE 2.6 – en rouge, la fonction $\frac{\sin x}{x}$ et en vert la fonction $\frac{\sin(x-\pi)}{x-\pi}$

Nous obtenons donc une résolution de $R = \frac{\lambda}{2}$, qui est identique à celle trouvée *via* le principe d'incertitude. On remarque donc que ce principe revient à dire que le point

focal obtenu par un instrument d'optique est au mieux limité par sa transformée de Fourier (on utilise le même concept dans le domaine temporel, la plus courte impulsion possible est dite « Fourier Limited »).

2.2 Microscopie en champ proche

La microscopie en champ proche est la première technique expérimentale qui a permis d'observer des objets à des dimensions sub-longueur d'onde grâce à la détection d'ondes évanescentes. Nous allons à présent décrire cette technique en commençant par expliquer dans quel contexte on observe des ondes lumineuses évanescentes.

2.2.1 L'onde évanescente de Fresnel

Description

La première vérification expérimentale de l'existence de ces ondes dites « évanescentes » est attribué à Newton par le biais du phénomène de réflexion totale frustrée. Il s'observe lorsque la lumière se propage dans un milieu d'indice de réfraction n_1 pour se réfléchir dans un milieu d'indice $n_2 < n_1$, dès que l'angle d'incidence θ_1 , du faisceau est supérieur à une valeur critique θ_c , définie par la relation $n_1 \sin \theta_c = n_2$. Dans ce cas de réflexion totale, toute l'énergie incidente se trouve réfléchi vers le premier milieu. Cependant, on peut constater qu'il est possible de détecter une onde dans le second milieu. En effet, en utilisant un prisme à réflexion totale éclairé par un faisceau lumineux sous un angle d'incidence supérieur à l'angle critique θ_c et en approchant ensuite une lentille plan convexe dont la courbure est tournée du côté du prisme, nous pouvons alors détecter une partie de la lumière, qui était jusqu'à présent totalement réfléchi dans le prisme. Ceci a lieu dès que la distance qui sépare la lentille et le prisme est inférieure à la demi-longueur d'onde, c'est à dire avant même le contact entre les deux milieux. On dit alors que la réflexion totale est « frustrée ». Ce phénomène dépend de la longueur d'onde du faisceau : en éclairant le prisme avec un faisceau de lumière blanche dans les mêmes conditions que précédemment, la tache observée sur un écran au-delà de la lentille apparaît irisée (son centre est blanc et ses bords sont rouges). Cette observation indique que la lumière rouge est capable de franchir une couche d'air plus épaisse que les autres couleurs du spectre visible. Ainsi, par le fait de sa structure particulière qui lui impose de ne se propager qu'au voisinage immédiat de la surface de séparation des deux milieux, cette onde est dite « évanescente » [65].

Depuis sa découverte par Newton, l'onde évanescente a été étudiée en détail par Fresnel et nous allons à présent la décrire avec plus de précision.

Considérons deux milieux diélectriques d'indices respectifs n_1 et n_2 tel que $n_2 < n_1$.

Prenons $Oxyz$ un système de référence dans lequel le dioptre séparant les deux milieux correspond au plan Oxy et dans lequel le plan d'incidence est le plan Oxz . Les composantes du vecteur d'onde de la partie transmise, dans le milieu 2, d'une onde plane qui se propage initialement dans le milieu n_1 et qui se réfléchit sur le dioptre avec un angle d'incidence θ_1 , s'écrivent :

$$\mathbf{k}_2 = \begin{pmatrix} k_{2,x} = (\omega/c)n_2 \sin \theta_2 = (\omega/c)n_1 \sin \theta_1 \\ k_{2,y} = 0 \\ k_{2,z} = (\omega/c)\sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \theta_1} \end{pmatrix}$$

La structure de l'onde transmise dans n_2 dépend donc du caractère réel ou imaginaire de $k_{2,z}$. Ce terme est réel lorsque $0 < n_1 \sin \theta_1 < n_2$; il devient imaginaire pur dès que $n_1 \sin \theta_1 > n_2$. Il y a alors réflexion totale de la lumière sur le dioptre et l'onde transmise dans le second milieu est évanescence. Pour plus de clarté, nous allons nous restreindre au cas particulier où $n_2 = 1$. Les composantes du vecteur d'onde de l'onde évanescence s'écrivent dans ce cas :

$$\mathbf{k}_2 = \begin{pmatrix} k_{2,x} = (\omega/c) \sin \theta_2 = (\omega/c)n_1 \sin \theta_1 > \omega/c \\ k_{2,y} = 0 \\ k_{2,z} = i(\omega/c)\sqrt{n_1^2 \sin^2 \theta_1 - 1} = i\tilde{k}_2 \end{pmatrix}$$

En utilisant ces valeurs, on notera que dans ce cas $\|\mathbf{k}_2\| = \omega/c$ alors que $\|k_{2,x}\| = (\omega/c)\sqrt{2n_1^2 \sin^2 \theta_1 - 1} > \omega/c$: le produit scalaire du vecteur d'onde avec lui-même est bien égal à $(\omega/c)^2$ comme c'est le cas pour toute onde électromagnétique se propageant dans le vide, mais la norme de ses composantes ne l'est pas.

Finalement, en résumant ces résultats, nous pouvons noter que pour le vecteur d'onde dans le milieu 2 :

- la composante parallèle au dioptre $k_{2,x}$ vérifie la propriété inhabituelle d'être en module supérieure à ω/c dans le vide (alors que pour une onde progressive homogène aucune des composantes du vecteur d'onde ne peut être supérieure à cette valeur);
- la composante perpendiculaire au dioptre $k_{2,z}$ est imaginaire pure.

A cause de cette dernière propriété, l'amplitude de l'onde évanescence décroît exponentiellement en fonction de z : si l'on porte les résultats précédents dans l'expression usuelle d'une onde plane, nous obtenons la structure générale d'une onde évanescence d'amplitude \mathbf{E}_T :

$$\mathbf{E}_2 = \mathbf{E}_T e^{i(k_{2,x}x + k_{2,z}z - \omega t)} = \mathbf{E}_T e^{-\tilde{k}_2 z} e^{i(k_{2,x}x - \omega t)} \quad (2.30)$$

Ainsi l'onde évanescence, qui a une structure progressive dans la direction Ox , voit son amplitude décroître exponentiellement dans la direction Oz . C'est à cause de cette

décroissance exponentielle qu'elle n'est détectable qu'à une distance très faible de la surface de séparation des deux milieux. Par convention, sa « profondeur de pénétration » δ dans le second milieu (ici l'air) est définie comme la distance pour laquelle son amplitude $\mathbf{E}_T e^{-\tilde{k}_2 z}$ devient égale à \mathbf{E}_T/e soit :

$$\delta = \frac{1}{\tilde{k}_2} = \frac{\lambda}{2\pi\sqrt{n_1^2 \sin^2 \theta_1 - 1}} \quad (2.31)$$

La vérification expérimentale des propriétés particulières de la composante parallèle au dioptre du vecteur d'onde fût faite en 1978 par S. Huard en étudiant l'effet Doppler d'une onde évanescente centimétrique [36]. Tandis que la décroissance exponentielle du champ lorsqu'on s'éloigne de la surface avait été démontré en fluorescence quelques années plus tôt par K. H. Drexhage [17]. Cette décroissance exponentielle a bien sûr une incidence cruciale sur le flux d'énergie transporté par le champ dans l'échantillon : le flux du vecteur de Poynting, correspondant à la puissance rayonnée à travers une surface unitaire, est nul en moyenne dans la direction de propagation z alors qu'il ne l'est pas le long de la surface.

Résolutions et limites

Nous avons vu au début de ce chapitre (équation 2.3) que le pouvoir de résolution d'un instrument d'optique est inversement proportionnel à la composante du vecteur d'onde parallèle au plan de l'objet . Cette composante étant plus grande pour une onde évanescente que pour une onde progressive, on entrevoit alors immédiatement un moyen d'améliorer le pouvoir de résolution. On peut exprimer le minimum de résolution atteignable en utilisant la relation 2.2 : $\Delta x \Delta k_x \geq 2\pi$. Lorsqu'on capte des ondes progressives, k_x appartient à l'intervalle $[-\omega/c, \omega/c]$ ce qui donne $\Delta k_x = 4\pi/\lambda$. En rapportant cette valeur dans la relation précédente, on en déduit :

$$\Delta x \geq \frac{2\pi}{\Delta k_x} = \frac{\lambda}{2} \quad (2.32)$$

Si on utilise la relation $k_x = n(\omega/c) \sin \theta = n(2\pi/\lambda) \sin \theta$ de l'onde évanescente de Fresnel, la relation précédente 2.32 devient :

$$\Delta x \geq \frac{\lambda}{2n \sin \theta} \geq \frac{\lambda}{2n} \quad (2.33)$$

La faible valeur de n dans le domaine optique limite énormément le gain que l'on pouvait espérer obtenir : dans le meilleur des cas l'onde évanescente de Fresnel nous permettra d'augmenter la résolution de $\lambda/2$ à $\lambda/2n$, soit seulement d'atteindre ce que l'on peut obtenir en utilisant un microscope à immersion. Quelle conclusion peut-on alors faire ? L'onde évanescente ne serait qu'une idée farfelue ? pas du tout ! Dans toute la discussion ci-dessus nous n'avons considéré que l'onde évanescente de Fresnel obtenue par réflexion totale. Pour obtenir des effets plus importants, c'est à dire une plus grande

résolution, il nous faut chercher des types d'ondes évanescentes dont la composante du vecteur d'onde dans le plan de l'objet $\mathbf{k}_{//} = \mathbf{k}_x + \mathbf{k}_y$ est encore plus grande. De telles ondes évanescentes existent : elles ne sont pas obtenues par réflexion totale mais par diffraction.

2.2.2 Ondes évanescentes créées par diffraction

Considérons la diffraction d'une onde plane par une fente située dans le plan \mathbf{Oxy} de largeur $2L$ et de longueur infinie suivant \mathbf{Oy} . Devant la fente, le champ électromagnétique se propage suivant l'axe \mathbf{Oz} et s'écrit :

$$\mathbf{E}_1(z) = \mathbf{E}_1 e^{i(k_z z - \omega t)} \quad (2.34)$$

Juste derrière la fente, en $z = 0^+$, le champ devient :

$$E_2(x, z = 0^+) = E_1(z = 0) T_L(x, z = 0) \quad (2.35)$$

où $T_L(x, z = 0)$ est la fonction de transparence de la fente telle que $T_L(x = [-L, +L], z = 0) = 1$ et $T_L(x =]-\infty, -L[\cup]L, +\infty[) = 0$.

La figure de diffraction, nommée aussi spectre angulaire de la perturbation, $E_2(x, 0^+)$, s'exprime alors suivant :

$$\begin{aligned} \hat{E}_2(k_x, 0^+) &= \int_{-\infty}^{+\infty} dx e^{-ik_x x} E_2(x, 0^+) \\ &= E_1 \int_{-L}^{+L} dx e^{-ik_x x} \\ &= 2E_1 L \frac{\sin k_x L}{k_x L} \end{aligned} \quad (2.36)$$

D'après la théorie de la diffraction [22] le champ au point x s'obtient en propageant chacune des composantes de Fourier du spectre angulaire $\hat{E}_2(k_x, z) = \hat{E}_2(k_x, 0^+) e^{ik_z z}$ tel que \mathbf{k} vérifie la condition de propagation c'est à dire (comme $k_y = 0$)

$$k_x^2 + k_z^2 = k^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \quad (2.37)$$

Ainsi,

$$E_2(x, z) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dk_x \hat{E}_2(k_x, z) e^{ik_x x} \quad (2.38)$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dk_x 2E_1 L \frac{\sin k_x L}{k_x L} e^{i\sqrt{\frac{\omega^2}{c^2} - k_x^2} z} e^{ik_x x} \quad (2.39)$$

Comme nous intégrons sur toutes les valeurs de k_x possible respectant la condition 2.37, le champ $E_2(x, z)$ est composé de deux parties :

- une partie homogène correspondant à $k_x \in [-\frac{\omega}{c}, +\frac{\omega}{c}]$;
- une partie évanescente correspond au reste de l'intégration.

Nous obtenons ici des ondes évanescentes pour des valeurs de k_x qui ne sont plus limitées à l'intervalle $[\frac{\omega}{c}, n\frac{\omega}{c}]$, comme c'était le cas pour l'onde évanescente de Fresnel obtenue par réflexion totale, mais qui peuvent théoriquement appartenir à l'intervalle $[\frac{\omega}{c}, \infty]$. Cependant, du fait de la fonction porte due à la fente diffractante, cet intervalle est réduit : on doit avoir $|\sin k_x L| \leq 1$, la borne supérieure d'intégration est alors définie par

$$k_x = \frac{\pi}{L} \quad (2.40)$$

Finalement, des ondes évanescentes diffractées apparaissent dès que $k_x = 2\pi/\lambda < \pi/L$. Nous retrouvons ici le critère de Rayleigh : $L < \lambda/2$. Ainsi, plus la taille de l'objet diffractant (L) est petit, plus la partie évanescente du spectre angulaire $\hat{E}_2(k_x, z) = \hat{E}_2(k_x, 0) e^{-z\sqrt{k_x^2 - \frac{\omega^2}{c^2}}}$ est importante et surtout, plus les valeurs de k_x sont grandes.

Chaque « objet » à la surface d'un échantillon diffracte donc à la fois des ondes progressives et des ondes évanescentes, la partie évanescente étant d'autant plus importante que les dimensions de cet « objet » sont petites.

2.2.3 Détection des ondes évanescentes

Précédemment, nous avons vu que plus l'intervalle $[-k_x, +k_x]$ des valeurs de k_x reçues par le détecteur sera large, plus la résolution du système optique sera grande. On comprend donc pourquoi la microscopie classique voit sa résolution limitée : ne détectant que les ondes diffractées en « champ lointain » c'est à dire à grande distance (par rapport à la longueur d'onde) de l'objet, ce type de microscopie ne peut capter que les ondes progressives qui ne transportent que des informations concernant des objets de taille supérieure à $\lambda/2$. De plus, on voit comment il est possible de contourner la « limite de Rayleigh » : les informations concernant les objet sub-longueur d'onde restant confinées sur la surface de l'objet sans pouvoir se propager peuvent être détectées en allant les chercher là où elles se trouvent, c'est à dire en approchant le détecteur au plus près de l'objet. En effet, si un objet de dimension sub-longueur d'onde peut transformer par diffraction une onde progressive en ondes évanescentes, des ondes évanescentes peuvent de la même manière, d'après le principe de retour inverse, être transformées en ondes progressives par diffraction. Ainsi, en approchant une pointe sub-longueur d'onde de la surface de l'objet observé, les ondes évanescentes présentes à sa surface seront partiellement transformées en ondes progressives et vont pouvoir transporter les informations qu'elles contiennent jusqu'au détecteur [65]. L'élément crucial de la microscopie en champ proche est donc la sonde : elle doit avoir une dimension nanométrique et pouvoir être positionnée à quelques nanomètres de la surface scannée. Un

exemple est donné pour une détection assurée par une sonde constituée d'une fibre optique effilée reliée à un photo-multiplicateur.

2.2.4 Microscope optique en champ proche

Nous allons décrire ici les différentes techniques de microscopies à sonde locale. La différence entre ces différentes techniques vient de la manière d'éclairer l'objet.

Nous pourrions nous rapporter à la référence [57] pour tous les détails concernant ce type de microscopie. Notons simplement qu'il existe deux techniques principales. La première est le STOM (Scanning Tunneling Optical Microscopy) dont l'éclairage se fait par réflexion totale, la sonde détectant alors les ondes évanescentes à la surface de l'échantillon, voir figure 2.7. La deuxième technique est le SNOM (Scanning Near Field Optical Microscopy) qui peut être réalisée de différentes façons, représentées schématiquement figure 2.8, où la sonde peut être soit utilisée pour éclairer l'objet, soit comme pointe détectrice.

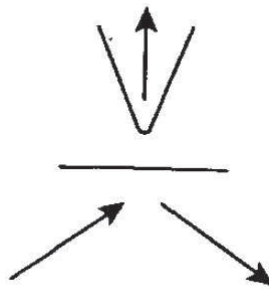


FIGURE 2.7 – Schéma de principe du STOM, extrait de [29].

Pour finir, la figure 2.9 montre une image des grains sur un film d'ITO (oxyde d'indium et d'étain) effectuée avec une technique SNOM ainsi qu'une image (image A) donnée par un microscope à force atomique (qui exploite l'interaction entre les atomes de l'apex nanométrique d'une pointe et les atomes superficiels d'un échantillon, la mesure se faisant *via* la déflexion d'un micro-levier sur le quel est fixé la pointe). On constate alors que la technique SNOM donne une image de très bonne qualité de la surface de l'échantillon avec une résolution de $20nm$.

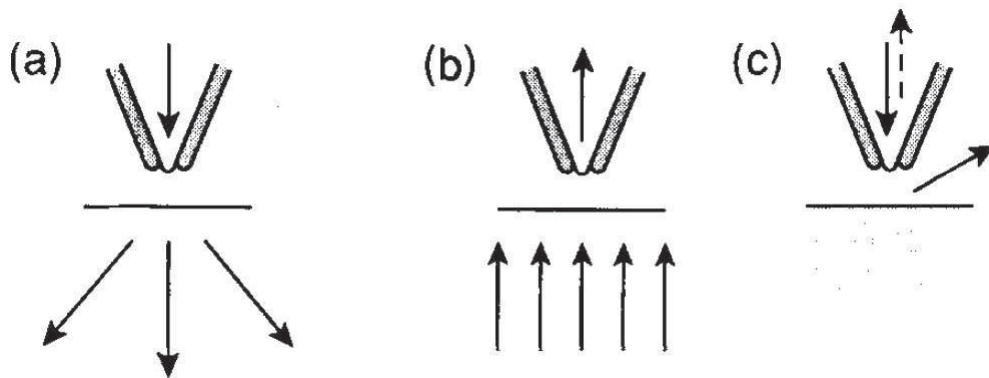


FIGURE 2.8 – Les différents modes du SNOM : (a) en illumination; (b) en collection; (c) en réflexion. Image extraite de [29].

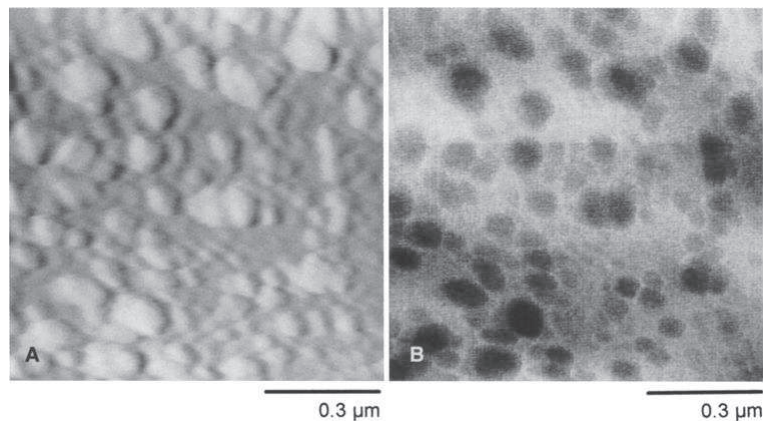


FIGURE 2.9 – Image des grains d'un film d'ITO donnée par (A) un microscope à force atomique et (B) un microscope optique de champ proche. Image extraite de [29].

2.3 Microscopie en champ lointain

Malgré leur excellente résolution spatiale, les techniques à sonde locale présentent l'inconvénient d'imposer une interaction considérable avec le substrat ou le nano-objet étudié. À ce titre les méthodes optiques en champ lointain, dont le principe repose sur l'interaction matière-rayonnement, constituent une alternative moins invasive permettant de sonder « à distance » les propriétés photo-physiques des nano-objets.

Ainsi, en 1990 M. Orrit et J. Bernard [51] ont utilisé la technique d'excitation de la fluorescence afin de réaliser la première détection des photons émis par des molécules individuelles. À l'origine détectées à température cryogénique dans une matrice solide (où les molécules sont finalement isolées spatialement), les molécules fluorescentes uniques sont désormais observables de manière routinière par microscopie confocale de lumines-

cence à température ambiante, dans des environnements variés. Au cours des années 90, l'essor des techniques de microscopie fût accompagné de progrès constants en matière de synthèse chimique de nano-objets individuels (nanocristaux semiconducteurs, nanoparticules métalliques, nanotubes de carbone) [40] et de procédés de croissance de systèmes nanométriques auto-assemblés tels que les puits quantiques [38]. Il devenait alors indispensable de disposer de méthodes de détection sensibles et simples à mettre en œuvre afin de caractériser la photophysique de nano-objets de plus en plus complexes. C'est ainsi que la quête vers l'amélioration de résolutions optiques (en champ lointain) commença. Cette recherche amena à découvrir que la barrière de diffraction de la microscopie en champ lointain pouvait être franchie en utilisant des transitions moléculaires basiques. Nous montrerons que ce concept exploite la transition entre un état noir et un état brillant pour changer la capacité de fluorescence des molécules afin que les molécules ou des objets adjacents à l'objet étudié n'émettent pas. Ce concept a été utilisé dans la microscopie STED (Stimulated emission depletion) par S. W. Hell et J. Wichmann pour atteindre des résolutions de $35nm$ en champ lointain [33] ce qui leur a valu le prix Nobel de chimie en 2014.

Nous allons commencer par décrire les principales techniques de microscopies de luminescence : la microscopie d'épifluorescence et la microscopie confocale. Pour ce faire nous introduirons tout d'abord brièvement les nano-objets luminescents. Ensuite, nous intéresserons aux techniques de microscopies sub-diffraction telle que le STED et l'illumination structurée. Nous verrons alors comment ces nouvelles techniques peuvent être utilisées avec des échantillons non-fluorescents.

2.3.1 Nano-objets luminescents

On modélise un nano-objet luminescent par un système à trois niveau électronique, voir figure 2.10. Cette approche nous permettra de décrire de manière générale les techniques de microscopie de luminescence. Nous considérons de plus uniquement des transitions dipolaires électriques. L'absorption a lieu vers un état excité $|e'\rangle$ à partir duquel les électrons photocréés relaxent très rapidement vers le niveau excité le plus bas $|e\rangle$. La relaxation à partir du niveau $|e\rangle$ vers l'état fondamental $|f\rangle$ peut s'effectuer *via* l'émission d'un photon (recombinaison radiative) ou par l'intermédiaire de processus non-radiatifs. On supposera que la relaxation non-radiative de $|e'\rangle$ vers $|e\rangle$ est suffisamment rapide pour considérer que seuls les niveaux $|e\rangle$ et $|f\rangle$ sont peuplés. Le taux de relaxation de l'état excité Γ_e est relié à sa durée de vie par $\tau_e = \Gamma_e^{-1}$ et s'écrit :

$$\Gamma_e = \Gamma_{rad} + \Gamma_{nr} \quad (2.41)$$

où Γ_{rad} et Γ_{nr} sont respectivement le taux de relaxation radiative et non radiative. Typiquement les durées de vie radiatives sont de l'ordre de la nanoseconde alors que

les temps caractéristiques des processus de relaxations non-radiatifs se situent dans le domaine picoseconde. Nous pouvons aussi introduire la largeur homogène du spectre d'émission :

$$\Gamma_{hom} = \frac{\Gamma_e}{2} + \gamma^* \quad (2.42)$$

La largeur homogène est déterminée par la durée de vie de la cohérence du dipôle de transition. Le terme γ^* rassemble tous les processus déphasants couplant le nano-objet et l'environnement extérieur. Il dépend fortement de processus tel que le couplage électron-phonon, donc de la température. Ainsi, à température cryogénique ($\leq 4K$), il est possible de disposer de systèmes pour lesquels la largeur homogène est limitée par la durée de vie de l'état excité. En revanche, à température ambiante, les processus déphasant brouillent la cohérence optique en quelques femtosecondes. La largeur homogène est alors de l'ordre de quelques dizaines de nanomètre (soit environ $0.1eV$)

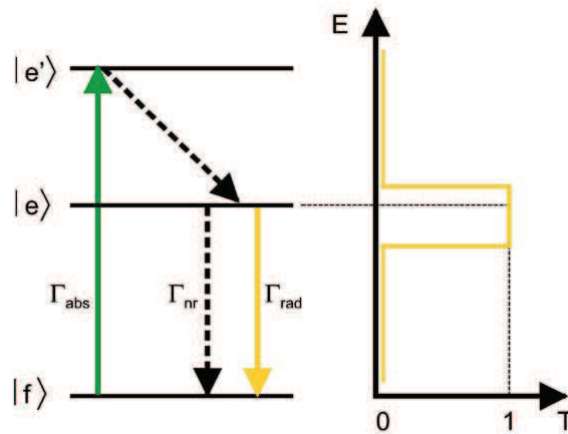


FIGURE 2.10 – Diagramme d'énergie schématisant un nano-objet individuel luminescent ; la courbe de transmission du filtre passe bande utilisé en microscopie de luminescence est représentée.

2.3.2 Microscopie de photoluminescence

Principe et contrainte

Il existe à l'heure actuelle plusieurs stratégies permettant de détecter des nano-objets individuels luminescents. À température ambiante, il n'est pas possible de profiter de la finesse des raies d'excitation pour sélectionner **spectralement** un nano-objet individuel [64]. Ainsi il est nécessaire d'effectuer une sélection **spatiale**. La distance moyenne séparant les nano-objets doit donc être supérieure à la limite de résolution optique du dispositif d'imagerie. Comme nous l'avons vu précédemment, la résolution transverse des microscopes optiques en champ lointain est de l'ordre de $\lambda/2$, où λ est la longueur d'onde de détection. Ceci nous impose une densité surfacique de l'ordre de $1 \mu\text{m}^{-2}$ pour les échantillons utilisés, ce qui n'est pas toujours réalisable. Mais dans le cas d'une excitation **non-résonante** de la luminescence par l'intermédiaire d'un état excité $|e'\rangle$. Les photons émis ont alors une énergie plus faible que les photons absorbés. Il est donc possible de les sélectionner spectralement à l'aide d'un miroir dichroïque ou d'un filtre passe-bande, voir figure 2.10.

Microscopie d'épifluorescence

Il s'agit de la technique de détection de la luminescence la plus simple à mettre en œuvre. L'excitation est réalisée en champ large avec un faisceau collimaté, voir figure 2.11(a). Pour cela, on focalise le faisceau excitateur dans le plan focal arrière de l'objectif. Les photons émis vers l'arrière sont alors collectés avec le même objectif de microscope et traversent le miroir dichroïque, alors que le faisceau excitateur réfléchi par l'échantillon subit une nouvelle réflexion au niveau du miroir dichroïque. Le faisceau de luminescence est filtré spectralement à l'aide d'un filtre passe-bande (ou éventuellement d'un filtre coloré), puis focalisé sur une caméra équipée d'une barette CCD (Charge Coupled Device) 2D refroidie. Le plan image de l'objectif est ainsi conjugué avec la surface du détecteur. Le champ large éclairé (typiquement $25 \times 25 \mu\text{m}^2$) est ensuite visualisé. La résolution de la microscopie d'épifluorescence est identique à celle des techniques de microscopie classique. Elle est donnée par le critère de Rayleigh :

$$R_e = \frac{1.22\lambda}{2O.N} \quad (2.43)$$

où $O.N.$ désigne l'ouverture numérique de l'objectif utilisé. Microscopie confocale

Au contraire de la microscopie d'épifluorescence, la microscopie confocale est une technique ponctuelle. Un dispositif classique de microscopie confocale utilise un faisceau (le plus souvent un faisceau laser) fortement focalisé sur un faible volume d'excitation limité par la diffraction (appelé volume confocal) à l'aide d'un objectif de microscope de grande ouverture numérique. Le faisceau de luminescence est recueilli avec le même objectif et séparé du faisceau excitateur réfléchi par un miroir dichroïque, voir figure 2.11(b). Afin de détecter uniquement les photons issus du volume confocal, le signal de

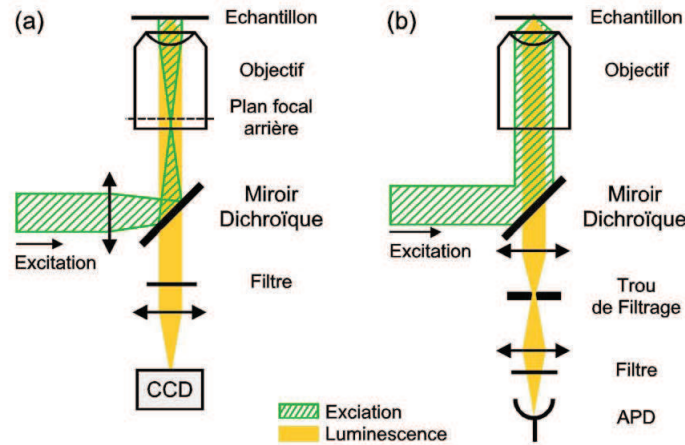


FIGURE 2.11 – Microscopie de luminescence : (a) Montage d'épifluorescence, (b) Montage de microscopie confocale.

luminescence est filtré spatialement à l'aide d'un diaphragme (trou d'épingle) de faible diamètre (5 à $30\mu m$) conjugué avec le point d'excitation, puis focalisé sur un détecteur ponctuel également conjugué avec le volume confocal. Le diamètre du trou d'épingle est optimisé de façon à avoir la meilleure sélection axiale possible. Les détecteurs les plus fréquemment utilisés sont des photodiodes à avalanche (APD). Dans beaucoup de cas la surface active du détecteur est suffisamment faible pour réaliser le filtrage spatial sans avoir recours à un trou d'épingle. Afin d'acquérir des images confocales, l'échantillon est placé sur un scanner piezo-électrique permettant le balayage à 2 voire 3 dimensions sur plusieurs dizaines de μm . La résolution de la microscopie confocale est sensiblement meilleure que celle de la microscopie d'épifluorescence. En effet, contrairement à la microscopie conventionnelle l'échantillon est éclairé par un spot limité par la diffraction et la détection de la fluorescence est faite de manière symétrique, ainsi la réponse du microscope est donnée par le produit de la figure de diffraction de l'excitation et la détection : $I(x, y, z)I_{em}(x, y, z) \approx I^2(x, y, z)$. Cette dépendance quadratique avec l'intensité implique que la résolution est améliorée d'un facteur $\sqrt{2}$ par rapport à celle de la microscopie d'épifluorescence. Elle s'écrit donc [68] :

$$R_c = \frac{0.87\lambda}{2O.N.} \quad (2.44)$$

2.3.3 Microscopies d'hyper-résolution

La dépendance du signal de fluorescence avec le carré de l'intensité d'excitation obtenue en microscopie confocale permet d'améliorer la résolution optique par rapport à la microscopie de fluorescence conventionnelle (d'épifluorescence). Cette même dépen-

dance peut être obtenue *via* une absorption à deux photons. L'excitation du fluorophore de son état fondamental $|f\rangle$ vers son état excité (fluorescent) le plus bas $|e\rangle$ requiert alors deux photons d'énergie égale à la moitié de la différence d'énergie entre les états $|e\rangle$ et $|f\rangle$, c'est à dire de longueur d'onde égale à deux fois la longueur d'onde d'émission (pour une excitation en résonance). Le doublement de la longueur d'onde implique que la taille du spot d'excitation est aussi doublée (voir équation 2.4), ce qui n'est pas compensé par la réduction de la résolution par $\sqrt{2}$. De la même manière une absorption à m -photon ne permettra pas d'améliorer la résolution. Mais quoi qu'il en soit, comme m est fini, la limite de résolution liée à la diffraction est uniquement déplacée avec ce type de technique, on ne va pas au-delà de la barrière de diffraction. Dépasser la « barrière » de diffraction signifie en effet que le rôle limitant de la diffraction est levé et que le pouvoir de résolution peut être amélioré, au moins conceptuellement, jusqu'à l'échelle moléculaire voire au-delà. Il est clair que ni la microscopie confocale, ni la microscopie multiphotonique ne remplit ce critère. Les techniques de microscopie sub-diffraction en champ lointain ont été mises au point en se basant sur l'idée clef que ce sont les fluorophores eux-même grâce à leurs états intermédiaires qui peuvent permettre de descendre à des résolutions de l'ordre du nanomètre. Cette idée est en complète opposition avec les microscopies à sonde locale qui sont basées sur la modification de la propagation de la lumière. Cette idée a permis de développer de nouvelles techniques de microscopies dont les résolutions descendent à quelques dizaines de nanomètre. La première à voir le jour a été la microscopie de déplétion par émission stimulée (STED).

Microscopie STED et dérivés

La microscopie STED (Stimulated Emission Depletion) utilise une paire d'état brillant $|e\rangle$ et noir $|f\rangle$ (chacun possédant plusieurs sous niveaux vibrationnels) pour restreindre l'état brillant à une zone de dimension plus petite que celle donnée par la diffraction. Pour ce faire, l'échantillon est éclairé par deux types de faisceaux : un faisceau d'excitation (limité par la diffraction) qui excite la fluorescence et un faisceau de forme annulaire, appelé faisceau STED. Une fois excités, les fluorophores s'équilibrent sur l'état vibrationnel le plus bas de l'état brillant $|e\rangle$, d'où ils peuvent revenir à un sous niveau vibrationnel de l'état fondamentale (ou noir) $|f\rangle$ par émission de fluorescence, avec un temps caractéristique τ_e . Le faisceau STED a pour but de forcer les fluorophores à revenir dans leur état noir. Ceci se produit si le taux d'émission stimulée $\sigma I_{STED} \lambda_{STED} / hc$ est plus important que celui de l'émission spontanée $1/\tau_e$, où nous avons noté σ la section efficace de l'émission stimulée, h la constante de Planck, c la célérité de la lumière dans le vide, I_{STED} et λ_{STED} l'intensité et la longueur d'onde, respectivement, du faisceau STED. λ_{STED} est choisie de manière à ce que les fluorophores atteignent un niveau vibrationnel de $|f\rangle$ de haute énergie de décroissance rapide afin que la dé-excitation prédomine. De plus, la décroissance de la fluorescence étant proportionnelle à $\exp(-I_{STED}/I_s)$, avec I_s l'intensité de saturation de la fluorescence caractéristique de la molécule étudiée, pour $I_{STED} = 3I_s$ les fluorophores éclairés par le faisceau STED sont majoritairement dans leur état noir, ceci par effet de saturation, figure 2.12.

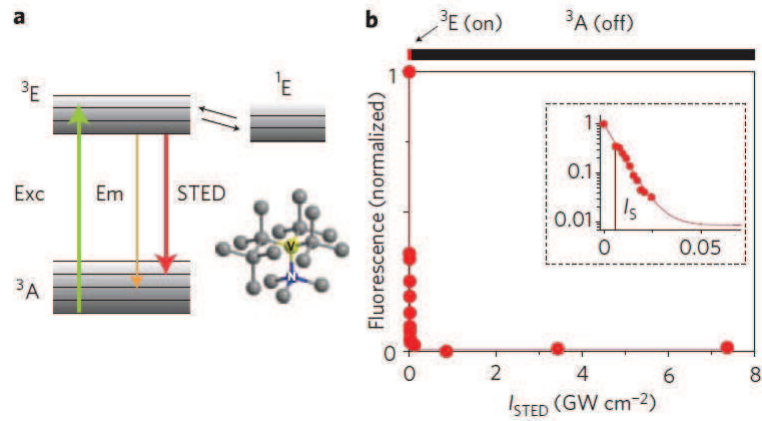


FIGURE 2.12 – Déplétion par émission stimulée de l'état excité du centre coloré (vacance chargée) de l'azote dans le diamant.

(a) Diagramme d'énergie représentant l'état fondamental, l'état excité fluorescent ainsi que les transitions induites par le faisceau d'excitation (Exc), par le faisceau STED et l'émission (Em) des centres vacants de l'azote.

(b) Décroissance de la fluorescence en fonction de l'intensité du faisceau STED. Pour $I_{STED} > 20 MW cm^{-2}$, le centre de l'azote est privé de sa capacité à fluorescer, il est éteint. Image extraite de [56].

Ainsi, un signal de fluorescence ne pourra être émis que par la zone de l'échantillon non éclairée par le faisceau STED. Le faisceau STED ayant une forme annulaire, son intensité est minimale au centre $I_{STED}(x = 0, y = 0) = 0$ puis croît radialement. La superposition du disque de Airy, correspondant à la figure de diffraction du faisceau d'excitation, et du faisceau STED telle que $I_{STED} \gg I_s$ éteint tous les centres de fluorescence couverts par le disque de Airy sauf ceux placés au minimum du faisceau STED où $I_{STED} \leq 3I_s$, figure 2.13. Le point important ici est que la zone résultante ne sera plus limitée par la diffraction du fait du caractère fortement non-linéaire du processus d'émission stimulée, son extension est donnée par :

$$\Delta x, y = \frac{\lambda}{2O.N.\sqrt{1 + I_{STED}^{max}/I_s}} \quad (2.45)$$

On remarque que la résolution spatiale $R = \Delta x, y$ est proportionnelle à λ , comme toute technique de champ lointain, mais elle n'est ici plus limitée par λ . En effet, en prenant $I_{STED}^{max}/I_s \rightarrow \infty$, on obtient $\Delta x, y \rightarrow 0$ [30] [31].

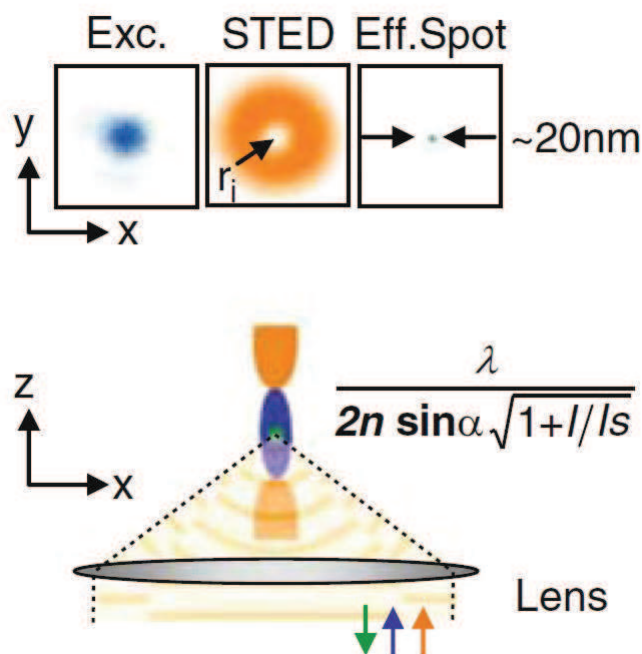


FIGURE 2.13 – Principe de fonctionnement de la microscopie STED, image tirée de [32].

La figure 2.14 montre l'efficacité de la microscopie STED. Elle permet de mettre en évidence les centres des sites vacants de l'azote dans le diamant avec une résolution d'environ 25nm que ne montrent pas les images faites en microscopie confocale.

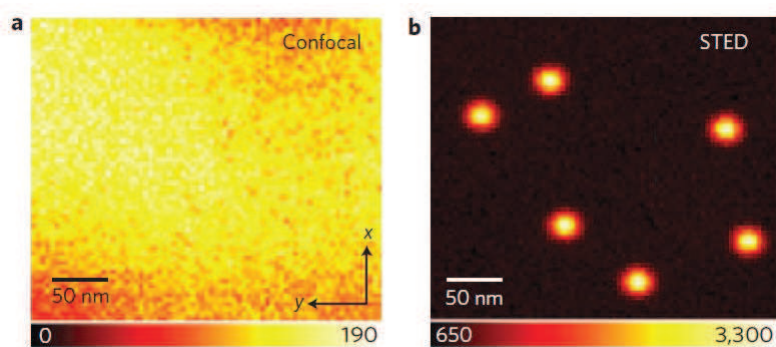


FIGURE 2.14 – La microscopie STED révèle les centres des sites vacants de l'azote dans le diamant. (a) image en microscopie confocale et (b) STED de la même région du cristal, obtenu en effectuant un scan grâce à un système de déplacement piezo-électrique. Image extraite de [56].

La microscopie GSD (Ground State Depletion) est le deuxième concept permettant concrètement de dépasser la barrière de diffraction. Bien que dérivant de la microscopie STED, le mécanisme permettant d'éteindre la fluorescence est nettement différent. Ce nouveau procédé, qui se fait à des intensités lumineuses bien plus faibles, utilise en effet un état métastable triplet, et non plus l'état fondamental, comme état noir pour éteindre la fluorescence en dehors du volume focal. La microscopie GSD a montré sa capacité à imager efficacement des grappes de protéines immunomarquées sur la membrane plasmique de cellules immobiles avec une résolution de $R = 50 - 90nm$ en utilisant un laser continu de densité d'excitation de quelques kW par centimètre carré [6].

Récemment, P. Wang a mis au point une technique d'imagerie sub-diffraction pour des échantillons non-fluorescent [66]. Cette technique utilise, comme dans la microscopie STED, un phénomène de saturation contrôlé spatialement pour réduire la taille de la zone imagée. Le principe de cette technique est illustré figure 2.15.

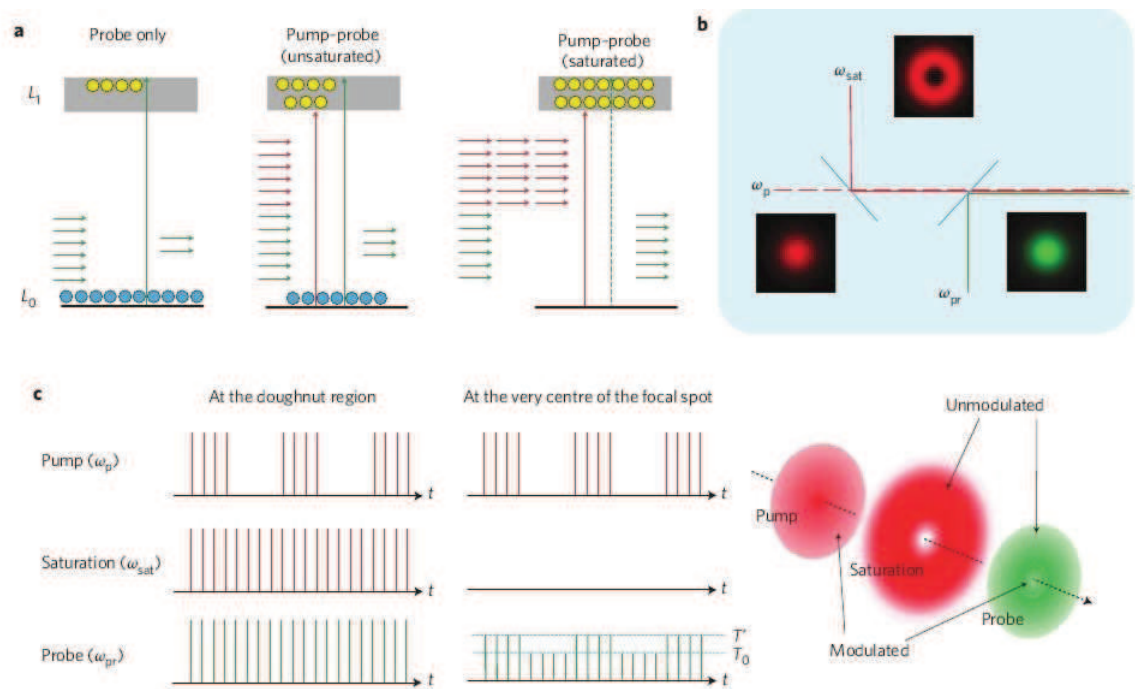


FIGURE 2.15 – (a) Illustration de l'effet de saturation de la transition électronique d'un système à deux niveaux. Les photons pompe et sonde sont indiqués avec des flèches rouges et vertes, respectivement. (b) Schéma de principe du montage expérimental. Les lignes pointillées montrent que le faisceau pompe est modulé. (c) Représentation des trains d'onde des faisceaux pompe, de saturation et sonde dans la région de focalisation du faisceau annulaire, à gauche, et au centre du volume focal, au milieu. Le transfert de la modulation de la pompe se fait seulement au centre où l'intensité du faisceau de saturation est proche de zéro, à droite. Image extraite de [66].

On utilise ici un processus pompe-sonde où une impulsion pompe modulée temporellement par un modulateur acousto-optique à une fréquence de $7MHz$ perturbe la densité de porteurs de charge dans l'échantillon qui induit alors une modulation de l'impulsion sonde lui succédant (pour une explication détaillée de ce processus voir 1.4.2). Un faisceau laser de forme annulaire est ensuite intercalé entre le faisceau pompe et le faisceau sonde pour saturer de manière transitoire la transition électronique en périphérie du volume focal. Cette méthode, appelée microscopie à saturation d'absorption transitoire (Saturated TA), a permis d'imager des nano-plaquettes de graphite avec une résolution de $300nm$ à une longueur d'onde (de la sonde) de $830nm$ qui montre bien que la barrière de diffraction est levée, figure 2.16.

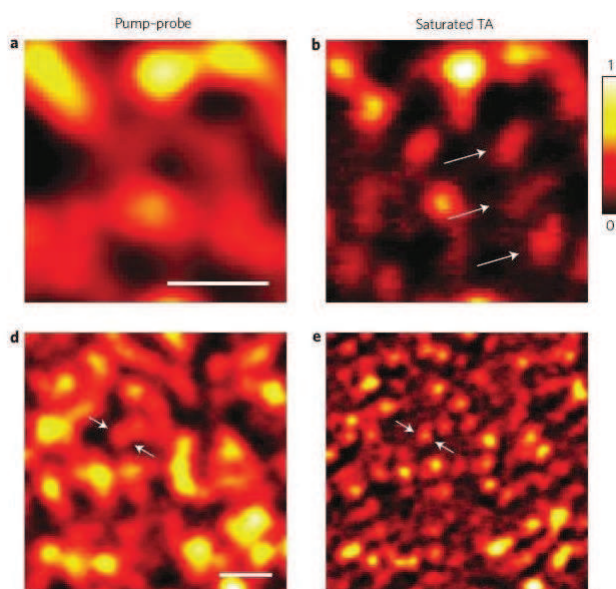


FIGURE 2.16 – Image sub-diffraction de nano-plaquettes de graphite. (a) et (d) Images obtenues en microscopie pompe-sonde conventionnelle. (b) et (e) Images de la même zone de l'échantillon obtenue avec la microscopie à saturation d'absorption transitoire, image extraire de [66].

Microscopie à illumination structurée :

Dans les années 2000, M.G.L. Gustafsson mit au point une nouvelle technique de microscopie sub-diffraction dont les exigences expérimentales sont plus légères que celles nécessitées par la microscopie STED et GSD où il faut superposer exactement le faisceau d'excitation et le faisceau STED, mais qui demande un effort de traitement numérique des données après acquisition.

La première technique de microscopie à illumination structurée est linéaire (les microscopies STED et GSD sont des techniques non-linéaires par le fait qu'elles utilisent la saturation de la fluorescence). Son principe consiste à remplacer l'éclairage uniforme d'un microscope conventionnel par une illumination structurée permettant à des informations de l'échantillon normalement inaccessibles car à trop haute résolution, de devenir observable sous la forme de franges de moiré. Cet effet appelé « effet moiré » est illustré figure 2.17. Si deux motifs légèrement différents sont superposés, leur produit montrera des battements appelés franges de moiré dont les fréquences spatiales sont déterminées par la différence des fréquences spatiales des deux motifs. Dans notre cas, un des motifs est la répartition spatiale inconnue d'objets fluorescents et le deuxième est l'intensité de la lumière d'excitation intentionnellement structurée spatialement. Comme la quantité de lumière émise en un point de l'échantillon est proportionnelle au produit entre la densité de fluorophores et l'intensité d'excitation locale, l'image de fluorescence observée est alors le produit des deux motifs et contient donc des franges de moiré.

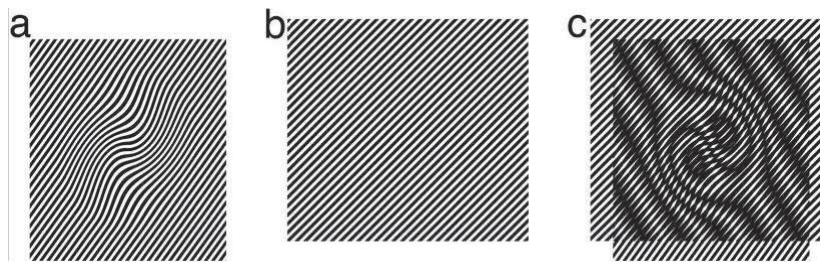


FIGURE 2.17 – *Extension de la résolution par effet moiré. Si les hétérogénéités spatiales d'un échantillon inconnues (a) sont multipliées à un motif d'illumination connu (b) un motif de battement, les franges de moiré, apparaît (c). Les franges de moiré apparaissent aux différences de fréquences entre la fréquence du motif d'illumination et chaque fréquence spatiale de la structure de l'échantillon. Image extraire de [25].*

Comme le montre la figure 2.17 (c), de telles franges de moiré peuvent être bien de dimensions bien plus grandes que celles des motifs originaux et elles peuvent permettre de rendre observables des détails de l'échantillon trop fins pour être résolus par le microscope. En effet, pour une illumination structurée de fréquence k_1 , chaque fréquence

spatiale k de l'échantillon donnera des franges de moiré à la fréquence $k - k_1$. Or, nous avons montré, 2.3, que tout microscope optique est limité par la diffraction et possède une fréquence de coupure $k_0 = 1/\Delta x = 2O.N./\lambda_{em}$ où λ_{em} est la longueur d'onde d'émission des fluorophores observés. Donc, si la différence des fréquences spatiales obtenues par effet moiré est inférieure à cette fréquence de coupure, les franges de moiré pourront être observées avec l'objectif de microscope. On mesurera donc les fréquences spatiales $k - k_1$ sur l'image et finalement, en connaissant k_1 on pourra remonter à des valeurs de $k = k_0 + k_1$ par reconstruction numérique comme l'illustre la figure 2.18.

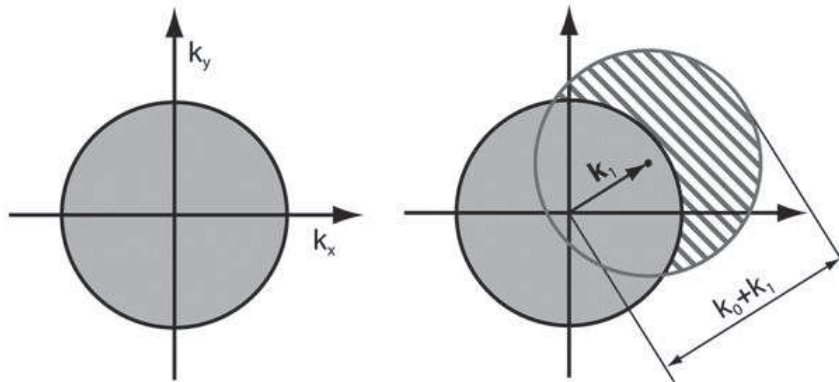


FIGURE 2.18 – Principe de la microscopie à illumination structurée. Image de gauche : les fréquences spatiales observables par un microscope optique conventionnel décrivent un cercle de rayon $1/\Delta x = k_0$. Image de droite : si la lumière d'excitation contient la fréquence spatiale k_1 , un nouveau panel d'informations devient visible sous la forme de franges de moiré (cercle hachuré). Cette région a la même forme que la région observable normalement mais centrée en k_1 . La fréquence spatiale maximum qui peut être détecté est donc $k_0 + k_1$. Images extraites de [25].

En pratique l'échantillon est éclairé par un motif sinusoïdal contenant 3 fréquences spatiales $-k_1, 0, +k_1$. Chacune de ces fréquences donnera sa contribution dans les franges de moiré observées sur l'image finale et il n'est pas possible de les séparer en utilisant une seule image. Néanmoins, les coefficients avec lesquels ces contributions sont sommées dépendent de la phase de l'illumination structurée qui est connue et contrôlable. En enregistrant au minimum trois images de l'échantillon avec des phases de l'illumination structurée différentes, les trois composantes peuvent être séparées *via* une relation arithmétique simple, et les informations qu'elles contiennent restaurées à leur bonnes positions. En choisissant un motif d'illumination structurée le plus fin possible (c'est à dire avec un k_1 le plus grand possible), il est possible d'accéder à des

information de fréquence spatiale double (dans la direction du motif d'illumination). En répétant cette opération avec différentes orientations de l'illumination structurée, on peut alors observer toutes les fréquences spatiales contenues dans un cercle de rayon double par rapport à la région physiquement observable [24]. La figure 2.19 montre que la microscopie à illumination structurée permet d'obtenir une résolution de $130nm$ alors qu'un microscope confocal est limité à $210nm$.

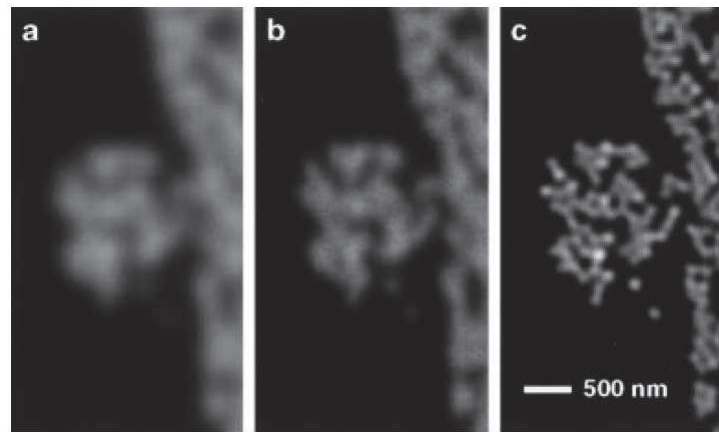


FIGURE 2.19 – Un amas de microsphères fluorescentes de diamètre nominal de $121nm$ imagé par un microscope (a) conventionnel, (b) confocal et (c) à illumination structurée. La taille approximative de chaque mire observée est de $130nm$ avec le microscope à illumination structurée, de $290nm$ avec le microscope conventionnel et de 210 avec le microscope confocal. Image extraite de [24].

On peut encore atteindre de meilleures résolutions avec ce type de microscope en utilisant des non-linéarités optiques telle que la saturation de fluorescence. Contrairement à la microscopie STED et GSD, la microscopie à saturation par illumination SSIM (Saturated Structured Illumination Microscopy) confine l'état noir plutôt que l'état brillant, produisant ainsi des régions où les fluorophores restent éteints et entourés par des régions où ceux-ci fluorescent. Avec une intensité d'illumination supérieure à l'intensité de saturation des objets fluorescents contenus dans l'échantillon, $I_{ill} > I_s$, ces régions noires seront de dimensions sub-diffraction (comme avec le faisceau STED). On peut aussi comprendre l'amélioration de la résolution par l'utilisation de non-linéarité en regardant dans l'espace réciproque, c'est à dire l'espace des fréquences spatiales, voir figure 2.20. Lorsque l'échantillon est éclairé avec une excitation sinusoïdale dont l'intensité maximale est proche de l'intensité de saturation, l'émission de fluorescence n'aura pas une forme sinusoïdale mais contiendra des harmoniques de fréquences spatiales plus élevées : $2k$, $3k$, $4k$, etc.

L'image qu'on observe de l'échantillon ainsi éclairé sera alors une superposition de plusieurs composantes de la réponse optique de l'échantillon, chacune déplacée dans l'espace réciproque d'une valeur correspondant aux fréquences spatiales des composantes de Fourier du motif d'éclairage, voir figure 2.20. Le nombre d'harmoniques est *a priori* illimité mais comme on l'a signalé dans le chapitre précédent, plus l'ordre de la non-linéarité est élevé plus la réponse optique correspondante est de faible intensité et donc difficilement observable. On peut quand même s'attendre à pouvoir observer jusqu'à la troisième harmonique, correspondant alors à une augmentation d'un facteur trois de la résolution spatiale de l'image.

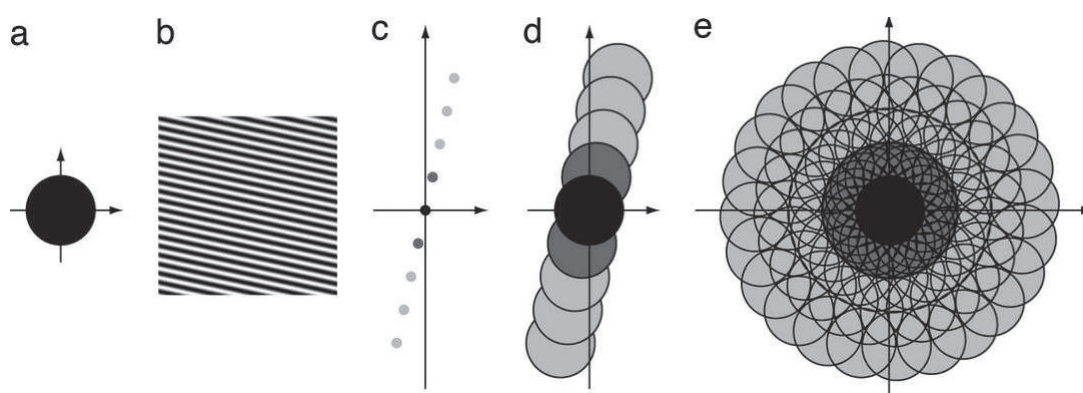


FIGURE 2.20 – *Extension de la résolution par illumination structurée non-linéaire.* (a) Zone des régions spatiales observables par un microscope conventionnel. (b) Exemple de motif d'illumination sinusoïdale. (c) La figure d'éclairage contient trois fréquences spatiales : une à l'origine (point noir), correspondant à l'intensité moyenne, et deux à $\pm k_1$ (points gris foncés), correspondant à la modulation. De nouvelles fréquences spatiales apparaissent avec une excitation non-linéaire (provoquant la saturation de la fluorescence) : elles correspondent à des harmoniques des fréquences du motif d'éclairage (points gris clairs). (d) Régions des fréquences spatiales observables pour un microscope conventionnelle (en noir), pour un microscope à illumination structurée (gris foncé) et pour une illumination structurée non-linéaire (gris clair) basé sur les trois premières harmoniques. (e) Région observable si l'opération est répétée pour différentes orientations du motif d'éclairage. Cette région est bien plus étendue que celle montrée en (a) et montre que cette technique permet de reconstruire l'image de l'échantillon avec une résolution bien supérieure. Image extraire de [25].

La figure 2.21 **d** et **e** montre l'amélioration de la résolution spatiale apportée par l'effet non-linéaire de l'excitation qui est d'environ $120nm$.

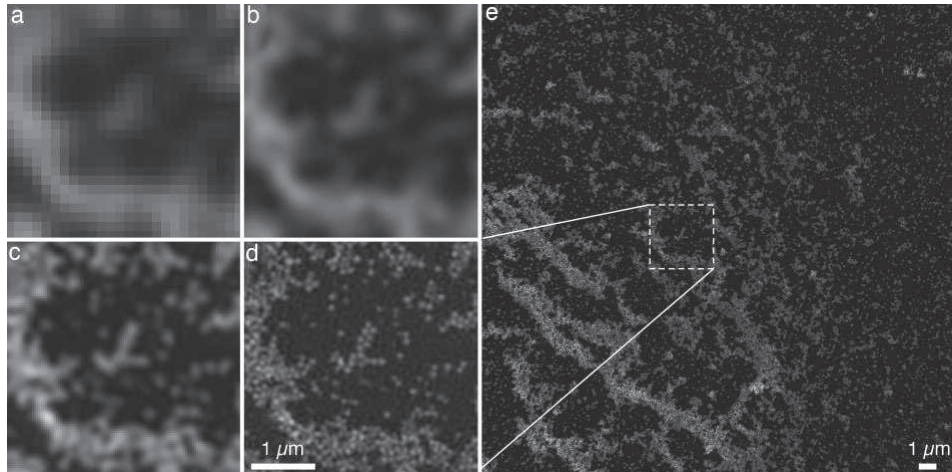


FIGURE 2.21 – Un amas de microsphères fluorescentes imagé par un microscope (a) conventionnel, (b) confocal, (c) à illumination structurée et (d) à illumination structurée non-linéaire. Comme il n'est pas nécessaire de scanner l'échantillon, une image en champ large peut-être obtenue. Image extraite de [25].

2.4 Conclusion

Durant ces dernières décennies de nombreuses techniques de microscopie sub-diffraction ont été développées. Toutes ces techniques ont en commun d'utiliser des non-linéarités de la réponse optique des nano-objets étudiés pour atteindre des résolutions dépassant la centaine de nanomètres. En effet, les non-linéarités permettent d'obtenir des vecteurs d'ondes dont les composantes parallèles au plan de l'échantillon sont supérieures à celle du motif d'illumination comme le montre la figure 2.22. La résolution d'un instrument d'optique étant inversement proportionnelle à la composante parallèle du vecteur d'onde, plus celle-ci sera grande, meilleure sera la résolution.

La microscopie à illumination structurée saturée utilise la fluorescence comme réponse optique et sa saturation comme effet-non linéaire mais, tout comme le STED, on peut concevoir une technique d'illumination structurée non-linéaire utilisant un autre type de réponse optique, comme par exemple l'absorption induite mesurée lors d'une expérience pompe-sonde. En utilisant la saturation d'absorption comme effet non-linéaire on pourrait alors de dépasser la « barrière de Rayleigh ». Nous verrons comment il est possible de mettre au point cette nouvelle technique dans la dernière partie de cette thèse (partie III).

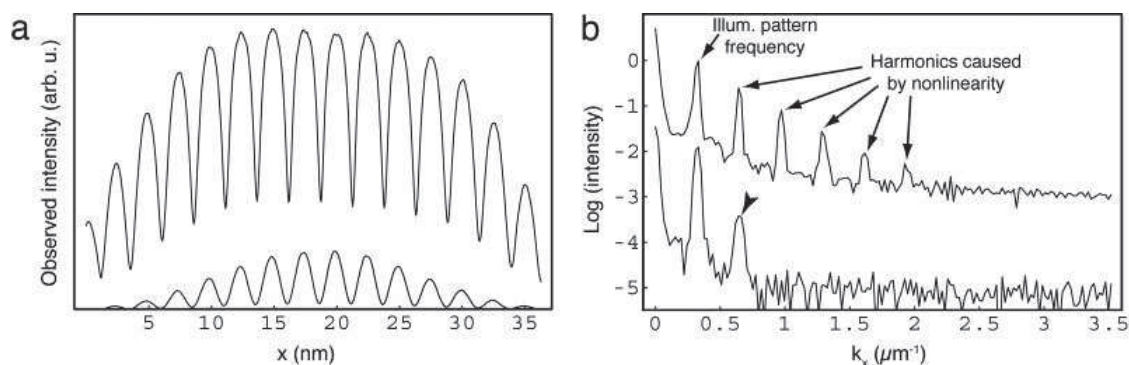


FIGURE 2.22 – Génération d'harmonique par saturation. (a) Intensité de fluorescence d'un échantillon éclairé par un faisceau gaussien modulé par des rayures sinusoïdales avec une période de $2.5\mu\text{m}$, de densité d'énergie par impulsion de $0.58\text{mJ}/\text{cm}^2$, courbe du bas, et de $37\text{mJ}/\text{cm}^2$, courbe du haut. La courbe du bas suit le profil sinusoïdal car la densité d'énergie d'excitation est sous le régime de saturation. Pour la courbe du haut, le régime de saturation de la fluorescence est atteint créant des pics plus larges et des vallées plus abruptes. (b) Transformée de Fourier des profils précédents montrant cinq harmoniques créées par la saturation. Image extraite de [25].

Deuxième partie

Effet d'une modulation spatiale sur la
réponse optique : étude du mélange
d'ondes avec des faisceaux de
Laguerre-Gauss

Introduction	67
3 Les modes de Laguerre-Gauss	69
3.1 Les modes propagatifs du champ électromagnétique : du mode Gaussien au mode de Laguerre-Gauss	69
3.1.1 L'équation d'onde	69
3.1.2 Solutions de l'équation d'onde paraxiale	70
3.1.3 Particularités des modes de Laguerre-Gauss	74
3.2 Le moment orbital angulaire	76
3.3 Génération et caractérisation de faisceaux de Laguerre-Gauss	78
3.3.1 Interférence entre deux faisceaux de Laguerre-Gauss	78
3.3.2 Caractérisation des modes de Laguerre-Gauss	82
3.3.3 Génération de modes de Laguerre-Gauss	83
4 Équations de Bloch et modes de Laguerre-Gauss	87
4.1 Expression de la polarisation du troisième ordre	88
4.2 Expression simple du signal généré par la polarisation du troisième ordre : conservation du moment orbital angulaire	90
4.3 Expression générale du signal généré par la polarisation du troisième ordre	100
4.3.1 Modes généralisés d'Hermite-Laguerre-Gauss	100
4.3.2 Fonction génératrice des modes	102
4.3.3 Produits de modes de Laguerre-Gauss	102
4.3.4 Exemples et interprétations	111
5 Échantillon étudié : puits quantique de CdTe/CdZnTe	115
5.1 Propriétés générales des matériaux massifs CdTe et CdZnTe	115
5.1.1 Structure cristallographique	115
5.1.2 Structure de bande	116
5.1.3 Les excitons	116
5.2 Description de l'échantillon	118
5.2.1 Croissance épitaxiale par jet moléculaire de puits quantique . .	118
5.2.2 Structure de bande et propriétés optiques	120
5.3 Refroidissement de l'échantillon	125

6	Expérience de mélange d'ondes en géométrie non-colinéaire	127
6.1	Montage expérimental	127
6.1.1	Génération des impulsions	127
6.1.2	Modulateur acousto-optique	128
6.1.3	Configuration du montage expérimental	129
6.1.4	Contrôle du retard, précision des mesures résolues en temps . . .	129
6.2	Détections et caractérisations des faisceaux générés	130
6.2.1	Imagerie et mesure du moment orbital angulaire des faisceaux générés	130
6.2.2	Mesures résolues en temps	133
6.3	Conclusion	136
7	Expérience de mélange d'ondes en géométrie colinéaire	137
7.1	Le montage expérimental	137
7.2	Résultats	138
7.3	Conclusion	140

Introduction

La description de la lumière en terme d'ondes planes est couramment utilisée pour modéliser les différents processus non-linéaires ayant lieu dans des matériaux semi-conducteurs. Même si cette description permet de rendre compte des dynamiques temporelles des signaux générés par ces processus non-linéaires (comme nous l'avons vu en 1.3), elle ne décrit pas l'influence de la forme spatiale des faisceaux excitateurs sur la réponse optique obtenue. Les ondes planes ont en effet une extension spatiale infinie qui ne correspond à aucune réalité physique.

Les modes d'un laser sont généralement bien décrits par des faisceaux gaussiens dont les fronts d'onde peuvent être approximés à des plans dans le cas où leurs rayons de courbure sont grands, c'est à dire lorsque les faisceaux sont collimatés. Or, lorsque se produit l'interaction lumière-matière dans les expériences d'optique non-linéaire, les faisceaux incidents sont fortement focalisés, il semble donc que l'approximation en terme d'ondes planes ne soit pas du tout adéquate. De plus, des phénomènes de saturations peuvent avoir lieu, cela modifie alors fortement le profil transverse à l'origine gaussien. Il paraît donc essentiel de considérer la forme spatiale des faisceaux excitateurs pour rendre compte proprement des différents processus mis en jeu dans les échantillons étudiés.

Dans cette partie nous allons étudier l'influence de la forme spatiale des faisceaux incidents sur les faisceaux générés par un processus non-linéaire tel que le mélange d'ondes. Nous restreindrons cette étude en considérant des modes de Laguerre-Gauss qui possèdent une symétrie de révolution autour de leur axe de propagation, propriété commune à tous les faisceaux.

On commencera par décrire les modes du champ électromagnétique dans le cadre de l'approximation paraxiale. Nous rappellerons alors ce que sont les modes de Laguerre-Gauss et leurs propriétés, notamment en termes de moment angulaire.

Puis nous présenterons la description théorique du mélange d'ondes que nous avons effectuée, *via* les équations de Bloch, dans le cas où les champs sont décrits par des modes de Laguerre-Gauss.

Ensuite nous donnerons quelques précisions sur l'échantillon étudié, le puits quan-

tique de CdTe/CdZnTe.

Enfin les deux derniers chapitres seront consacrés aux expériences réalisées : premièrement, le mélange d'onde en géométrie non-colinéaire qui nous a servi d'expérience préliminaire pour mettre au point la deuxième expérience, celle du mélange d'onde en géométrie colinéaire.

Chapitre 3

Les modes de Laguerre-Gauss

3.1 Les modes propagatifs du champ électromagnétique : du mode Gaussien au mode de Laguerre-Gauss

3.1.1 L'équation d'onde

Les différents modes propagatifs de la lumière se déterminent en résolvant l'équation d'onde. En trois dimensions, cette équation s'écrit :

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = 0 \quad (3.1)$$

avec c la vitesse propagation de l'onde. L'équation d'onde est linéaire, on peut alors appliquer la séparation des variables d'espace et de temps. Nous choisirons une solution périodique dans le temps, c'est à dire un champ monochromatique, telle que :

$$E(x, y, z, t) = \mathcal{E}(x, y, z)e^{-i\omega t} + C.C. \quad (3.2)$$

avec $\omega = kc$ la pulsation et $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ le nombre d'onde. $C.C.$ est le complexe conjugué du terme le précédent et vaut donc $\mathcal{E}^*(x, y, z)e^{i\omega t}$.

En remplaçant dans l'équation 3.1, on obtient l'équation de Helmholtz :

$$\nabla^2 \mathcal{E} + k^2 \mathcal{E} = 0 \quad (3.3)$$

Supposons maintenant que la propagation de l'onde se fasse dans la direction des z positifs, $\mathcal{E}(x, y, z)$ doit donc être de la forme :

$$\mathcal{E}(x, y, z) = \mathcal{E}_0(x, y, z)e^{ikz} \quad (3.4)$$

En injectant l'équation 3.4 dans 3.3 et en simplifiant on obtient :

$$\frac{\partial^2 \mathcal{E}_0}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{E}_0}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{E}_0}{\partial z^2} + 2ik \frac{\partial \mathcal{E}_0}{\partial z} = 0 \quad (3.5)$$

En choisissant $\mathcal{E}_0(x, y, z) = \mathcal{E}_0 = \text{constante}$ on obtient une onde plane :

$$E = \mathcal{E}_0 e^{i(kz - \omega t)} + C.C. \quad (3.6)$$

qui constitue une base des solutions de l'équation d'onde très souvent utilisée (car mathématiquement très simple). Cependant cette solution ne constitue pas un mode propagatif de la lumière réellement observable. Les ondes planes monochromatiques n'ont effectivement aucune localisation ni dans le temps ni dans l'espace, le sens du temps n'est alors pas défini. Or, comme le disait Sommerfeld, « les sources doivent être des sources, pas des puits d'énergie. L'énergie rayonnée des sources doit se disperser à l'infini ; aucune énergie ne peut être rayonnée de l'infini vers le domaine étudié » [62].

Il faut donc construire une onde qui a un début et une fin. L'idée la plus simple consiste à superposer des ondes planes monochromatiques et former ce qu'on appelle un paquet d'onde. La linéarité de l'équation de propagation autorise à appliquer le théorème de Fourier : une superposition linéaire d'ondes planes est toujours solution de l'équation. L'expression mathématique d'une telle superposition s'écrit [53] :

$$\mathcal{E}(x, y, z) \propto \int \int_{k_x^2 + k_y^2 \leq k^2} \frac{dk_x dk_y}{(2\pi)^2} \hat{A}(k_x, k_y) e^{ik_x x + ik_y y + i\sqrt{(k^2 - k_x^2 - k_y^2)}z}. \quad (3.7)$$

La notation du vecteur d'onde sous la forme $\mathbf{k} = \left(k_x, k_y, \sqrt{k^2 - k_x^2 - k_y^2} \right)$ reflète la conservation de l'énergie : $k = \sqrt{k_x^2 + k_y^2 + k_z^2} = \omega/c$.

Il faut maintenant trouver une expression convenable pour que l'amplitude $\hat{A}(k_x, k_y)$ des contributions des ondes planes de vecteurs d'onde \mathbf{k} satisfasse les critères énoncés précédemment et corresponde à ce que les lasers actuels délivrent comme faisceaux.

3.1.2 Solutions de l'équation d'onde paraxiale

Les lasers actuels génèrent un champ électromagnétique spatialement cohérent qui possède une extension transversale finie avec une vitesse d'étalement modérée. Cela signifie que l'amplitude de l'onde varie très lentement lorsqu'elle se propage suivant l'axe z comparée à la longueur d'onde et à la largeur du faisceau. On peut alors appliquer l'approximation paraxiale à l'équation 3.7 et supposer que l'amplitude $\hat{A}(k_x, k_y)$ décroît suffisamment rapidement lorsque k_x et k_y croissent de manière à étendre les bornes des intégrales à $\pm\infty$ et à approximer la racine carrée dans l'exponentielle à $k - \frac{k_x^2 + k_y^2}{2k}$. En appliquant ces hypothèses, seules les valeurs correspondant à $k_{x,y} \ll k$ contribuent de

manière significative au calcul de l'intégrale. Notons que cette approximation correspond à négliger le terme $\frac{\partial^2 \mathcal{E}_0}{\partial z^2}$ dans l'équation 3.5 ; l'équation résultante

$$\frac{\partial^2 \mathcal{E}_0}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{E}_0}{\partial y^2} + 2ik \frac{\partial \mathcal{E}_0}{\partial z} = 0 \quad (3.8)$$

est appelée l'équation d'onde paraxiale.

Pour construire des *bonnes* solutions de cette équation, deux caractéristiques du flux d'énergie total du champ électromagnétique (proportionnelle au carré de l'amplitude) sont aussi à considérer [53]. Premièrement, la divergence correspondant à l'étalement de l'amplitude des ondes planes dans l'espace réciproque, c'est à dire des vecteurs d'onde, et qui s'exprime selon :

$$divergence \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dk_x}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dk_y}{2\pi} (k_x^2 + k_y^2) | \hat{A} |^2 \quad (3.9)$$

et deuxièmement, l'extension spatiale transverse qui est la taille du faisceau (décrit par l'intensité du champ) dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation z , et qui est définie par :

$$\begin{aligned} extension\ transverse &\propto \int_{-\infty}^{+\infty} dx \int_{-\infty}^{+\infty} dy (x^2 + y^2) | E |^2 \\ &= \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dk_x}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dk_y}{2\pi} \left(\left| \frac{\partial A}{\partial x} \right|^2 + \left| \frac{\partial A}{\partial y} \right|^2 \right). \end{aligned} \quad (3.10)$$

Le mode fondamental d'une impulsion laser est alors celui qui possède une divergence et une extension transverse minimales, c'est à dire telle que l'amplitude de son champ minimise le produit *divergence * extension transverse*. Le produit de sa taille dans l'espace réciproque et dans l'espace réel est donc minimum. Ce mode possède donc l'extension spatiale la plus petite possible qui est l'analogie dans le domaine temporelle aux impulsions dites *Fourier Transform* correspondant aux plus courtes impulsions réalisables.

De plus, ce mode fondamental doit correspondre au mode dont la symétrie est la plus haute : la symétrie de rotation autour de l'axe de propagation z . Les coordonnées x et y sont donc équivalentes et on utilisera l'abréviation $r^2 = x^2 + y^2$. Après calcul, [53], on obtient :

$$\mathcal{E}(x, y, z) = \frac{1}{w(z)} e^{-\frac{r^2}{w(z)^2}} e^{i(kz + k \frac{r^2}{2R} + \psi(z))} \quad (3.11)$$

où plusieurs paramètres ont été introduits :

- w_0 correspond à la valeur de la largeur du faisceau à $z = 0$
- $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ est appelée longueur de Rayleigh et décrit la divergence du faisceau ;

- $w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2}$ représente la largeur du faisceau à z quelconque ;
- $R = z \left(1 + \frac{z}{z_R}\right)^2$ correspond à la courbure du front d'onde ;
- $\psi(z) = \arctan\left(\frac{z}{z_R}\right)$ est appelée la phase de Gouy et décrit le changement rapide de phase du champ électrique lorsqu'on se rapproche du point où la taille du faisceau est minimale, c'est à dire en $z = 0$.

Les quatre premiers paramètres sont indiqués sur la figure 3.1a. Ce mode de champ, donné par l'équation 3.11, est appelé le **mode fondamental Gaussien** car l'intensité correspondante :

$$|E|^2 = |\mathcal{E}(x, y, z)|^2 = \frac{1}{w^2} e^{-2\frac{r^2}{w(z)^2}} \quad (3.12)$$

montre un profil perpendiculaire à l'axe de propagation z de forme gaussienne (figure 3.1b).

On appelle aussi ce mode le mode symétrique ou mode TEM_{00} , TEM signifiant que le mode est transverse électrique et magnétique (\mathbf{E} et \mathbf{B} sont de direction perpendiculaire à la direction de propagation). On peut remarquer qu'à la limite du rayon de courbure infini on retrouve la formulation, mathématiquement très simple, de l'onde plane ; c'est pourquoi cette description de la lumière est largement utilisée pour expliquer de nombreux phénomènes.

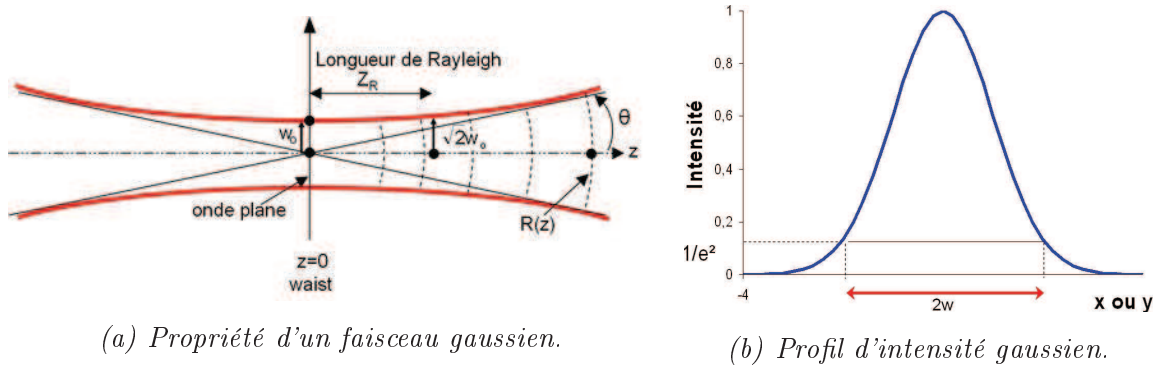


FIGURE 3.1 - Mode fondamental Gaussien

Pour déterminer les modes d'ordres supérieurs, on peut considérer que la symétrie des modes d'un laser est liée aux éléments tels que les fenêtres placées à l'angle de Brewster qui ne possèdent pas la symétrie de révolution autour de l'axe de propagation, dispositifs souvent présents dans les résonateurs optiques. Dans ce cas, la symétrie cylindrique est rompue. Le mode laser généré possède alors une symétrie rectangulaire dans le plan perpendiculaire à l'axe de propagation. Ces modes sont appelés TEM_{mn} car ils s'obtiennent en ajoutant une modulation de la forme $k_x^m k_y^n$ à l'amplitude $A(k_x, k_y)$ du champ électromagnétique. En intégrant ces caractéristiques on trouve que les solutions

de l'équation de Helmholtz se dérivent suivant des polynômes d'Hermite noté H_n définis par, [53] :

$$H_n = (-1)^n e^{\frac{x^2}{2}} \frac{d^n}{dx^n} e^{-\frac{x^2}{2}} \quad (3.13)$$

Ces solutions sont alors appelées modes d' **Hermite-Gauss** (HG) :

$$\mathcal{E}_{m,n}^{HG}(x, y, z) = \frac{\mathcal{E}_{0(n,m)}^{HG}}{w(z)} H_m \left(\sqrt{2} \frac{x}{w(z)} \right) H_n \left(\sqrt{2} \frac{y}{w(z)} \right) e^{-\frac{r^2}{w(z)^2}} e^{i\frac{kr^2}{2R}} e^{i(kz+\psi(z))} \quad (3.14)$$

Les faisceaux d'Hermite-Gauss forment une base complète des solutions de l'équation d'onde paraxiale. En prenant $\mathcal{E}_{0(n,m)}^{HG} = \sqrt{1/(2^n n!)} (2/\pi)^{(1/4)}$ comme facteur de normalisation et en raison de l'orthogonalité des polynômes de Hermite, les modes de HG sont orthonormaux (une fois intégrés suivant les variables transverses x et y) :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dx \int_{-\infty}^{+\infty} dy \mathcal{E}_{m,n}^{HG}(x, y, z) [\mathcal{E}_{o,p}^{HG}(x, y, z)]^* = \delta_{mo} \delta_{np} \quad (3.15)$$

La figure 3.2 montre l'intensité (c'est à dire le carré de la partie réelle des amplitudes) à $z = 0$ pour différentes valeurs de m et n . On retrouve pour $m = n = 0$ le mode gaussien possédant la symétrie de révolution.

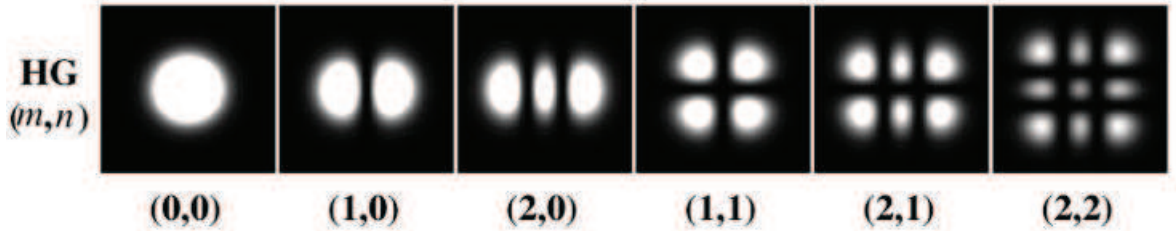


FIGURE 3.2 – Modes d'Hermite-Gauss décrits par leurs coefficients (m, n) .

Dans certaines cavités de laser à haute puissance il arrive que les modes dégénérés (de même fréquence) TEM_{01} et TEM_{10} oscillent en quadrature de phase simultanément, on obtient alors un faisceau en forme de *donut*, il s'agit d'un mode de **Laguerre-Gauss** (LG). Ce type de mode du champ électromagnétique correspond aux solutions de l'équation d'onde paraxiale (vérifiant l'approximation paraxiale) en coordonnées cylindriques. On obtient ces solutions en modulant l'amplitude de $\hat{A}(k_x, k_y)$ avec une fonction périodique de la variable angulaire [53] $\alpha = \arctan \left(\frac{k_y}{k_x} \right)$ telle que

$$k_x \pm ik_y = \sqrt{k_x^2 + k_y^2} e^{i\alpha} \quad (3.16)$$

L'amplitude des modes de Laguerre-Gauss noté $\mathcal{E}_{p,l}^{LG}$ s'écrit en coordonnées cylindriques :

$$\mathcal{E}_{l,p}^{LG}(r, \phi, z) = \frac{\mathcal{E}_{0(l,p)}^{LG}}{w(z)} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w(z)} \right)^{|l|} L_p^{|l|} \left(\frac{2r^2}{w(z)^2} \right) e^{-\frac{r^2}{w(z)^2}} e^{i\frac{kr^2}{2R}} e^{i(kz+l\phi-(2p+|l|+1)\psi(z))} \quad (3.17)$$

L_p^l est un polynôme de Laguerre généralisé dont l'expression est donnée par :

$$L_p^{|l|}(x) = \frac{x^{-|l|} e^x}{p!} \frac{d^p}{dx^p} (e^{-x} x^{p+|l|}) \quad (3.18)$$

et $\mathcal{E}_{0(l,p)}^{LG} = \sqrt{2^{|l|+1} p! / [\pi(p+|l|)!]}$ est le facteur de normalisation.

Remarquons que $L_0^{|l|} = 1$. L'expression d'un mode de LG $\mathcal{E}_{l,0}^{LG}$ a donc une forme un peu plus simple :

$$\mathcal{E}_{l,0}^{LG}(r, \phi, z) = \frac{\mathcal{E}_{0(l,0)}^{LG}}{w(z)} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w(z)} \right)^{|l|} e^{-\frac{r^2}{w(z)^2}} e^{i\frac{kr^2}{2R}} e^{i(kz+l\phi-(|l|+1)\psi(z))} \quad (3.19)$$

Les faisceaux de LG forment une base complète des solutions de l'équation d'onde paraxiale. Elle est orthonormale suivant les indices l et p lorsqu'on intègre le faisceau sur tout le plan (r, ϕ) :

$$\int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{+\infty} r dr \mathcal{E}_{p,l}^{LG}(r, \phi, z) [\mathcal{E}_{q,m}^{LG}(r, \phi, z)]^* = \delta_{pq} \delta_{lm} \quad (3.20)$$

La figure 3.3 montre différents modes de Laguerre-Gauss pour des valeurs différentes du couple (p, l) .

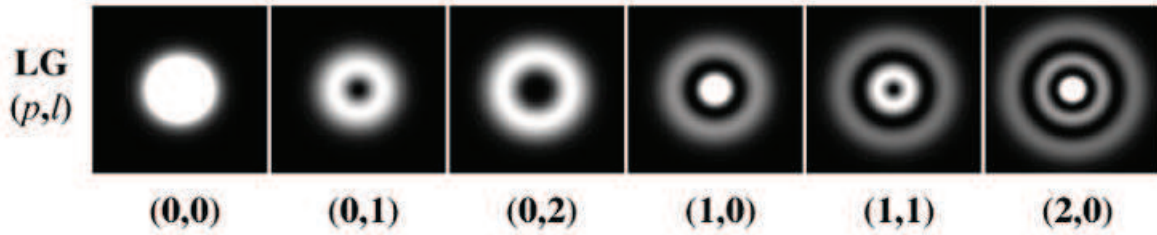


FIGURE 3.3 – Modes de Laguerre-Gauss décrit par leurs coefficients (p, l) .

3.1.3 Particularités des modes de Laguerre-Gauss

Nous allons à présent nous concentrer sur les modes de LG et leurs caractéristiques.

La figure 3.3 nous montre que la valeur de p est directement liée aux nombres d'anneaux noirs concentriques. De plus, l'équation 3.17 montre que leur amplitude dépend

de l'angle azimutal quantifié par le nombre l : la phase est modifiée tous les $2\pi l$ lorsqu'on se déplace autour de l'axe de propagation. On observe bien cette caractéristique sur la figure 3.4. La dernière colonne représente le profil d'interférence entre différents modes de LG et une onde « plane » en géométrie colinéaire lorsque les deux ondes qui interfèrent ont parcouru chacune le même chemin optique. L'intensité des interférences est constante lorsque la différence de phase est constante, or dans cette configuration celle-ci ne dépend que de la phase du faisceau de LG considéré. On observe ainsi directement la dépendance de la phase du mode de LG avec l'angle azimutal : pour $l = 1$ on a une simple hélice, pour $l = 2$ une double etc. ; le signe de l nous donne le sens de rotation de l'hélice et donc, la chiralité du mode.

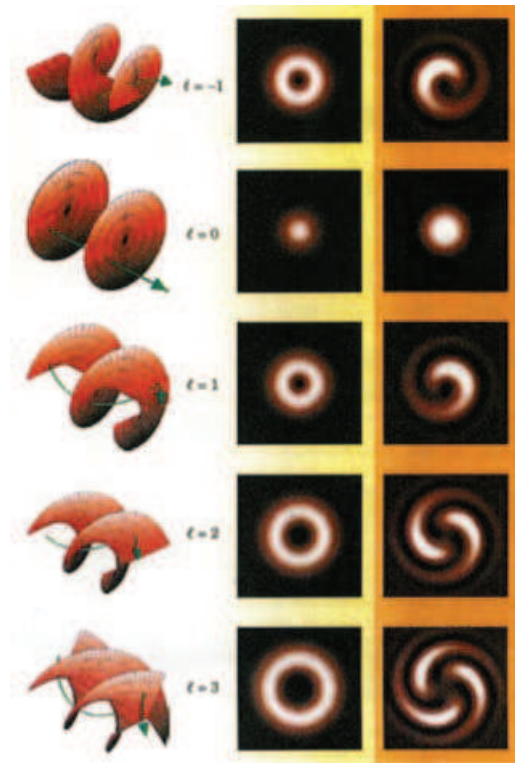


FIGURE 3.4 – La colonne de gauche représente le front d'onde, au centre le profil transverse d'intensité, et à droite le profil d'interférence entre chaque mode de LG considéré et une onde plane en géométrie colinéaire. Image tirée de [52].

La dépendance en $e^{il\phi}$ de l'amplitude des modes de LG ne lui confère pas uniquement des propriétés spatiales mais aussi des propriétés en terme d'énergie et de moment. En particulier ce type de mode possède un moment orbital angulaire noté L .

3.2 Le moment orbital angulaire

Les radiations électromagnétiques transportent en plus d'une énergie $E = \frac{hc}{\lambda}$ par photon, un moment composé d'une partie linéaire et d'une partie angulaire.

Les interactions entre rayonnement et matière étant inévitablement accompagnées d'un échange de moment, celui-ci se manifeste souvent par des effets mécaniques sur la matière. Ce sont ces effets qui ont permis de mettre en évidence et de déterminer le moment linéaire et angulaire de la lumière.

En effet, Kepler dût suggérer l'existence d'un moment linéaire de la lumière pour expliquer pourquoi les queues des comètes pointent dans la direction opposée au soleil. Les théories de Poynting de 1905 sur les champs électromagnétiques, notamment sur la pression de radiation et la densité de moment associée, puis d'Einstein en 1920 sur le rayonnement du corps noir, ont ensuite démontré que chaque photon devait posséder un moment linéaire, ou impulsion, de valeur $\mathbf{p} = \hbar\mathbf{k}$, avec $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ le nombre d'onde. Ce moment est à l'origine de la pression de radiation exercée par la lumière sur la matière qui est actuellement mis à profit pour piéger et refroidir des particules [52].

Poynting suggéra aussi que la lumière polarisée possédait un moment angulaire de spin S associé à la polarisation circulaire. Pour un seul photon S prend la valeur $\sigma\hbar$ avec $\sigma = \pm 1$ pour une lumière polarisée circulairement droite et gauche respectivement. Beth fût le premier à observer le moment angulaire de spin de la lumière vérifiant ainsi la théorie de Poynting. L'expérience de Beth, datant de 1936, est basée sur l'analogie mécanique du moment comme source d'un couple menant à la rotation d'un objet. Ainsi, si les photons polarisés circulairement possèdent un moment angulaire, ils devraient exercer un couple sur une lame biréfringente demi-onde, qui transforme une polarisation circulaire droite en gauche. L'expérience fût réalisée en éclairant avec une lumière polarisée une lame biréfringente $\lambda/2$ suspendue à une fine fibre de quartz. Beth mesura ainsi que pour N photons le ratio entre le moment angulaire et l'énergie ($W = N\hbar\omega$) est de $\pm 1/\omega$ [4].

Ce n'est seulement que 50 ans plus tard que l'idée de moment orbital angulaire apparût. En 1992, un groupe de l'université de Leiden (Pays-Bas) a montré qu'un faisceau lumineux dont la phase a une dépendance avec l'angle azimutal en $e^{il\phi}$, possède un moment angulaire indépendant de son état de polarisation [1]. Ce groupe montra alors, *via* les équations de Maxwell dans l'approximation paraxiale, que les modes de Laguerre-Gauss d'un laser ont un moment angulaire orbital de $l\hbar$ par photon, avec l entier positif ou négatif. La détection de ce moment par la mesure du couple exercé sur une paire de lentille cylindrique (modifiant le signe de l) en analogie avec l'expérience de Beth s'est avérée trop difficile à réaliser. Mais en utilisant des pinces optiques, des atomes peuvent être piégés, rendant possible l'observation du transfert de moment

angulaire de la lumière à la matière [27]. C'est ainsi que plusieurs expériences ont montré que le front d'onde hélicoïdal des modes de Laguerre-Gauss induit une rotation de la particule piégée autour de l'axe de propagation de la lumière [50]. La partie spin du moment angulaire provoque quant-à elle une rotation de la particule sur elle même.

Récemment les modes de LG ont aussi été utilisés dans des géométries de pinces optiques. En effet, un faisceau de LG focalisé possède un fort gradient de champ électrique en direction du centre de focalisation du faisceau, une particule diélectrique peut donc être piégée par ce gradient. Si la particule est en plus absorbante, il est possible d'observer un transfert de moment orbital. C'est dans cette configuration que Simpson *et al.* ont montré que le moment angulaire de spin de $\pm\hbar$ par photon associé à la lumière polarisée peut s'ajouter, ou se soustraire, au moment angulaire orbital donnant ainsi un moment angulaire totale $J = L + S$ [61]. La séparation de moment angulaire en deux parties totalement indépendantes ne se vérifie que dans le cadre de l'approximation paraxiale, sans quoi la polarisation et la charge du vortex d'un faisceau de LG sont intriquées [2].

Depuis la mise en évidence de ces propriétés, de nombreuses expériences ont mis à profit les effets mécaniques du moment orbital angulaire [27]. Ses effets optiques ont aussi été largement utilisés dans de nombreux processus non-linéaires. En utilisant un ensemble d'atomes froids, des atomes de césium par exemple, comme milieu non-linéaire, le stockage et la manipulation du moment angulaire orbital de la lumière a été démontré [47]. Dans ces expériences, deux faisceaux lumineux transportant un moment angulaire orbital excitent l'état fondamental des atomes de césium et créent une superposition cohérente d'états qui peut être vue comme un réseau d'indice. Un troisième faisceau, se propageant en sens inverse des deux autres mais ne possédant pas de moment angulaire orbital, se diffracte sur ce réseau ; le faisceau diffracté est alors une superposition des deux faisceaux incidents.

D'autres expériences ont montré que comme l'énergie ou le vecteur d'onde, le moment angulaire orbital est conservé lors d'un processus non-linéaire. Par exemple, l'utilisation de mode de Laguerre-Gauss $\mathcal{E}_{p,l}^{LG}$ dans un processus de doublage de fréquence a montré que le faisceau généré est caractérisé par un moment angulaire de charge $2l$ mais que son profil spatial n'était plus un mode de LG car le nombre p était modifié [14]. De la même manière la conservation du moment orbital angulaire a été observée dans des processus de « down-conversion » ou de mélange à quatre ondes [16] [46]. Toutes ces expériences indiquent donc que, comme toutes les autres propriétés intrinsèques de la lumière, le moment orbital angulaire obéit aux conditions d'accord de phase. Cependant, il n'a jamais, à notre connaissance, été établi de relation formelle décrivant explicitement les conditions d'accord de phase que doivent être respectées par les modes de Laguerre-Gauss. De plus, la réponse temporelle de ces processus non-linéaires n'a

jusqu'ici pas été exploitée.

Avant de détailler ces deux points, nous allons conclure cette partie en nous intéressant à la manière de produire et de caractériser ces modes bien particuliers de la lumière.

3.3 Génération et caractérisation de faisceaux de Laguerre-Gauss

Une des techniques de génération de ces modes particuliers est basée sur l'holographie qui permet d'obtenir des faisceaux de moment orbital angulaire bien précis.

Pour comprendre ce procédé il est essentiel d'étudier la somme cohérente d'un faisceau de Laguerre-Gauss et d'un faisceau de référence. Le motif d'interférence alors créé sert de masque, une fois imprimé sur une plaque photographique ou restitué numériquement par un SLM (*Spatial Light Modulator* ou modulateur spatial de lumière), dans le processus d'holographie. De plus, l'étude du motif d'interférence entre un mode de Laguerre-Gauss et un mode de Gauss est la meilleure méthode pour caractériser ce mode particulier, c'est à dire pour déterminer la charge de son moment orbital angulaire. En effet, on va retrouver la singularité de phase présente dans un mode de LG dans ce motif d'interférence.

3.3.1 Interférence entre deux faisceaux de Laguerre-Gauss

Considérons deux faisceaux de Laguerre-Gauss \mathbf{E}_a et \mathbf{E}_b se propageant suivant z_a et z_b respectivement. Les axes z_a et z_b sont séparés d'un angle 2θ comme indiqué sur la figure 3.5. Choisissons un repère commun, le repère (x, y, z) , et projetons les coordonnées de \mathbf{E}_a et \mathbf{E}_b sur ce repère.

Chaque repère (x_n, y_n, z_n) est muni d'un repère cylindrique (r_n, ϕ_n, z_n) comme indiqué sur la figure 3.6, tel que :

$$\begin{aligned}x_n &= r_n \cos \phi_n \\y_n &= r_n \sin \phi_n \\z_n &= z_n\end{aligned}\tag{3.21}$$

Le passage des coordonnées (x_a, y_a, z_a) aux coordonnées (x, y, z) se fait via une rotation d'un angle θ autour de l'axe y . On obtient alors :

$$\begin{aligned}x_a &= x \cos \theta + z \sin \theta \\y_a &= y \\z_a &= x \sin \theta - z \cos \theta\end{aligned}\tag{3.22}$$

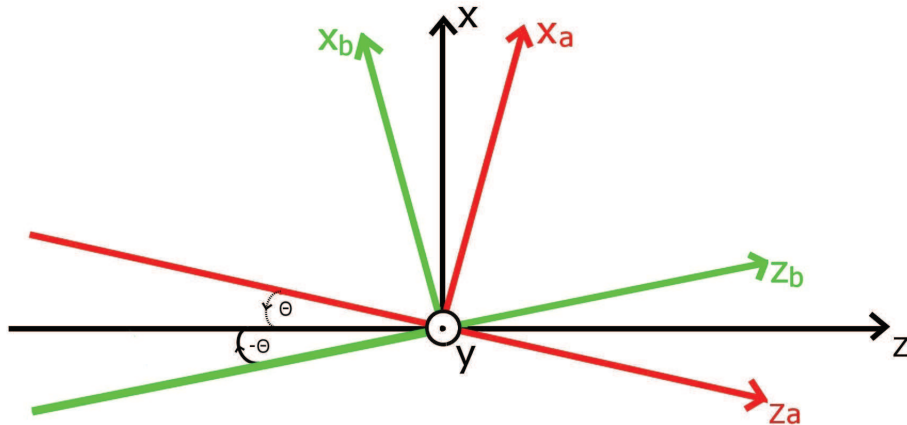
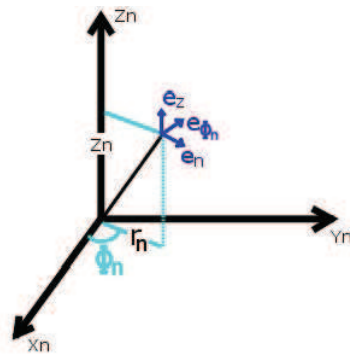


FIGURE 3.5 – Configuration et notation en géométrie non-colinéaire

FIGURE 3.6 – Chaque repère (x_n, y_n, z_n) est muni d'un repère cylindrique (r_n, ϕ_n, z_n) .

On peut ensuite les exprimer en fonction des coordonnées (r, ϕ, z) :

$$\begin{aligned} x_a &= r \cos \phi \cos \theta + z \sin \theta \\ y_a &= r \sin \phi \\ z_a &= r \cos \phi \sin \theta - z \cos \theta \end{aligned} \quad (3.23)$$

et enfin on peut écrire les coordonnées (r_a, ϕ_a, z_a) en fonction de (r, ϕ, z) :

$$\begin{aligned} r_a^2 &= r^2 \cos^2 \phi \cos^2 \theta + z^2 \sin^2 \theta + 2rz \cos \phi \cos \theta \sin \theta + r^2 \sin^2 \phi \\ \tan \phi_a &= \frac{r \sin \phi}{r \cos \phi \cos \theta + z \sin \theta} \\ z_a &= z \cos \theta - r \cos \phi \sin \theta \end{aligned} \quad (3.24)$$

On se place dans l'approximation paraxiale, c'est à dire qu'on suppose que l'angle θ est petit, on peut donc faire les approximations suivantes : $\cos \theta \approx 1$ et $\sin \theta \approx \theta$.

On se restreindra donc aux termes d'ordre 1 en θ . Les coordonnées de l'impulsion se simplifient en :

$$\begin{aligned} r_a^2 &= r^2 + 2\theta r z \cos \phi \\ \tan \phi_a &= \frac{r \sin \phi}{r \cos \phi + z\theta} \\ z_a &= z - r\theta \cos \phi \end{aligned} \quad (3.25)$$

De la même façon on peut exprimer les coordonnées (r_b, ϕ_b, z_b) en fonction de (r, ϕ, z) , en effectuant une rotation d'un angle $-\theta$ autour de l'axe y .

$$\begin{aligned} r_b^2 &= r^2 - 2\theta r z \cos \phi \\ \tan \phi_b &= \frac{r \sin \phi}{r \cos \phi - z\theta} \\ z_b &= z + r\theta \cos \phi \end{aligned} \quad (3.26)$$

Pour deux faisceaux \mathbf{E}_a et \mathbf{E}_b polarisés suivant \mathbf{e}_y de fonction d'onde $E_n = \mathcal{E}_n e^{i\varphi_n}$, l'intensité moyenne de la figure d'interférence formée par la superposition cohérente de ces deux ondes est donnée par :

$$\begin{aligned} I &= |E_a + E_b|^2 \\ &= |\mathcal{E}_a e^{i\varphi_a} + \mathcal{E}_b e^{i\varphi_b}|^2 \\ &= \mathcal{E}_a^2 + \mathcal{E}_b^2 + 2 \cos(\varphi_a - \varphi_b) \end{aligned} \quad (3.27)$$

Les franges correspondant à des interférences constructives satisfont la relation :

$$\Delta\varphi = \varphi_a - \varphi_b = 2\pi n$$

Dans le cas de deux faisceaux de Laguerre-Gauss, l'amplitude des champs électriques $\mathcal{E}_{0,l_a}(r_a, \phi_a, z_a)$ et $\mathcal{E}_{0,l_b}(r_b, \phi_b, z_b)$ a la forme suivante :

$$\mathcal{E}_{0,l_n}(r_n, \phi_n, z_n) = \mathcal{E}_0 e^{i\left(\frac{k_n r_n^2}{2R_n} - (l_n + 1) \arctan\left(\frac{z_n}{z_{Rn}}\right) + k_n z_n + l_n \phi_n\right)} \quad (3.28)$$

On fait l'hypothèse que les faisceaux (a) et (b) sont dégénérés en énergie de photon ($k_a = k_b$) et possèdent la même courbure de front d'onde et la même portée de Rayleigh ($R_a = R_b = R$ et $z_{Ra} = z_{Rb} = z_R$). De plus, on se place dans le cas où z est proche de zéro, on a alors $\arctan\left(\frac{z}{z_R}\right) \approx \frac{z}{z_R}$ et $\Phi_a \approx \Phi_b \approx \Phi$.

Calculons maintenant la différence de phase $\Delta\Phi$ et déterminons le profil d'interfé-

rence.

$$\begin{aligned}
\Delta\varphi &= \varphi_a - \varphi_b \\
&= \frac{k_a r_a^2}{2R} - (l_a + 1) \arctan\left(\frac{z_a}{z_R}\right) + k_a z_a + l_a \phi_a \\
&\quad - \frac{k_b r_b^2}{2R} + (l_b + 1) \arctan\left(\frac{z_b}{z_R}\right) - k_b z_b - l_b \phi_b \\
&= \frac{k}{2R} (r^2 + 2z\theta r \cos \Phi) - (l_a + 1) \frac{z - \theta r \cos \Phi}{z_R} + k(z - \theta r \cos \Phi) + l_a \Phi \\
&\quad - \frac{k}{2R} (r^2 - 2z\theta r \cos \Phi) + (l_b + 1) \frac{z + \theta r \cos \Phi}{z_R} - k(z + \theta r \cos \Phi) - l_b \Phi \\
&= \frac{k}{R} 2z\theta r \cos \Phi + (l_b - l_a) \frac{z}{z_R} - (l_a + l_b + 2) \frac{\theta r \cos \Phi}{z_R} + 2k\theta r \cos \phi + (l_a - l_b) \Phi \\
&= - \left(2k + \frac{l_a + l_b + 2}{z_R} \right) \theta x + (l_a - l_b) \arctan\left(\frac{y}{x}\right) + \varphi(z) \tag{3.29}
\end{aligned}$$

avec $\varphi(z) = \frac{k}{2R} (4z\theta r \cos \Phi) + (l_b - l_a) \frac{z}{z_R}$.

La figure d'interférence est calculée à z fixé. Le premier terme de $\varphi(z)$ est pour z constant, très lentement variable avec x : on pourra négliger sa contribution. Le terme $\varphi(z)$ n'est donc pas à prendre en compte dans le calcul de $\Delta\varphi$.

On peut remarquer que pour $l_a = l_b = 0$, on retrouve la différence de phase bien connue pour des ondes planes séparées d'un angle 2θ . Les franges d'interférences sont des lignes à $x = \text{constant}$ séparées entre elles d'une distance $\frac{\pi}{\theta}$ dans le plan $z = 0$.

Utilisons les variables réduites $x' = \frac{x}{\lambda}$ et $y' = \frac{y}{\lambda}$, la différence de marche $\Delta\varphi$ s'écrit alors :

$$\Delta\varphi = - \left(4\pi + (l_a + l_b + 2) \frac{\lambda}{z_R} \right) \theta x' + (l_a - l_b) \arctan\left(\frac{y'}{x'}\right) + \varphi(z) \tag{3.30}$$

Le terme $(l_a + l_b + 2) \frac{\lambda}{z_R}$ peut être estimé facilement. En effet, la portée de Rayleigh a pour expression $z_R = \pi \frac{w_0^2}{\lambda}$ avec $w_0 \approx 10 \mu\text{m}$, ainsi $\frac{\lambda}{z_R} = \pi w_0^2 \approx \pi \times 10^{-10}$ qui est négligeable devant 4π . Finalement, pour construire le motif d'interférences, il nous faut résoudre :

$$\begin{aligned}
\Delta\varphi &= 4\pi\theta x' + (l_a - l_b) \arctan\left(\frac{y'}{x'}\right) \\
&= 2\pi n \tag{3.31}
\end{aligned}$$

Il nous suffit donc de tracer la fonction $f(x', y') = \text{sign}[\cos(4\pi\theta x' + (l_a - l_b) \arctan(\frac{y'}{x'}))]$ qui nous donnera la valeur de $+1$ lorsque l'argument du cosinus vaut $0 \text{ modulo } 2\pi$ et -1 si celui-ci vaut $-\frac{\pi}{2} \text{ modulo } 2\pi$. On obtient alors un profil d'interférence, donné figure 3.7, qui possède une fourche située en $(x' = 0, y' = 0)$. On compte un nombre de franges différent pour $y' < 0$ et pour $y' > 0$, ici la différence fait 1 ce qui correspond à la valeur de $l_a - l_b$.

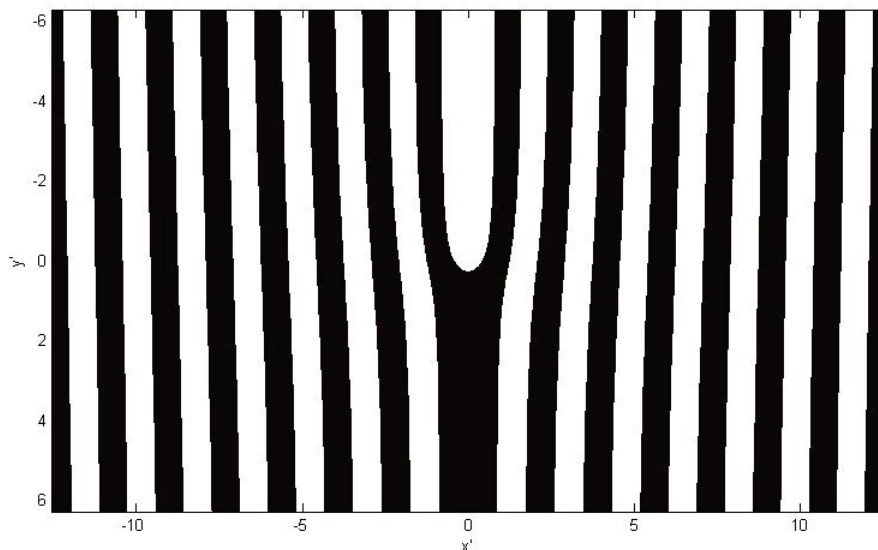


FIGURE 3.7 – Figure d'interférence entre deux faisceaux de LG. La figure montre le tracé de la fonction $f(x', y') = \text{sign}[\cos(4\pi\theta x' + (l_a - l_b) \arctan(\frac{y'}{x'}))]$ avec $l_a = 2$, $l_b = 1$ et $\theta = 0.3$

3.3.2 Caractérisation des modes de Laguerre-Gauss

Nous venons de voir que le profil d'interférence entre deux faisceaux de LG (noté \mathbf{E}_a et \mathbf{E}_b , supposés co-polarisés) nous renseigne sur la différence de charge de leur moment angulaire orbital. Cela constitue donc un bon moyen de déterminer la charge l_a d'un mode de LG en utilisant pour E_b un faisceau de charge $l_b = 0$, c'est à dire un mode gaussien. La figure 3.8 montre comment dans des cas plus compliqués, on peut déterminer la valeur de l_a . Il suffit de compter le nombre de dents de la fourche qui se forme alors, ce nombre moins un est la valeur de la charge du moment orbital angulaire l_a [18].

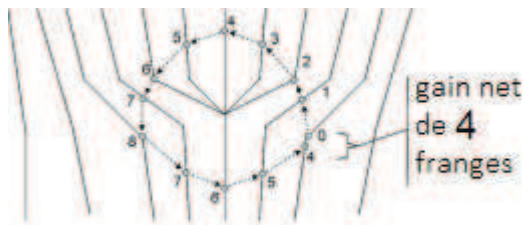


FIGURE 3.8 – Comment reconnaître la charge d'une fourche : nombre de dents de la fourche moins 1. Image tirée de [18].

3.3.3 Génération de modes de Laguerre-Gauss

Nous allons conclure cette partie avec la description des différentes méthodes de génération de faisceaux de Laguerre-Gauss. Il s'agit d'induire une singularité de phase, c'est à dire de générer un front d'onde hélicoïdal à partir d'un front d'onde plan (ou sphérique). Ces différentes méthodes sont très dépendantes des technologies disponibles.

Nous avons déjà mentionné au début de ce chapitre que de tels modes pouvaient être générés spontanément dans des cavités lasers de hautes puissances : par exemple le mode $\mathcal{E}_{0,1}^{LG}$ apparaît lorsque les modes de Hermite-Gauss TEM_{01} et TEM_{10} oscillent en quadrature de phase simultanément dans la cavité. En se basant sur cette observation, un groupe de Leiden [52] a créé une technique analogique basée sur des lentilles cylindriques qui permet de transformer des modes de HG, dépourvus de moment orbital angulaire, en mode de LG, possédant un moment bien défini de $l\hbar$ par photons, figure 3.9. Ce procédé est basé sur le changement de la phase de Gouy dans la zone où le faisceau est elliptiquement focalisé (grâce aux lentilles cylindriques) pour transformer des modes de Hermite-Gauss d'ordre élevés $\mathcal{E}_{m,n}^{HG}$ en leurs modes de Laguerre-Gauss $\mathcal{E}_{p,l}^{LG}$ correspondants tels que $l = |m - n|$ et $p = \min(m, n)$.

Cependant, même si ce « convertisseur de mode » est très efficace, on constate que pour chaque mode de LG souhaité, il est nécessaire d'avoir un mode de HG initial bien particulier. Cette nécessité limite donc le nombre de mode de LG que l'on peut produire.

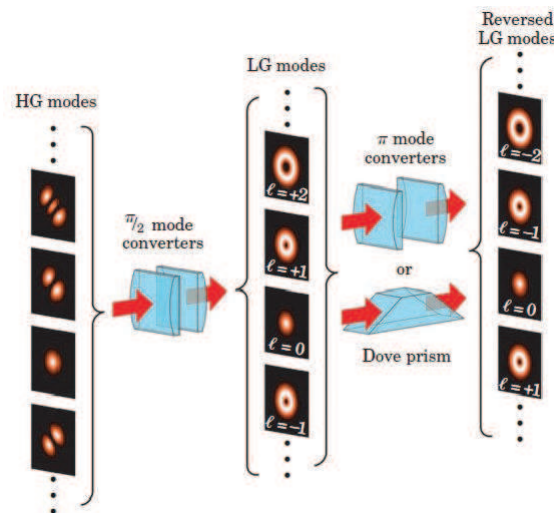


FIGURE 3.9 – Une paire de lentille cylindrique peuvent être utilisées pour convertir un mode de Hermite-Gauss (HG) en un mode de Laguerre-Gauss (LG). Comme la même paires de lentilles peut servir pour plusieurs modes de HG, une large gamme de mode de LG peut être créée. En augmentant la séparation entre les deux lentilles cylindriques on peut inverser le signe du moment orbital angulaire du mode de LG alors généré. Image extraite de [52].

Ainsi, pour créer des faisceaux de front d'onde hélicoïdal la méthode la plus répandue et la plus pratique est basée sur l'utilisation d'hologrammes. Comme nous l'avons dit précédemment, un motif d'interférence développé (et réduit) sur plaque photographique peut être utilisé comme un hologramme. Cette méthode analogique a été maintenant remplacée par une méthode numérique. Nous connaissons en effet la forme mathématique de la figure d'interférence entre un mode de LG et une onde plane. Il est donc possible de la calculer, de la simuler sur un SLM (*Spatial Light Modulator*) qui peut alors être utilisé comme un réseau de diffraction. La reconstruction holographique consiste ensuite simplement à envoyer un faisceau d'ordre zéro (un mode gaussien) sur un réseau possédant une fourche, voir figure 3.10. La charge de cette fourche (c'est à dire son nombre de dents moins un) correspondra alors à la charge du moment orbital angulaire du faisceau de Laguerre-Gauss qui sera généré à l'ordre (1) de diffraction du réseau [28].

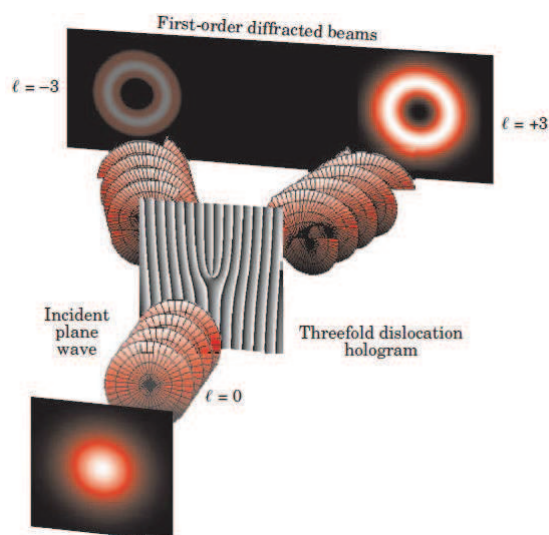


FIGURE 3.10 – Un hologramme peut produire un faisceau de front d'onde hélicoïdale possédant un moment orbital angulaire de charge $l\hbar$ par photon. L'hologramme approprié peut être calculé, ou il peut être généré à partir du motif des interférences entre un faisceau possédant la forme spatiale désirée et une onde plane. Le motif d'holographie ainsi obtenu est comparable à un réseau de diffraction mais possède une dislocation de charge l sur l'axe optique (ici il y a une dislocation de 3). Lorsque l'hologramme est éclairé avec une onde plane, le premier ordre de diffraction possède le front d'onde hélicoïdal souhaité. Image extraite de [52].

Il existe encore une autre méthode très pratique, mais un peu plus coûteuse, pour générer des modes de LG de charge bien définie : l'utilisation de masques de phase en spirale [3]. Ces masques sont réalisés dans un matériau d'indice de réfraction n et leur épaisseur varie avec l'angle azimutal. Ils introduisent donc une modification de la

phase en fonction de l'angle azimutal comme l'indique la figure 3.11. Lorsqu'une onde plane passe à travers ce masque de phase, elle subit une modification de sa phase $\Delta\phi$ qui dépend de l'épaisseur x traversée :

$$\Delta\phi = \frac{2\pi(n-1)x}{\lambda}. \quad (3.32)$$

Afin d'obtenir un mode $\mathcal{E}_{0,l}^{LG}$ il faut que sur un tour on ait :

$$\Delta\phi_{tot} = 2\pi l, \quad (3.33)$$

on trouve ainsi l'épaisseur s maximale du masque en fonction de la charge du mode de LG souhaité :

$$s = \frac{l\lambda}{n-1}. \quad (3.34)$$

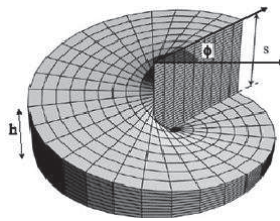


FIGURE 3.11 – Masque de phase en spirale d'indice de réfraction n . L'épaisseur du masque de phase h est proportionnelle à la position azimutale décrite par l'angle Φ tel que la hauteur totale $s = \frac{l\lambda}{n-1}$. Image extraite de [43].

La dépendance de l'épaisseur s avec la longueur d'onde impose d'utiliser un masque spécifique à la longueur d'onde centrale du faisceau lumineux utilisé.

Chapitre 4

Équations de Bloch et modes de Laguerre-Gauss

Les équations de Bloch permettent de décrire théoriquement les évolutions temporelles des populations et des cohérences électroniques lors d'une interaction lumière matière *via* des processus non-linéaires. Dans la section 1.3 nous avons développé ces équations jusqu'à l'ordre 3 dans le cas d'une interaction entre un système à deux niveaux, correspondant à une approximation des niveaux d'énergie des semi-conducteurs étudiés, et des ondes planes. Mais cette description trop simple des champs électromagnétiques ne permet pas de prendre en compte la forme spatiale des impulsions. Or, dans les expériences d'optique non-linéaire les faisceaux sont fortement focalisés et de nombreux phénomènes (tels que la saturation) modifient de manière importante leurs formes spatiales. Il paraît donc essentiel de développer les équations de Bloch dans une autre base que celle des ondes planes. Nous allons effectuer ici un développement en modes de Laguerre-Gauss.

En effet, les modes de Laguerre-Gauss forment une base complète des solutions de l'équation d'onde paraxiale et possède une symétrie de révolution autour de leur axe de propagation, propriété commune à tous les faisceaux. Ainsi, chaque faisceau gaussien modifié par un phénomène de saturation, par exemple, pourra s'exprimer comme une somme de modes de LG.

Dans cette partie, nous allons exprimer la moyenne de l'opérateur dipolaire par des modes de Laguerre-Gauss et mettre alors en évidence l'importance de la forme spatiale des impulsions excitatrices sur celle des signaux générés.

4.1 Expression de la polarisation du troisième ordre

Nous considérons trois impulsions colinéaires (a), (b), (c) de même fréquence centrale ω et donc de même vecteur d'onde \mathbf{k} . L'impulsion numéro (n), arrivant à l'instant τ_n , telle $\tau_c \geq \tau_b \geq \tau_a$, d'enveloppe complexe $\mathcal{E}_n(\mathbf{r}, t - \tau_n)$, de phase à l'origine φ_n , et de polarisation (linéaire pour simplifier) $\underline{\mathbf{e}}_n$ s'écrit sous la forme suivante :

$$\mathbf{E}_n(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_n(\mathbf{r}, t - \tau_n) e^{-i(\omega(t-\tau_n) - \mathbf{k} \cdot \mathbf{z} + \varphi_n)} \underline{\mathbf{e}}_n + C.C. \quad (4.1)$$

L'enveloppe complexe de chaque impulsion se décompose en une enveloppe temporelle $\mathcal{E}_{0,n}(t - \tau_n)$ et un profil spatial $u_n(\mathbf{r})$ décrit par un mode de Laguerre-Gauss :

$$\mathcal{E}_n(\mathbf{r}, t - \tau_n) = \mathcal{E}_{0,n}(t - \tau_n) u_n(\mathbf{r}) \quad (4.2)$$

avec en coordonnées cylindriques :

$$u_n(r, \phi, z) = \frac{\mathcal{E}_{0(l_n, p_n)}^{LG}}{w_n(z)} e^{il_n \phi} e^{\frac{ikr^2}{2R_n}} e^{-i(2p_n + |l_n| + 1) \arctan\left(\frac{z}{z_{R_n}}\right)} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_n}\right)^{|l_n|} L_{p_n}^{|l_n|}\left(\frac{2r^2}{w_n^2}\right) e^{-\frac{r^2}{w_n^2}} \quad (4.3)$$

avec $L_{p_n}^{|l_n|}$ un polynôme de Laguerre généralisé, l_n étant une valeur entière algébrique positive ou négative et p_n une valeur entière positive.

Pour chacune des impulsions (a), (b) et (c) nous choisirons $p_n = 0$, nous donnant $L_0^{(l_n)} = 1$.

Rappelons la signification et l'expression des différents paramètres utilisés pour chaque impulsion n :

- R_n est le rayon de courbure du front d'onde à la position z tel que $R_n = z \left(1 + \frac{z_{R_n}}{z}\right)^2$;
- z_{R_n} est la portée de Rayleigh (ou profondeur de champ) telle que $z_{R_n} = \frac{\pi w_{0(n)}^2}{\lambda}$;
- $w_{0(n)}$ la largeur du faisceau (ou "waist") à $z = 0$ et w_n la largeur du faisceau à la position z telle que $w_n = w_{0(n)} \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_{R_n}}\right)^2}$;
- l_n est la charge du moment orbital angulaire du mode de LG considéré ;
- $\mathcal{E}_{0(l_n, p_n)}^{LG} = \sqrt{2^{|l_n|+1} p! / [\pi(p_n + |l_n|)!]}$ est le facteur de normalisation.

Dans le cas d'impulsions de même polarisation et dans le cas le plus simple où la durée des impulsions est plus courte que le temps de cohérence de la transition du système à deux niveaux considéré, $\mathcal{E}_{0,n}(t - \tau_n) \approx \delta(t - \tau_n)$ et la polarisation à l'ordre

trois s'écrit (expression directement dérivée de 1.41) :

$$\begin{aligned}
P_{NL}^{(3)} &= \langle \hat{\mu}^{(3)} \rangle (\mathbf{r}, t) \\
&= Tr (\hat{\rho}^{(3)} \hat{\mu}) \\
&= -\frac{i}{\hbar^3} |\mu_{10}|^4 \theta(t - \tau_c) \theta(\tau_c - \tau_b) \theta(\tau_b - \tau_a) e^{-\frac{(t-\tau_c)}{T_2}} e^{-i\omega_{10}(t-\tau_c)} e^{-\frac{(\tau_c-\tau_b)}{T_1}} \\
&\quad e^{-\frac{(\tau_b-\tau_a)}{T_2}} (u_c(\mathbf{r}) u_b(\mathbf{r}) u_a^*(\mathbf{r}) e^{i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a)+k.z+\varphi_c+\varphi_b-\varphi_a)} \\
&\quad + u_c(\mathbf{r}) u_b^*(\mathbf{r}) u_a(\mathbf{r}) e^{-i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a)-k.z+\varphi_c-\varphi_b+\varphi_a)}) + C.C.
\end{aligned} \tag{4.4}$$

avec T_1 le temps de décroissance des populations tel que

$$\frac{1}{T_1} = \frac{(\Gamma_{1\leftarrow 0} + \Gamma_{0\leftarrow 1})}{\hbar} \tag{4.5}$$

et T_2 le temps de relaxation des cohérences (ou temps de déphasage) tel que

$$\frac{1}{T_2} = \frac{\Gamma_{10}}{\hbar}. \tag{4.6}$$

Puis en exprimant chaque profile spatiale $u_n(\mathbf{r})$ par des modes de LG avec $p_n = 0$, on obtient :

$$\begin{aligned}
P_{NL}^{(3)} &= \langle \hat{\mu}^{(3)} \rangle (\mathbf{r}, t) \\
&= Tr (\hat{\rho}^{(3)} \hat{\mu}) \\
&= -\frac{i}{\hbar^3} |\mu_{10}|^4 \theta(t - \tau_c) \theta(\tau_c - \tau_b) \theta(\tau_b - \tau_a) e^{-\frac{(t-\tau_c)}{T_2}} e^{-i\omega_{10}(t-\tau_c)} e^{-\frac{(\tau_c-\tau_b)}{T_1}} e^{-\frac{(\tau_b-\tau_a)}{T_2}} \\
&\quad \frac{\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG}}{w_a(z)} \frac{\mathcal{E}_{0(l_b,0)}^{LG}}{w_b(z)} \frac{\mathcal{E}_{0(l_c,0)}^{LG}}{w_c(z)} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_a} \right)^{|l_a|} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_b} \right)^{|l_b|} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_c} \right)^{|l_c|} e^{-r^2 \left(\frac{1}{w_a^2} + \frac{1}{w_b^2} + \frac{1}{w_c^2} \right)} \\
&\quad \left[e^{ir^2 \left(\frac{k}{2R_c} + \frac{k}{2R_b} - \frac{k}{2R_a} \right)} e^{-i \left((|l_c|+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(c)}} \right) + (|l_b|+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(b)}} \right) - (|l_a|+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(a)}} \right) \right)} \right. \\
&\quad e^{i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a) + (l_c+l_b-l_a)\phi + k.z - \varphi_c - \varphi_b + \varphi_a)} \\
&\quad \left. + e^{ir^2 \left(\frac{k}{2R_c} - \frac{k}{2R_b} + \frac{k}{2R_a} \right)} e^{-i \left((|l_c|+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(c)}} \right) - (|l_b|+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(b)}} \right) + (|l_a|+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(a)}} \right) \right)} \right. \\
&\quad \left. e^{-i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a) - (l_c-l_b+l_a)\phi - k.z + \varphi_c - \varphi_b + \varphi_a)} \right] \\
&\quad + C.C.
\end{aligned} \tag{4.7}$$

Cette formule (4.7) nous donne déjà la dynamique temporelle quelque soit la forme des faisceaux : le signal (c'est à dire l'intensité) du troisième ordre généré décroît, en fonction du retard $\tau_b - \tau_a$, avec une constante de temps $\frac{T_2}{2}$ et en fonction du retard $\tau_c - \tau_b$, avec une constante de temps $\frac{T_1}{2}$.

On constate qu'à partir des populations générées à l'ordre (2) par les impulsions (a) et (b), l'impulsion (c) génère des polarisations caractérisées par deux valeurs de

leur moment orbital angulaire(MOA) : $l_c - (l_b - l_a)$ et $l_c + (l_b - l_a)$. Ce résultat peut être interprété en terme de réseau induit : l'interférence entre les deux premières impulsions (a) et (b) crée un réseau induit caractérisé par une hélice de charge $l_b - l_a$ (voir 3.1.3) qui se comporte alors comme un masque de phase sur lequel se diffracte ensuite la troisième impulsion (c). Ainsi, on peut facilement transposer ce résultat à une géométrie non colinéaire, à condition que les faisceaux restent peu écarté de l'axe optique. Le motif d'interférences créé par les deux premières impulsions en géométrie non-colinéaire possèdera une fourche avec un nombre de dents égale à $|l_b - l_a| + 1$. Ce motif sera vu comme un hologramme pour l'impulsion (c) ; celle-ci se diffracte alors sur cet hologramme (voir figure 3.10) donnant à l'ordre (+1) de diffraction un faisceau tel que $l = l_c + (l_b - l_a)$ et à l'ordre (-1) un faisceau de charge $l = l_c - (l_b - l_a)$. De plus, les conditions d'accords de phase en géométrie non-colinéaire ajoutent un facteur de phase $e^{i(\mathbf{k}_c \pm (\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a)) \cdot \mathbf{r}}$ qui devrait apparaitre dans les deux termes de l'équation 4.7 ($\mathbf{k}_c + (\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a)$ dans le premier terme de 4.7 et $\mathbf{k}_c - (\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a)$ dans le deuxième). La cas de la géométrie non-colinéaire se comprend donc aisément à partir du cas colinéaire.

4.2 Expression simple du signal généré par la polarisation du troisième ordre : conservation du moment orbital angulaire

Dans un échantillon macroscopique, chaque dipôle génère une polarisation à l'ordre trois. Pour calculer le champ généré $\mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t)$ nous devons donc sommer les contributions de chaque dipôle sur l'ensemble de l'échantillon excité par les trois faisceaux incidents. On suppose que l'échantillon est homogène, infini dans les directions \mathbf{x} et \mathbf{y} , et qu'il a une épaisseur finie d .

De plus, nous voulons exprimer ce champ en terme de mode de LG. Ainsi,

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) = & \frac{1}{w_s(z)} e^{\frac{ik_s r^2}{2R_s}} e^{\frac{r^2}{w_s^2}} \sum_{p_s, l_s} C_{p_s}^{l_s}(t) e^{-i(2p_s + |l_s| + 1) \arctan\left(\frac{z}{z_{R_s}}\right)} \\ & \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_s}\right)^{|l_s|} L_{p_s}^{|l_s|}\left(\frac{2r^2}{w_s^2}\right) e^{i(k_s \cdot z + l_s \phi)} \underline{\mathbf{e}}_n + C.C. \end{aligned} \quad (4.8)$$

où les $C_{p_s}^{l_s}(t)$ correspondent à la projection de la moyenne du moment dipolaire à l'ordre trois sur la base des modes de LG :

$$C_{p_s}^{l_s}(t) = \int_{r=0}^{+\infty} \int_{\phi=0}^{2\pi} \int_{z=-\frac{d}{2}}^{\frac{d}{2}} \langle \hat{\mu}^{(3)} \rangle(\mathbf{r}, t) \mathcal{E}_s^*(\mathbf{r}) dr r d\theta dz \quad (4.9)$$

avec $\mathcal{E}_s(\mathbf{r})$ donnée par

$$\mathcal{E}_s(\mathbf{r}) = u_s(\mathbf{r}) e^{ik_s \cdot z} \quad (4.10)$$

et avec $u_s(\mathbf{r})$ donn  par 4.3.

Donc,

$$\begin{aligned}
 C_{p_s}^{l_s}(t) = & A(t) \int_{r=0}^{+\infty} \int_{\phi=0}^{2\pi} \int_{z=-\frac{d}{2}}^{\frac{d}{2}} \sum_{p_s, l_s} L_{p_s}^{|l_s|} \left(\frac{2r^2}{w_s^2} \right) e^{-r^2 \left(\frac{1}{w_a^2} + \frac{1}{w_b^2} + \frac{1}{w_c^2} + \frac{1}{w_s^2} \right)} \\
 & \frac{\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG}}{w_a(z)} \frac{\mathcal{E}_{0(l_b,0)}^{LG}}{w_b(z)} \frac{\mathcal{E}_{0(l_c,0)}^{LG}}{w_c(z)} \frac{\mathcal{E}_{0(l_s,p_s)}^{LG}}{w_s(z)} \\
 & \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_a} \right)^{|l_a|} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_b} \right)^{|l_b|} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_c} \right)^{|l_c|} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_s} \right)^{|l_s|} \\
 & \left[e^{ir^2 \left(-\frac{k_s}{2R_s} + \frac{k}{2R_c} + \frac{k}{2R_b} - \frac{k}{2R_a} \right)} \right. \\
 & e^{-i \left(-(l_s+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(s)}} \right) + (l_c+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(c)}} \right) + (l_b+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(b)}} \right) - (l_a+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(a)}} \right) \right)} \\
 & e^{i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + (k - k_s).z + (l_c + l_b - l_a - l_s)\phi + \varphi)} \\
 & + e^{ir^2 \left(-\frac{k_s}{2R_s} + \frac{k}{2R_c} - \frac{k}{2R_b} + \frac{k}{2R_a} \right)} \\
 & e^{-i \left(-(l_s+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(s)}} \right) + (l_c+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(c)}} \right) - (l_b+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(b)}} \right) + (l_a+1) \arctan \left(\frac{z}{z_{R(a)}} \right) \right)} \\
 & \left. e^{-i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) - (k - k_s).z - (l_c - l_b + l_a - l_s)\phi + \varphi')} \right] dr r d\phi dz \\
 & + C.C. \tag{4.11}
 \end{aligned}$$

avec $A(t) = -\frac{i}{\hbar^3} |\mu_{10}|^4 \theta(t - \tau_c) \theta(\tau_c - \tau_b) \theta(\tau_b - \tau_a) e^{-\frac{(t-\tau_c)}{T_2}} e^{-i\omega_{10}(t-\tau_c)} e^{-\frac{(\tau_b-\tau_a)}{T_2}} e^{-\frac{(\tau_c-\tau_b)}{T_1}}$,
 $\varphi = \varphi_c + \varphi_b - \varphi_a$ et $\varphi' = \varphi_c - \varphi_b + \varphi_a$

Pour calculer les coefficients $C_{p_s}^{l_s}(t)$ il nous suffit de consid rer les champs apparaissant dans $\langle \hat{\mu}^{(3)} \rangle(\mathbf{r}, t)$ en $z = 0$. En effet, la forme globale d'un faisceau gaussien ne change pas durant la propagation (seulement le waist du faisceau  volue, mais le faisceau reste toujours gaussien !). Ainsi la d composition du champ  mit sur la base des modes de LG dans le plan $z = 0$ sera conserv e et le profil obtenu en $z = 0$ donnera par cons quent la forme du champ propagatif  mit.

Dans ce cas, $R_a = R_b = R_c = R_s = 0$ et $e^{\left[ir^2 \left(\frac{k_a}{2R_a} + \frac{k_b}{2R_b} + \frac{k_c}{2R_c} + \frac{k_s}{2R_s} \right) \right]} \simeq 1$ et le calcul des coefficients $C_{p_s}^{l_s}(t)$ se simplifie en :

$$\begin{aligned}
 C_{p_s}^{l_s}(t) = & \int_{r=0}^{+\infty} \int_{\phi=0}^{2\pi} A(t) \left(u_s^*(r, \phi).u_c(r, \phi).u_b(r, \phi).u_a^*(r, \phi) e^{i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + \varphi)} \right. \\
 & \left. + u_s^*(r, \phi).u_c(r, \phi).u_b^*(r, \phi).u_a(r, \phi) e^{-i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + \varphi')} \right) dr r d\phi \\
 & + C.C. \tag{4.12}
 \end{aligned}$$

Nous supposons ici que $w_{0(a)} = w_{0(b)} = w_{0(c)}$.

De plus, la conservation de l' nergie nous donne :

$$k_s = k \tag{4.13}$$

Le premier terme de $C_{p_s}^{l_s}(t)$ (le deuxième en découle simplement en inversant a et b) s'écrit alors en $z = 0$:

$$\begin{aligned}
C(1)_{p_s}^{l_s}(t) &= A(t)e^{i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + \varphi)} \int_{r=0}^{+\infty} \int_{\phi=0}^{2\pi} u_s^*(r, \phi) \cdot u_c(r, \phi) u_b(r, \phi) \cdot u_a^*(r, \phi) dr r d\phi \\
&= A(t)e^{i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + \varphi)} \int_{r=0}^{+\infty} \int_{\phi=0}^{2\pi} \frac{\mathcal{E}_{0(l_s, p_s)}^{LG}}{w_{0(s)}} e^{-il_s \phi} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_{0(s)}} \right)^{|l_s|} L_{p_s}^{|l_s|} \left(\frac{2r^2}{w_{0(s)}^2} \right) e^{-\frac{r^2}{w_{0(s)}^2}} \\
&\quad \frac{\mathcal{E}_{0(l_c, 0)}^{LG}}{w_0} e^{il_c \phi} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_0} \right)^{|l_c|} e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} \frac{\mathcal{E}_{0(l_b, 0)}^{LG}}{w_0} e^{il_b \phi} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_0} \right)^{|l_b|} e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} \\
&\quad \frac{\mathcal{E}_{0(l_a, 0)}^{LG}}{w_0} e^{-il_a \phi} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_0} \right)^{|l_a|} e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} dr r d\phi \\
&= A(t)e^{i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + \varphi)} \frac{\mathcal{E}_{0(l_a, 0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_b, 0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_c, 0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_s, p_s)}^{LG}}{w_{0(s)}} \\
&\quad \int_{\phi=0}^{2\pi} e^{-i(l_s - l_c - l_b + l_a)\phi} d\phi \\
&\quad \int_{r=0}^{+\infty} L_{p_s}^{(l_s)} \left(\frac{2r^2}{w_{0(s)}^2} \right) \cdot \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_{0(s)}} \right)^{|l_s|} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_0} \right)^{|l_a| + |l_b| + |l_c|} e^{-\frac{r^2}{w_{0(s)}^2}} e^{-3\frac{r^2}{w_0^2}} r dr \quad (4.14)
\end{aligned}$$

En choisissant la base des fonctions telle que

$$\frac{1}{w_{0(s)}^2} = \frac{3}{w_0^2} \quad (4.15)$$

on obtient :

$$\begin{aligned}
C(1)_{p_s}^{l_s}(t) &= A(t)e^{i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + \varphi)} \frac{\mathcal{E}_{0(l_a, 0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_b, 0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_c, 0)}^{LG}}{w_0} \frac{\sqrt{3}\mathcal{E}_{0(l_s, p_s)}^{LG}}{w_0} \\
&\quad \int_{\phi=0}^{2\pi} e^{-i(l_s - l_c - l_b + l_a)\phi} d\phi \\
&\quad \int_{r=0}^{+\infty} L_{p_s}^{|l_s|} \left(\frac{6r^2}{w_0^2} \right) \cdot \left(\frac{r\sqrt{6}}{w_0} \right)^{|l_s|} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_0} \right)^{|l_a| + |l_b| + |l_c|} e^{-\frac{6r^2}{w_0^2}} r dr \quad (4.16)
\end{aligned}$$

L'intégrale sur ϕ se calcule immédiatement :

$$\int_{\phi=0}^{2\pi} e^{-i(l_s - l_c - l_b + l_a)\phi} d\phi = \delta(l_s - (l_c + l_b - l_a)) \quad (4.17)$$

et le deuxième terme donnerait de façon évidente :

$$\int_{\phi=0}^{2\pi} e^{-i(l_s - l_c + l_b - l_a)\phi} d\phi = \delta(l_s - (l_c + l_a - l_b)) \quad (4.18)$$

Notre calcul montre que la charge du moment angulaire du signal g n r  a deux valeurs possibles $l_s = l_c \pm (l_b - l_a)$. Il y a donc une conservation du moment orbital angulaire lors d'un processus non-lin aire du troisi me ordre. Les conditions d'accords de phase dans de tels processus avec des faisceaux de Laguerre-Gauss ne s'expriment non pas seulement en terme de vecteur d'onde (comme c'est le cas lorsque l'on consid re des ondes planes, voir 1.3) mais aussi en terme de moment angulaire orbitale.

Il nous reste maintenant   calculer l'int grale sur r :

$$\begin{aligned}
 C(1)_{p_s}^{l_s}(t) &= A(t)e^{i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + \varphi)} \frac{\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_b,0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_c,0)}^{LG}}{w_0} \frac{\sqrt{3}\mathcal{E}_{0(l_s,p_s)}^{LG}}{w_0} \\
 &\quad \delta(l_s - (l_c + l_b - l_a)) \\
 &\quad \int_{r=0}^{+\infty} L_{p_s}^{|l_s|} \left(\frac{6r^2}{w_0^2} \right) \left(\frac{r\sqrt{2}}{w_0} \right)^L \left(\frac{r\sqrt{6}}{w_0} \right)^{|l_s|} e^{-6\frac{r^2}{w_0^2}} r dr \quad (4.19)
 \end{aligned}$$

avec $L = |l_a| + |l_b| + |l_c|$.

En posant $X = \frac{6r^2}{w_0^2}$, on a ([23] *formule 11 section 7.414 p.845*, dont les conditions sont v rifi es) :

$$\begin{aligned}
 C(1)_{p_s}^{l_s}(t) &= A(t)e^{i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + \varphi)} \frac{\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_b,0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_c,0)}^{LG}}{w_0} \frac{\sqrt{3}\mathcal{E}_{0(l_s,p_s)}^{LG}}{w_0} \\
 &\quad \delta(l_s - (l_c + l_b - l_a)) \\
 &\quad \frac{w_0^2}{12} \frac{1}{3^{\frac{L}{2}}} \int_{X=0}^{+\infty} L_{p_s}^{|l_s|}(X) e^{-X} x^{\frac{L+|l_s|}{2}} dX \\
 &= A(t)e^{i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + \varphi)} \frac{\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_b,0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_c,0)}^{LG}}{w_0} \frac{\sqrt{3}\mathcal{E}_{0(l_s,p_s)}^{LG}}{w_0} \\
 &\quad \delta(l_s - (l_c + l_b - l_a)) \\
 &\quad \frac{w_0^2}{12} \frac{1}{3^{\frac{L}{2}}} \left(|l_s| - \left(\frac{L+|l_s|}{2} + 1 \right) + p_s \right) \left(\frac{L+|l_s|}{2} \right)! \\
 &= A(t)e^{i(\omega_{10}(\tau_b - \tau_a) + \varphi)} \frac{\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_b,0)}^{LG}}{w_0} \frac{\mathcal{E}_{0(l_c,0)}^{LG}}{w_0} \frac{\sqrt{3}\mathcal{E}_{0(l_s,p_s)}^{LG}}{w_0} \\
 &\quad \delta(l_s - (l_c + l_b - l_a)) \\
 &\quad \frac{w_0^2}{12} \frac{1}{3^{\frac{L}{2}}} \left(\frac{|l_s| - L}{2} - 1 + p_s \right) \left(\frac{L+|l_s|}{2} \right)! \quad (4.20)
 \end{aligned}$$

Finalement le champ généré s'écrit dans l'espace réel :

$$\begin{aligned}
E_s(\mathbf{r}, t) = & -\frac{\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG} \mathcal{E}_{0(l_b,0)}^{LG} \mathcal{E}_{0(l_c,0)}^{LG}}{12w_0^2} \frac{1}{3^{\frac{L-1}{2}}} \frac{i}{\hbar^3} |\mu_{10}|^4 \theta(t - \tau_c) \theta(\tau_c - \tau_b) \theta(\tau_b - \tau_a) e^{-\frac{(t-\tau_c)}{T_2}} e^{-i\omega_{10}(t-\tau_c)} \\
& e^{-\frac{(\tau_b-\tau_a)}{T_2}} e^{-\frac{(\tau_c-\tau_b)}{T_1}} e^{-\frac{6r^2}{w_0^2}} e^{\frac{ikr^2}{2R_s}} \underline{\mathbf{e}}_n \\
& \sum_{p_s, l_s} \mathcal{E}_{0(l_s, p_s)}^{LG} \\
& \binom{\frac{|l_s|-L}{2} - 1 + p_s}{p_s} \left(\frac{L+|l_s|}{2} \right)! \\
& e^{-i(2p_s+|l_s|+1)\arctan\left(\frac{z}{z_{R_s}}\right)} \left(\frac{r\sqrt{6}}{w_0} \right)^{|l_s|} L_{p_s}^{|l_s|} \left(\frac{6r^2}{w_0^2} \right) \\
& [\delta(l_s - (l_c + l_b - l_a)) e^{i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a)+k.z+l_s\phi+\varphi)} \\
& + \delta(l_s - (l_c + l_a - l_b)) e^{-i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a)-k.z-l_s\phi+\varphi)}] + C.C. \tag{4.21}
\end{aligned}$$

On voit dans cette expression que le *waist* du champ généré est effectivement tel que $\frac{1}{w_s^2} = \frac{6}{w_0^2}$. De plus, nous constatons que le champ du signal généré par la polarisation d'ordre 3 n'est pas un mode de Laguerre-Gauss pur mais une somme de modes avec différentes valeurs de p_s , alors que la charge de son moment orbitale est bien déterminée.

Cas du signal de m lange d'ondes d g n r es   deux faisceaux.

Dans le cas du m lange d'ondes d g n r es   deux faisceaux, on a $E_b = E_c$, i.e. $\tau_c = \tau_b$, $l_c = l_b$, avec $\tau_b \geq \tau_a$. Le signal g n r  correspond ici   la diffraction de l'impulsion (b) sur le r seau d'indice (et donc de population) form  par l'interf rence entre les impulsions (a) et (b).

$$\begin{aligned}
 C_{p_s}^{l_s}(t) &= \frac{\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG}(\mathcal{E}_{0(l_b,0)}^{LG})^2}{12w_0^2} \frac{1}{3^{\frac{L-1}{2}}} \\
 &\quad \mathcal{E}_{0(l_s,p_s)}^{LG} \left(\begin{matrix} \frac{|l_s|-L}{2} - 1 + p_s \\ p_s \end{matrix} \right) \left(\frac{L+|l_s|}{2} \right)! \\
 &\quad \left[e^{i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a)+\varphi)} \delta(l_s - (2l_b - l_a)) + e^{-i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a)+\varphi')} \delta(l_s - l_a) \right] \\
 &\quad + C.C.
 \end{aligned} \tag{4.22}$$

Le champ g n r  s' crit alors dans l'espace r el en $z = 0$ sous la forme suivante :

$$\begin{aligned}
 E_s(\mathbf{r}, t) &= -\frac{\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG}(\mathcal{E}_{0(l_b,0)}^{LG})^2}{12w_0^2} \frac{1}{3^{\frac{L-1}{2}}} \frac{i}{\hbar^3} |\mu_{10}|^4 \theta(t - \tau_b) \theta(\tau_b - \tau_a) \\
 &\quad e^{-\frac{(t-\tau_b)}{T_2}} e^{-i\omega_{10}(t-\tau_b)} e^{-\frac{(\tau_b-\tau_a)}{T_2}} e^{-\frac{6r^2}{w_0^2}} \mathbf{e}_n \\
 &\quad \sum_{p_s} \left[\mathcal{E}_{0(2l_b-l_a,p_s)}^{LG} e^{i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a)+(2l_b-l_a)\phi+\varphi)} \right. \\
 &\quad \left. \left(\begin{matrix} \frac{|2l_b-l_a|-(2|l_b|+|l_a|)}{2} - 1 \\ p_s \end{matrix} \right) + p_s \right) \left(\frac{2|l_b| + |l_a| + |2l_b - l_a|}{2} \right)! \\
 &\quad \left(\frac{r\sqrt{6}}{w_0} \right)^{|2l_b-l_a|} L_{p_s}^{|2l_b-l_a|} \left(\frac{6r^2}{w_0^2} \right) \\
 &\quad + \mathcal{E}_{0(l_a,p_s)}^{LG} e^{-i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a)-l_a\phi+\varphi')} \\
 &\quad \left(\begin{matrix} -|l_b| - 1 + p_s \\ p_s \end{matrix} \right) (|l_b| + |l_a|)! \\
 &\quad \left. \left(\frac{r\sqrt{6}}{w_0} \right)^{|l_a|} L_{p_s}^{|l_a|} \left(\frac{6r^2}{w_0^2} \right) \right] + C.C.
 \end{aligned} \tag{4.23}$$

Cette expression montre que la charge l_s du signal de m lange d'onde g n r  peut prendre 2 valeurs : $l_s = 2l_b - l_a$ correspondant   l'ordre (1) de l'auto-diffraction de l'impulsion b sur le r seau d'indice form  par l'interf rence des impulsions (a) et (b) (ce r seau poss de donc une fourche de charge $l_b - l_a$) et $l_s = l_a$ correspondant   l'ordre (-1) de diffraction (se superposant au signal d    la polarisation d'ordre (1)). Par contre, le mode de LG g n r  n'est pas un mode pur mais une somme de modes.

Remarquons que pour tout $l > 0$ (i.e. $l_a > 0$ et $l_b > \frac{l_a}{2}$)

$$\begin{aligned} \binom{\frac{|l_s|-L}{2} - 1 + p_s}{p_s} \left(\frac{L + |l_s|}{2} \right)! &= \binom{\frac{l_s}{2} - \frac{2l_b+l_a}{2} - 1 + p_s}{p_s} \left(\frac{2l_b + l_a + l_s}{2} \right)! \\ &= (-1)^{p_s} \binom{\frac{2l_b+l_a-l_s}{2}}{p_s} \left(\frac{2l_b + l_a + l_s}{2} \right)! \end{aligned} \quad (4.24)$$

(d'après la formule du binôme négatif). Le coefficient binomial apparaissant dans C_{p_s, l_s} est donc non nul si et seulement si $p_s \in [0, \frac{2l_b+l_a-l_s}{2}]$. Ainsi pour $l_s = 2l_b - l_a$, $p_s \in [0, l_a]$; et pour $l_s = l_a$, $p_s \in [0, l_b]$.

On peut écrire dans ce cas le champ généré en $z = 0$ sous la forme :

$$\begin{aligned} E_s(\mathbf{r}, t) &= -\frac{\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG} (\mathcal{E}_{0(l_b,0)}^{LG})^2}{12w_0^2} \frac{1}{3^{\frac{L-1}{2}}} \frac{i}{\hbar^3} |\mu_{10}|^4 \theta(t - \tau_b) \theta(\tau_b - \tau_a) \\ &\quad e^{-\frac{(t-\tau_b)}{T_2}} e^{-i\omega_{10}(t-\tau_b)} e^{-\frac{(\tau_b-\tau_a)}{T_2}} e^{-\frac{6r^2}{w_0^2}} \mathbf{e}_n \\ &\quad \left[e^{i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a) + (2l_b-l_a)\phi + \varphi)} \left(\frac{r\sqrt{6}}{w_0} \right)^{|2l_b-l_a|} \right. \\ &\quad \sum_{p_s=0}^{l_a} \mathcal{E}_{0(2l_b-l_a, p_s)}^{LG} (-1)^{p_s} \binom{l_a}{p_s} (2l_b)! L_{p_s}^{|2l_b-l_a|} \left(\frac{6r^2}{w_0^2} \right) \\ &\quad \left. + e^{-i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a) - l_a\phi + \varphi')} \left(\frac{r\sqrt{6}}{w_0} \right)^{|l_a|} \right. \\ &\quad \left. \sum_{p_s=0}^{l_b} \mathcal{E}_{0(l_a, p_s)}^{LG} (-1)^{p_s} \binom{l_b}{p_s} (l_b + l_a)! L_{p_s}^{|l_a|} \left(\frac{6r^2}{w_0^2} \right) \right] \\ &\quad + C.C. \end{aligned} \quad (4.25)$$

Prenons maintenant l'exemple $l_a = 2$ et $l_b = 1$ (correspondant à nos expériences) :

$$\begin{aligned} E_s(\mathbf{r}, t) &= -\frac{\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG} (\mathcal{E}_{0(l_b,0)}^{LG})^2}{12w_0^2} \frac{1}{3^{\frac{L-1}{2}}} \frac{i}{\hbar^3} |\mu_{10}|^4 \theta(t - \tau_b) \theta(\tau_b - \tau_a) \\ &\quad e^{-\frac{(t-\tau_b)}{T_2}} e^{-i\omega_{10}(t-\tau_b)} e^{-\frac{(\tau_b-\tau_a)}{T_2}} e^{-\frac{6r^2}{w_0^2}} \mathbf{e}_n \\ &\quad \left[e^{i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a) + \varphi)} \left(2\mathcal{E}_{0(0,0)}^{LG} L_0^0 \left(\frac{6r^2}{w_0^2} \right) - 4\mathcal{E}_{0(0,1)}^{LG} L_1^0 \left(\frac{6r^2}{w_0^2} \right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + 2\mathcal{E}_{0(0,2)}^{LG} L_2^0 \left(\frac{6r^2}{w_0^2} \right) \right) \right. \\ &\quad \left. + e^{-i(\omega_{10}(\tau_b-\tau_a) - 2\phi + \varphi')} \left(\frac{r\sqrt{6}}{w_0} \right)^2 \left(6\mathcal{E}_{0(2,0)}^{LG} L_0^2 \left(\frac{6r^2}{w_0^2} \right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - 6\mathcal{E}_{0(2,1)}^{LG} L_1^2 \left(\frac{6r^2}{w_0^2} \right) \right) \right] \\ &\quad + C.C. \end{aligned} \quad (4.26)$$

Sur la figure 4.1 est représenté l'intensité normalisée du signal de charge $2l_b - l_a = 0$ (en rouge) ainsi que les profils en intensité des différents modes de Laguerre-Gauss qui le compose (L_0^0 ; L_0^1 et L_0^2).

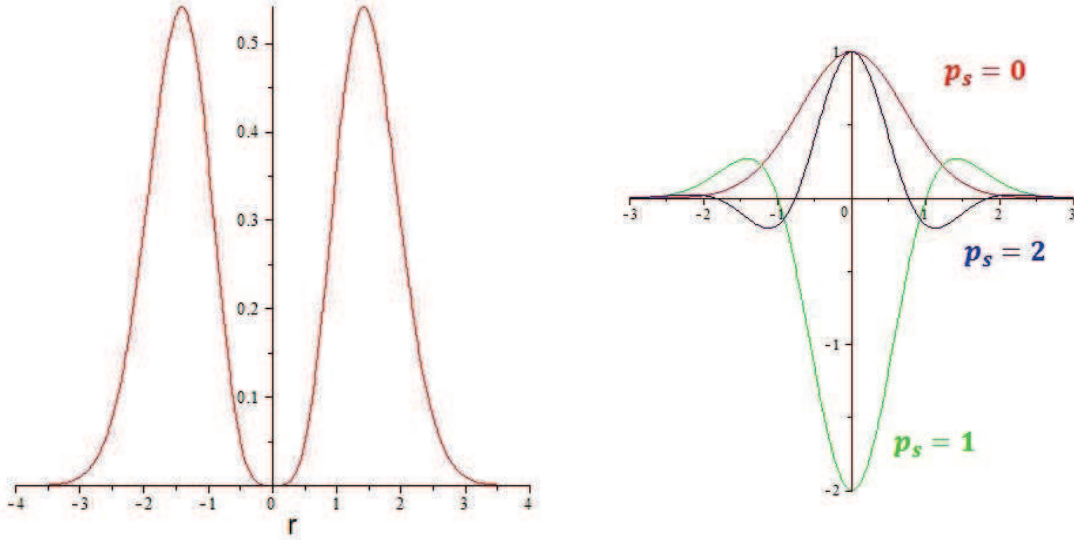


FIGURE 4.1 – À gauche : champ du signal de charge $2l_b - l_a = 0$ en $z = 0$. À droite : les différents modes de Laguerre-Gauss contenu dans $E_s(\mathbf{r}, t)$.

Il faut maintenant, regarder comment ce champ évolue pour $z \neq 0$. Le poids des différents modes de Laguerre-Gauss de valeur de p_s différent va effectivement être modifié lors de la propagation de \mathbf{E}_s . Considérons donc la diffraction à l'infini du champ \mathbf{E}_s en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ afin de déterminer la contribution des différents modes pour $z \rightarrow \infty$. Concentrons nous sur les modes de $l_s = 0$. On doit alors calculer :

$$\begin{aligned} & \int_{r=0}^{+\infty} \int_{\phi=0}^{2\pi} e^{-\frac{6r^2}{w_0^2}} L_{p_s}^0\left(\frac{6r^2}{w_0^2}\right) r dr d\phi \\ &= 2\pi \int_{r=0}^{+\infty} e^{-\frac{6r^2}{w_0^2}} L_{p_s}^0\left(\frac{6r^2}{w_0^2}\right) r dr \end{aligned} \quad (4.27)$$

avec des valeurs de p_s appartenant à l'intervalle $[0, 2]$. Cette intégrale se calcul facilement (formule 6 section 7.414 p.844 de [23] dont les conditions sont vérifiées) en appliquant le changement de variable $X = \frac{6r^2}{w_0^2}$:

$$\begin{aligned} & 2\pi \int_{r=0}^{+\infty} e^{-\frac{6r^2}{w_0^2}} L_{p_s}^0\left(\frac{6r^2}{w_0^2}\right) r dr \\ &= 2\pi \int_{X=0}^{+\infty} e^{-X} L_{p_s}^0(X) dX \frac{w_0^2}{12} \\ &= \frac{\pi w_0^2}{6} (1-1)^{p_s} 1^{-p_s-1} \end{aligned} \quad (4.28)$$

Cette intégrale est non-nulle uniquement pour $p_s = 0$. Ainsi en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ nous n'observerons que le mode de Laguerre-Gauss ($l_s = 0, p_s = 0$) dont la contribution est non-nulle sur l'axe optique et qui pourra être extrait expérimentalement au moyen d'un diaphragme des autres faisceaux de Laguerre-Gauss (incidents et générés).

Finalement, dans le cas d'une expérience de mélange d'onde dégénérée à deux faisceaux colinéaire, \mathbf{E}_a et \mathbf{E}_b , nous observerons pour un retard entre les deux impulsions $\Delta(t) = \tau_b - \tau_a \geq 0$ deux signaux : un de charge $2l_b - l_a$ et un de charge l_a décroissant avec une constante de temps $\frac{T_2}{2}$; et pour un retard $\Delta(t) = \tau_b - \tau_a \leq 0$ deux autres signaux (obtenus simplement en échangeant le rôle de (a) et (b) dans les équations précédente) : un de charge $2l_a - l_b$ et un de charge l_b décroissant avec la même constante de temps $\frac{T_2}{2}$, qui décrit la cinétique de déphasage des excitations. Le champ des signaux générés E_s ne correspond cependant pas à des modes de Laguerre-Gauss pur mais est une somme de mode de Laguerre-Gauss de différentes valeurs de p_s . Néanmoins, au cours de la propagation le poids des différents modes de valeurs de p_s différent change. Nous avons démontré ici que le signal dont le moment orbital angulaire de charge $l_s = 2l_b - l_a = 0$ est à grande distance en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ un mode pur avec $p_s = 0$, c'est à dire un pur mode gaussien. Ce résultat montre donc la possibilité d'effectuer une expérience de mélange d'onde en géométrie colinéaire dans laquelle le signal sera discriminé en n'imaginant que le centre d'un diaphragme placé sur le chemin des faisceaux après l'échantillon.

Cas du signal pompe-sonde Dans le cas d'une exp rience pompe-sonde, les deux premi res impulsions sont confondues $\mathbf{E}_a = \mathbf{E}_b$ ($\tau_a = \tau_b$ et $l_a = l_b$). L'impulsion (c) sonde alors le mat riau modifi  de mani re uniforme par l'impulsion test (a). Le signal obtenu aura alors la forme suivante :

$$\begin{aligned}
 \mathbf{E}_s(\mathbf{r}, t) &= -\frac{(\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG})^2 \mathcal{E}_{0(l_c,0)}^{LG}}{12w_0^2} \frac{1}{3^{\frac{L-1}{2}}} \frac{i}{\hbar^3} |\mu_{10}|^4 \theta(t - \tau_c) \theta(\tau_c - \tau_a) e^{-\frac{(t-\tau_c)}{T_2}} e^{-i\omega_{10}(t-\tau_c)} e^{-\frac{(\tau_c-\tau_a)}{T_1}} \\
 &\quad e^{\frac{ikr^2}{2R_s}} e^{-\frac{6r^2}{w_0^2}} \mathbf{e}_n \\
 &\quad \sum_{p_s, l_s} \mathcal{E}_{0(l_s, p_s)}^{LG} \delta(l_s - l_c) \binom{-|l_a| - 1 + p_s}{p_s} (|l_a| + |l_c| + 1)! \\
 &\quad e^{-i(2p_s + |l_c| + 1) \arctan\left(\frac{z}{z_{R_s}}\right)} \left(\frac{r\sqrt{6}}{w_0}\right)^{|l_s|} 2e^{i(k \cdot z + l_s \phi + \varphi)} L_{p_s}^{(l_s)}\left(\frac{6r^2}{w_0^2}\right) \\
 &= \frac{(\mathcal{E}_{0(l_a,0)}^{LG})^2 \mathcal{E}_{0(l_c,0)}^{LG}}{12w_0^2} \frac{1}{3^{\frac{L-1}{2}}} \frac{i}{\hbar^3} |\mu_{10}|^4 \theta(t - \tau_c) \theta(\tau_c - \tau_a) e^{-\frac{(t-\tau_c)}{T_2}} e^{-i\omega_{10}(t-\tau_c)} e^{-\frac{(\tau_c-\tau_a)}{T_1}} \\
 &\quad e^{\frac{ikr^2}{2R_s}} e^{-\frac{6r^2}{w_0^2}} \mathbf{e}_n \\
 &\quad \sum_{p_s=0}^{l_a} \mathcal{E}_{0(l_c, p_s)}^{LG} \binom{|l_a|}{p_s} (-1)^{p_s} (|l_a| + |l_c| + 1)! \\
 &\quad e^{-i(2p_s + |l_c| + 1) \arctan\left(\frac{z}{z_{R_s}}\right)} \left(\frac{r\sqrt{6}}{w_0}\right)^{|l_s|} 2e^{i(k \cdot z + l_c \phi + \varphi)} L_{p_s}^{|l_c|}\left(\frac{6r^2}{w_0^2}\right) \tag{4.29}
 \end{aligned}$$

Nous obtenons un signal de charge l_c pour des retards entre les deux impulsions $\tau_c - \tau_a \geq 0$ d croissant avec un temps caract ristique $\frac{T_1}{2}$. Pour des retards $\tau_c - \tau_a \leq 0$, on obtient un signal de charge l_a (il faut simplement inverser le r le de a et c dans l'expression pr c dente) qui d croit aussi avec un temps caract ristique $\frac{T_1}{2}$ d crivant le temps de relaxation des populations.

4.3 Expression générale du signal généré par la polarisation du troisième ordre

La réponse non-linéaire implique le produit de champs électriques. On va donc chercher à calculer le produit de modes de propagation du champ, à commencer par les modes d'Hermite-Gauss et de Laguerre-Gauss qui apparaissent dans l'approximation paraxiale. Pour se faire nous introduirons les modes généralisés d'Hermite-Laguerre-Gauss.

Nous utiliserons ici les notations utilisées dans 3.

4.3.1 Modes généralisés d'Hermite-Laguerre-Gauss

Un mode généralisé d'Hermite-Laguerre-Gauss se définit comme suit :

$$\mathcal{G}_{m,n}(x, y|\alpha) = \sum_{k=0}^{n+m} i^k \cos^{n-k} \alpha \sin^{m-k} \alpha P_k^{(n-k, m-k)}(-\cos 2\alpha) \mathcal{H}_{n+m-k, k}(x, y) \quad (4.30)$$

$$= e^{-(x^2+y^2)^2} \sum_{k=0}^{n+m} i^k \cos^{n-k} \alpha \sin^{m-k} \alpha P_k^{(n-k, m-k)}(-\cos 2\alpha) H_{n+m-k}(\sqrt{2}x) H_k(\sqrt{2}y) \quad (4.31)$$

avec n, m des entiers positifs et où apparaissent les polynômes de Jacobi :

$$\begin{aligned} P_k^{(\mu, \nu)}(z) &= \frac{(-1)^k}{2^k k!} (1-z)^{-\mu} (1+z)^{-\nu} \frac{d^k}{dz^k} [(1-z)^{k+\mu} (1+z)^{k+\nu}] \\ &= \sum_{p=0}^k C_{k+\mu}^p C_{k+\nu}^{k-p} \left(\frac{z-1}{2}\right)^{k-p} \left(\frac{z+1}{2}\right)^p \\ P_k^{(n-k, m-k)}(z) &= \frac{(-1)^k}{2^k k!} \frac{1}{(1-z)^{n-k} (1+z)^{m-k}} \frac{d^k}{dz^k} [(1-z)^n (1+z)^m] \\ &= \sum_{p=0}^k C_n^p C_m^{k-p} \left(\frac{z-1}{2}\right)^{k-p} \left(\frac{z+1}{2}\right)^p \end{aligned}$$

où $C_n^p = \binom{n}{p} = \frac{n!}{p!(n-p)!}$ est un coefficient binomial.

Modes d'Hermite-Gauss comme cas particuliers des modes d'Hermite-Laguerre-Gauss

Pour $\alpha = 0$, on a $\cos 2\alpha = \cos \alpha = 1$ et $\sin \alpha = 0$. Le facteur $\sin^{m-k} \alpha$ fait que le seul terme non-nul dans (4.31) est celui où $k = m$:

$$\mathcal{G}_{m,n}(x, y|\alpha = 0) = e^{-(x^2+y^2)^2} i^m P_k^{(n-m, 0)}(-1) H_n(\sqrt{2}x) H_m(\sqrt{2}y)$$

Or,

$$\begin{aligned}
 P_k^{(n-m,0)}(-1) &= \sum_{p=0}^m C_n^p C_m^{m-p} (-1)^{m-p} (0)^p \\
 &= C_n^0 C_m^m (-1)^m \\
 &= (-1)^m
 \end{aligned} \tag{4.32}$$

Ainsi,

$$\mathcal{G}_{m,n}(x, y|0) = e^{-(x^2+y^2)^2} (-i)^m H_n(\sqrt{2}x) H_m(\sqrt{2}y) \tag{4.33}$$

Modes de Laguerre-Gauss comme cas particuliers des modes d'Hermite-Laguerre-Gauss

Pour $\alpha = \pi/4$, on a $\cos 2\alpha = 0$, $\cos \alpha = 1/\sqrt{2}$ et $\sin \alpha = 1/\sqrt{2}$. Le facteur $\cos^{n-k} \alpha$ fait que le seul terme non-nul dans (4.31) est celui où $k = n$:

$$\mathcal{G}_{m,n}(x, y|\alpha = \pi/4) = e^{-(x^2+y^2)^2} \sum_{k=0}^{n+m} i^n \sqrt{2}^{-m+n} P_k^{(0,m-n)}(0) H_m(\sqrt{2}x) H_n(\sqrt{2}y)$$

avec

$$\begin{aligned}
 P_k^{(0,m-n)}(0) &= \sum_{p=0}^n C_n^p C_m^{n-p} \left(\frac{-1}{2}\right)^{n-p} \left(\frac{1}{2}\right)^p \\
 &= \left(\frac{1}{2}\right)^n \sum_{p=0}^n C_n^p C_m^{n-p} (-1)^{n-p}
 \end{aligned}$$

D'où

$$\begin{aligned}
 \mathcal{G}_{m,n}(x, y|\pi/4) &= e^{-(x^2+y^2)^2} \\
 &\quad \sum_{k=0}^{n+m} i^n \sqrt{2}^{-m+n} \left(\frac{1}{2}\right)^n \sum_{p=0}^n C_n^p C_m^{n-p} (-1)^{n-p} H_m(\sqrt{2}x) H_n(\sqrt{2}y)
 \end{aligned}$$

Un polynôme de Laguerre se décompose sur les polynômes d'Hermite :

$$e^{i\ell\phi} r^\ell L_m^\ell(2r^2) = \frac{(-1)^m}{2^{2m+\ell} m!} \sum_{r=0}^m \sum_{s=0}^{\ell} i^s C_m^r C_\ell^s H_{2r+\ell-s}(\sqrt{2}x) H_{2m-2r+s}(\sqrt{2}y)$$

On trouve donc *in fine* en coordonnées polaires :

$$\mathcal{G}_{m,n}(r, \phi|\pi/4) = \begin{cases} (-1)^m 2^n m! e^{-r^2} (re^{i\phi})^{n-m} L_m^{n-m}(2r^2) & (n \geq m) \\ (-1)^n 2^m n! e^{-r^2} (re^{i\phi})^{m-n} L_n^{m-n}(2r^2) & (n \leq m) \end{cases} \tag{4.35}$$

Nous nous restreindrons dans la suite aux modes de Laguerre-Gauss, le développement en terme de modes d'Hermite-Gauss se trouve en annexe. De plus, nous ne présenterons pas ici la totalité des calculs par souci de clarté, tous les détails de calculs se trouvent en annexe.

4.3.2 Fonction génératrice des modes

Modes généralisés d'Hermite-Laguerre-Gauss

En définissant la fonction d'influence astigmatique :

$$\psi(\xi, \eta, \alpha) = (\xi^2 - \eta^2) \cos 2\alpha + 2\xi\eta \sin 2\alpha \quad (4.36)$$

on a comme fonction génératrice :

$$\begin{aligned} & G(x, y, \alpha, s, t) \\ = & \sum_{n,m=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}(x, y|\alpha) \frac{s^n t^m}{n!m!} \\ = & e^{-(x^2+y^2) - \psi(s,t,\alpha) + 2\sqrt{2}x(s \cos \alpha + t \sin \alpha) + 2\sqrt{2}iy(s \sin \alpha - t \cos \alpha)} \\ = & e^{-(x^2+y^2) - (s^2-t^2) \cos 2\alpha - 2st \sin 2\alpha + 2\sqrt{2}x(s \cos \alpha + t \sin \alpha) + 2\sqrt{2}iy(s \sin \alpha - t \cos \alpha)} \end{aligned} \quad (4.37)$$

Modes de Laguerre-Gauss

C'est le cas où $\alpha = \pi/4$. On a $\cos 2\alpha = 0$, $\cos \alpha = 1/\sqrt{2}$, $\sin 2\alpha = 1$ et $\sin \alpha = 1/\sqrt{2}$.

$$\psi(\xi, \eta, \alpha = \pi/4) = 2\xi\eta \quad (4.38)$$

Pour la fonction génératrice :

$$\begin{aligned} G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t) &= \sum_{n,m=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}(x, y|\alpha = \pi/4) \frac{s^n t^m}{n!m!} \\ &= e^{-(x^2+y^2) - 2st + 2x(s+t) + 2iy(s-t)} \\ &= e^{-(x^2+y^2) - 2st + 2(x+iy)s + 2(x-iy)t} \end{aligned} \quad (4.39)$$

4.3.3 Produits de modes de Laguerre-Gauss

Produit des polynômes de Laguerre

Le produit de deux fonctions génératrices de modes de Laguerre-Gauss s'écrit :

$$\begin{aligned} & G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t).G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \\ = & \sum_{n,m=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}(x, y|\alpha = \pi/4) \frac{s^n t^m}{n!m!} \cdot \sum_{N,M=0}^{\infty} \mathcal{G}_{M,N}(x, y|\alpha = \pi/4) \frac{S^N T^M}{N!M!} \\ = & \sum_{n,m=0}^{\infty} \sum_{N,M=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}(x, y|\alpha = \pi/4) \cdot \mathcal{G}_{M,N}(x, y|\alpha = \pi/4) \frac{s^n S^N t^m T^M}{n!m!N!M!} \end{aligned} \quad (4.40)$$

D'un autre côté, on peut montrer que :

$$\begin{aligned} & G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t).G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \\ = & e^{-(x^2+y^2) - 2st + 2(x+iy)s + 2(x-iy)t} \cdot e^{-(x^2+y^2) - 2ST + 2(x+iy)S + 2(x-iy)T} \\ = & e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{P,Q=0}^{\infty} \mathcal{G}_{P,Q}(x, y|\alpha = \pi/4) \frac{(s+S)^Q (t+T)^P}{Q!P!} \cdot \sum_{p,q=0}^{\infty} \frac{(2sT)^q (2St)^p}{q!p!} \end{aligned}$$

après calcul (développement des binômes puis simplification des sommes), on trouve :

$$\begin{aligned}
 & G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t).G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \\
 = & e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{s^n t^m S^N T^M}{n!m!N!M!} \\
 & \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} 2^{M+m-h} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(x, y | \alpha = \pi/4) m!M! \\
 & \sum_{k=\max(m-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m, h, h+n-M)} \frac{N!}{(N-m+k)!(m-k)!} \frac{n!}{(n-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{1}{(h-k)!k!}
 \end{aligned} \tag{4.41}$$

En comparant avec (4.40), on trouve que

$$\begin{aligned}
 & \sum_{n, m=0}^{\infty} \sum_{N, M=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m, n}(x, y | \alpha = \pi/4). \mathcal{G}_{M, N}(x, y | \alpha = \pi/4) \frac{s^n S^N t^m T^M}{n!m!N!M!} \\
 = & e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{s^n t^m S^N T^M}{n!m!N!M!} \\
 & \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} 2^{M+m-h} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(x, y | \alpha = \pi/4) m!M! \\
 & \sum_{k=\max(m-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m, h, h+n-M)} \frac{N!}{(N-m+k)!(m-k)!} \frac{n!}{(n-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{1}{(h-k)!k!}
 \end{aligned} \tag{4.42}$$

pour tout s, t, S et T . Donc :

$$\begin{aligned}
 & \mathcal{G}_{m, n}(x, y | \alpha = \pi/4). \mathcal{G}_{M, N}(x, y | \alpha = \pi/4) \\
 = & e^{-(x^2+y^2)} \\
 & \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} 2^{M+m-h} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(x, y | \alpha = \pi/4) m!M! \\
 & \sum_{k=\max(m-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m, h, h+n-M)} \frac{N!}{(N-m+k)!(m-k)!} \frac{n!}{(n-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{1}{(h-k)!k!}
 \end{aligned} \tag{4.43}$$

En considérant, sans perte de généralité, les cas $n \geq m$ et $N \geq M$ et en utilisant (4.35) :

$$\mathcal{G}_{m, n}(r, \phi | \pi/4) = (-1)^m 2^n m! e^{-r^2} (r e^{i\phi})^{n-m} L_m^{n-m} (2r^2) \tag{4.44}$$

on trouve pour le produit des modes :

$$\begin{aligned}
 & \mathcal{G}_{m, n}(r, \phi | \alpha = \pi/4). \mathcal{G}_{M, N}(r, \phi | \alpha = \pi/4) \\
 = & (-1)^m 2^n m! e^{-r^2} (r e^{i\phi})^{n-m} L_m^{n-m} (2r^2) \\
 & (-1)^M 2^N M! e^{-r^2} (r e^{i\phi})^{N-M} L_M^{N-M} (2r^2)
 \end{aligned} \tag{4.45}$$

$$= (-1)^{m+M} 2^{n+N} m!M! e^{-2r^2} (r e^{i\phi})^{n-m+N-M} L_m^{n-m} (2r^2) L_M^{N-M} (2r^2) \tag{4.46}$$

D'un autre côté, avec (4.43) :

$$\begin{aligned}
& \mathcal{G}_{m,n}(r, \phi | \alpha = \pi/4) \cdot \mathcal{G}_{M,N}(r, \phi | \alpha = \pi/4) \\
= & e^{-r^2} \\
& \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(r, \phi | \alpha = \pi/4) \cdot 2^{h+m+M} m! M! \\
& \sum_{k=\max(m-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m, h, h+n-M)} \frac{N!}{(N-m+k)!(m-k)!} \frac{n!}{(n-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{1}{(h-k)!k!} \\
= & 2^{n+N} m! M! e^{-2r^2} (r e^{i\phi})^{n-m+N-M} \\
& \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} (-1)^h L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\
& \sum_{k=\max(m-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m, h, h+n-M)} \frac{N!}{(N-m+k)!(m-k)!} \frac{n!}{(n-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{h!}{(h-k)!k!}
\end{aligned} \tag{4.47}$$

On en déduit l'identité :

$$\begin{aligned}
& L_m^{n-m} (2r^2) L_M^{N-M} (2r^2) \\
= & \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} (-1)^{h-m-M} L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\
& \sum_{k=\max(m-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m, h, h+n-M)} \frac{N!}{(N-m+k)!(m-k)!} \frac{n!}{(n-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{h!}{(h-k)!k!}
\end{aligned} \tag{4.48}$$

qu'on peut aussi écrire :

$$\begin{aligned}
& L_m^{n-m} (2r^2) L_M^{N-M} (2r^2) \\
= & \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} (-1)^{h-m-M} L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\
& \sum_{k=\max(m-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m, h, h+n-M)} \binom{N}{m-k} \binom{n}{M-h+k} \binom{h}{k}
\end{aligned} \tag{4.49}$$

Avec les règles sur les coefficients binomiaux, les bornes des sommes se simplifient et finalement nous trouvons une expression simple du produit de deux polynômes de Laguerre généralisés :

$$\begin{aligned}
& L_m^l (2r^2) L_M^L (2r^2) \\
= & \sum_{h=0}^{m+M} (-1)^{h-m-M} L_h^{l+L} (2r^2) \\
& \sum_{k=0}^h \binom{L+M}{m-k} \binom{m+l}{M-h+k} \binom{h}{k}
\end{aligned} \tag{4.50}$$

Cette relation est générale, à ceci près que, comme $2r^2 \geq 0$, on a prouvé qu'elle est valable pour tout argument positif.

Produits de polynômes de Laguerre-Gauss pour des *waists* différents

On reprend la fonction génératrice de modes de Laguerre-Gauss :

$$G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t) = \sum_{n,m=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}(x, y | \alpha = \pi/4) \frac{s^n t^m}{n!m!} \quad (4.51)$$

$$= e^{-(x^2+y^2)-2st+2(x+iy)s+2(x-iy)t} \quad (4.52)$$

en effectuant les changements de variable (avec $w > 0$) :

$$\begin{aligned} x &\rightarrow \frac{x}{w} & s &\rightarrow \frac{s}{w} \\ y &\rightarrow \frac{y}{w} & t &\rightarrow \frac{t}{w} \end{aligned}$$

On obtient :

$$G\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w}, \alpha = \pi/4, \frac{s}{w}, \frac{t}{w}\right) = \sum_{n,m=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w} | \alpha = \pi/4\right) \frac{s^n t^m}{n!m!} \frac{1}{w^{n+m}} \quad (4.53)$$

$$= e^{-\frac{(x^2+y^2)-2st+2(x+iy)s+2(x-iy)t}{w^2}} \quad (4.54)$$

On va considérer que w est le rapport des *waists* des deux faisceaux. La formule (4.40) devient :

$$G\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w}, \alpha = \pi/4, \frac{s}{w}, \frac{t}{w}\right) \cdot G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \quad (4.55)$$

$$= \sum_{n,m=0}^{\infty} \sum_{N,M=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w} | \alpha = \pi/4\right) \cdot \mathcal{G}_{M,N}(x, y | \alpha = \pi/4) \frac{s^n S^N t^m T^M}{n!m!N!M!} \frac{1}{w^{n+m}}$$

D'un autre côté :

$$\begin{aligned} &G\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w}, \alpha = \pi/4, \frac{s}{w}, \frac{t}{w}\right) \cdot G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \\ &= e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \cdot \sum_{P,Q=0}^{\infty} \mathcal{G}_{P,Q}(x, y | \alpha = \pi/4) \frac{\left(\frac{s}{w^2} + S\right)^Q \left(\frac{t}{w^2} + T\right)^P}{Q!P!} \\ &\quad \sum_{p,q=0}^{\infty} \frac{(2sT)^q (2St)^p}{q!p!} \frac{1}{w^{2(p+q)}} \sum_{J=0}^{\infty} \frac{(2st)^J}{J!} \left(\frac{1-w^2}{w^4}\right)^J \end{aligned} \quad (4.56)$$

On va comparer ces deux expressions comme précédemment. Après calcul, on obtient :

$$L_m^l \left(\frac{2r^2}{w^2} \right) L_M^L (2r^2) = \sum_{J=0}^m \binom{l+m}{J} \frac{(1-w^2)^J}{w^{2m}} \quad (4.57)$$

$$\sum_{h=0}^{m+M-J} (-1)^{h-m-M} L_h^{l+L} (2r^2) \sum_{k=0}^h \binom{L+M}{m-k-J} \binom{l+m-J}{M-h+k} \binom{h}{k} \quad (4.58)$$

Cette relation est générale et valable pour tout argument positif, puisqu'on l'a prouvée avec $2r^2 \geq 0$. On sait que pour $M = 0$, $L_0^L (2r^2) = 1$. En outre, cette relation est valable pour toute valeur de L et en particulier $L = 0$. On a donc

$$L_m^l \left(\frac{2r^2}{w^2} \right) = \sum_{J=0}^m \binom{l+m}{J} \frac{(w^2-1)^J}{w^{2m}} L_{m-J}^l (2r^2) \quad (4.59)$$

Nous pouvons utiliser cette relation pour regarder ce que donne l'interférence entre un mode de Laguerre-Gauss ($l_a = 2, p_a = 0$) et ($l_b = 1, p_b = 0$) de même *waist* en $z = 0$. Rappelons qu'en $z = 0$, un mode s'écrit :

$$u_{\ell p}^{LG}(r, \phi, 0) = \frac{\mathcal{E}_{0(\ell,p)}}{w(0)} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w(0)} \right)^{|\ell|} e^{-\frac{r^2}{w^2(0)}} L_p^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{w^2(0)} \right) e^{i\ell\phi} \quad (4.60)$$

Le profil d'interférence est donnée par le produit du mode ($l_b = 1, p_b = 0$) et du complexe conjugué du mode ($l_a = 2, p_a = 0$), soit :

$$\begin{aligned} & \left(\frac{\mathcal{E}_{0(1,0)}}{w(0)} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w(0)} \right) e^{-\frac{r^2}{w^2(0)}} L_0^1 \left(\frac{2r^2}{w^2(0)} \right) e^{i\phi} \right) \cdot \\ & \left(\frac{\mathcal{E}_{0(2,0)}}{w(0)} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w(0)} \right)^2 e^{-\frac{r^2}{w^2(0)}} L_0^2 \left(\frac{2r^2}{w^2(0)} \right) e^{i2\phi} \right)^* + C.C. \\ & = \frac{\mathcal{E}_{0(1,0)} \mathcal{E}_{0(2,0)}}{w(0)} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w(0)} \right)^3 e^{-\frac{2r^2}{w^2(0)}} e^{-i\phi} \\ & L_0^1 \left(\frac{2r^2}{w^2(0)} \right) \cdot L_0^2 \left(\frac{2r^2}{w^2(0)} \right) + C.C. \end{aligned} \quad (4.61)$$

Le produit des deux polynômes de Laguerre se calcul facilement avec l'expression 4.58. On obtient :

$$\frac{\mathcal{E}_{0(1,0)} \mathcal{E}_{0(2,0)}}{w(0)} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w(0)} \right)^3 e^{-\frac{2r^2}{w^2(0)}} (e^{-i\phi} + e^{i\phi}) L_0^3 \left(\frac{2r^2}{w^2(0)} \right) \quad (4.62)$$

En prenant le carré de cette dernière expression, on obtient l'intensité du profil d'interférence représenté sur la figure 4.2.

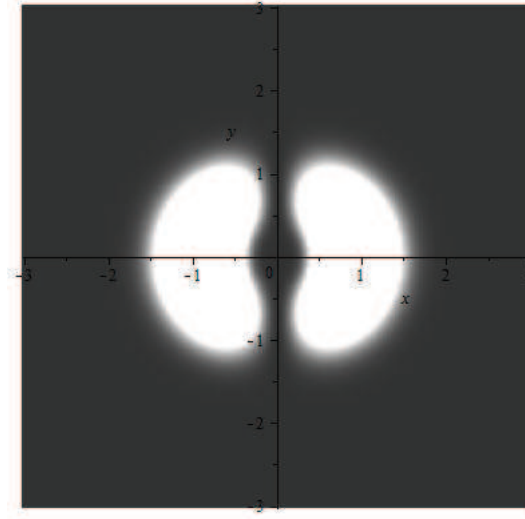


FIGURE 4.2 – Intensité profil d'interférence entre un mode de Laguerre-Gauss ($\ell_b = 1, p_b = 0$) et un mode ($\ell_a = 2, p_a = 0$).

C'est sur ce profil que va s'auto-diffracter le mode ($\ell_b = 1, p_b = 0$) dans une expérience de mélange d'onde dégénérée à deux faisceaux (celle là même correspondant à nos expériences).

Produits de modes de Laguerre-Gauss de *waists* différents

Un signal de mélange d'onde correspond à la polarisation du troisième ordre créée par trois champs. À partir des résultats précédents, on peut calculer le produit de ces trois modes de Laguerre-Gauss. On considère trois champs dont un est pris en complexe conjugué avec même *waist* qu'on pose égal à l'unité : $w(0) = 1$

$$u_{\ell_i p_i}^{LG}(r, \phi, 0) = \mathcal{E}_{0(\ell_i, p_i)} \left(\sqrt{2}r \right)^{|\ell_i|} e^{-r^2} L_{p_i}^{|\ell_i|} (2r^2) e^{i\ell_i \phi} \quad (4.63)$$

Leur produit s'écrit :

$$\begin{aligned} & P^{(3)}(r, \phi, 0) \quad (4.64) \\ = & \mathcal{E}_{0(\ell_1, p_1)} \mathcal{E}_{0(\ell_2, p_2)} \mathcal{E}_{0(\ell_3, p_3)} \left(\sqrt{2}r \right)^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} e^{-3r^2} e^{i(-\ell_1+\ell_2+\ell_3)\phi} L_{p_1}^{|\ell_1|} (2r^2) L_{p_2}^{|\ell_2|} (2r^2) L_{p_3}^{|\ell_3|} (2r^2) \end{aligned}$$

en utilisant (4.57) :

$$\begin{aligned}
& P^{(3)}(r, \phi, 0) \\
&= \mathcal{E}_{0(\ell_1, p_1)} \mathcal{E}_{0(\ell_2, p_2)} \mathcal{E}_{0(\ell_3, p_3)} \left(\sqrt{2}r \right)^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} e^{-3r^2} e^{i(-\ell_1+\ell_2+\ell_3)\phi} \\
&\quad \sum_{h=0}^{p_1+p_2} \sum_{h'=0}^{h+p_3} (-1)^{h'-p_1-p_2-p_3} L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (2r^2) \\
&\quad \sum_{k=0}^h \binom{|\ell_2|+p_2}{p_1-k} \binom{|\ell_1|+p_1}{p_2-h+k} \binom{h}{k} \sum_{k'=0}^{h'} \binom{|\ell_3|+p_3}{h-k'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+h}{p_3-h'+k'} \binom{h'}{k'}
\end{aligned}$$

Avant de poursuivre remarquons que le produit des trois modes de Laguerre-Gauss donne un mode de Laguerre-Gauss non pur car il correspond à la somme de différents polynômes de Laguerre. Néanmoins on peut noter que la partie angulaire est conservé : le produit de trois modes de charge $-\ell_1$, ℓ_2 et ℓ_3 donne un mode de charge $-\ell_1 + \ell_2 + \ell_3$ comme démontré précédemment. De plus la partie gaussienne de ce mode est en e^{-3r^2} ce qui correspond à un *waist* $w = \frac{1}{\sqrt{3}}$. En effet, si on multiplie 3 gaussiennes de *waist* w_0 en $z = 0$, on obtient une gaussienne de *waist* $w_{0(s)}$ telle que :

$$\begin{aligned}
\mathcal{E}_1 e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} \cdot \mathcal{E}_2 e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} \cdot \mathcal{E}_3 e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} &= \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3 e^{-\frac{3r^2}{w_0^2}} \\
&= \mathcal{E} e^{-\frac{r^2}{w_{0(s)}^2}}
\end{aligned} \tag{4.65}$$

ainsi $\frac{1}{w_{0(s)}^2} = \frac{3}{w_0^2}$ et $w_{0(s)} = \frac{w_0}{\sqrt{3}}$. L'équation écrite ci-dessus correspond bien à l'équation 4.65 pour $\ell_1 = \ell_2 = \ell_3 = p_1 = p_2 = p_3 = 0$. Le champ généré par cette polarisation du troisième ordre possèdera donc un *waist* de $1/\sqrt{3}$. On projette alors $P^{(3)}(r, \phi, 0)$ sur un mode de Laguerre-Gauss de *waist* $1/\sqrt{3}$:

$$u_{\ell_s p_s}^{LG}(\sqrt{3}r, \phi, 0) = 3^{1/2} \mathcal{E}_{0(\ell_s, p_s)} \left(\sqrt{6}r \right)^{|\ell_s|} e^{-3r^2} L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) e^{i\ell_s \phi} \tag{4.66}$$

qu'on prend en complexe conjugué en le multipliant avec $P^{(3)}$:

$$\begin{aligned}
& \int_0^\infty r dr \int_0^{2\pi} d\phi P^{(3)}(r, \phi, 0) \cdot u_{\ell_s p_s}^{LG*}(\sqrt{3}r, \phi, 0) \\
&= \left(\sqrt{3} \right)^{|\ell_s|+1} \left(\sqrt{2} \right)^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|} \mathcal{E}_{0(\ell_1, p_1)} \mathcal{E}_{0(\ell_2, p_2)} \mathcal{E}_{0(\ell_3, p_3)} \mathcal{E}_{0(\ell_s, p_s)} \\
&\quad \int_0^{2\pi} d\phi e^{i(-\ell_1+\ell_2+\ell_3-\ell_s)\phi} \\
&\quad \sum_{h=0}^{p_1+p_2} \sum_{h'=0}^{h+p_3} (-1)^{h'-p_1-p_2-p_3} \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (2r^2) L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) \\
&\quad \sum_{k=0}^h \binom{|\ell_2|+p_2}{p_1-k} \binom{|\ell_1|+p_1}{p_2-h+k} \binom{h}{k} \sum_{k'=0}^{h'} \binom{|\ell_3|+p_3}{h-k'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+h}{p_3-h'+k'} \binom{h'}{k'}
\end{aligned} \tag{4.67}$$

On utilise (4.59) avec $w^2 = 3$ pour :

$$L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} \left(\frac{6r^2}{3} \right) = \sum_{J=0}^{h'} \binom{|\ell_1| + |\ell_2| + |\ell_3| + h'}{J} \frac{2^J}{3^{h'}} L_{h'-J}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (6r^2)$$

L'intégrale sur ϕ donne :

$$\int_0^{2\pi} d\phi e^{i(-\ell_1+\ell_2+\ell_3-\ell_s)\phi} = \delta(\ell_s + \ell_1 - \ell_2 - \ell_3) \quad (4.68)$$

L'intégrale sur r devient :

$$\begin{aligned} & \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (2r^2) L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) \\ &= \sum_{J=0}^{h'} \binom{|\ell_1| + |\ell_2| + |\ell_3| + h'}{J} \frac{2^J}{3^{h'}} \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_{h'-J}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (6r^2) L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) \end{aligned} \quad (4.69)$$

On utilise (4.50) :

$$\begin{aligned} & L_{h'-J}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (6r^2) L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) \\ &= \sum_{H=0}^{h'-J+p_s} (-1)^{H-h'+J-p_s} L_H^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|} (6r^2) \\ & \sum_{K=0}^H \binom{|\ell_s| + p_s}{h' - J - K} \binom{h' - J + |\ell_1| + |\ell_2| + |\ell_3|}{p_s - H + K} \binom{H}{K} \end{aligned} \quad (4.70)$$

pour trouver

$$\begin{aligned} & \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (2r^2) L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) \\ &= \sum_{J=0}^{h'} \binom{|\ell_1| + |\ell_2| + |\ell_3| + h'}{J} \frac{2^J}{3^{h'}} \sum_{H=0}^{h'-J+p_s} (-1)^{H-h'+J-p_s} \\ & \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_H^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|} (6r^2) \\ & \sum_{K=0}^H \binom{|\ell_s| + p_s}{h' - J - K} \binom{h' - J + |\ell_1| + |\ell_2| + |\ell_3|}{p_s - H + K} \binom{H}{K} \end{aligned} \quad (4.71)$$

On utilise les formules d'intégration des polynômes de Laguerre. On sait que :

$$\begin{aligned} \int_0^\infty x^{\alpha'-1} e^{-x} L_n^{(\alpha)}(x) dx &= \binom{\alpha - \alpha' + n}{n} \Gamma(\alpha') \\ &= \frac{(\alpha - \alpha' + n)! (\alpha' - 1)!}{n! (\alpha - \alpha')!} \end{aligned} \quad (4.72)$$

On pose $x = 6r^2$, $dx = 12rdr$, $\alpha' = \frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} + 1$, $\alpha = |\ell_1| + |\ell_2| + |\ell_3| + |\ell_s|$, $n = H$, et l'intégrale devient :

$$2 \times 6^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_H^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|} (6r^2)$$

$$= \frac{1}{2 \times 6^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1}} \left(\frac{\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} - 1 + H}{H} \right) \left(\frac{|\ell_1| + |\ell_2| + |\ell_3| + |\ell_s|}{2} \right)!$$

Donc, en remontant dans les formules, on trouve

$$\int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (2r^2) L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2)$$

$$= \frac{(\sqrt{3})^{|\ell_s|+1/2} (\sqrt{2})^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}}{3^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} \times 2^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+2}} \left(\frac{|\ell_1| + |\ell_2| + |\ell_3| + |\ell_s|}{2} \right)! \quad (4.73)$$

$$\mathcal{E}_{0(\ell_1,p_1)} \mathcal{E}_{0(\ell_2,p_2)} \mathcal{E}_{0(\ell_3,p_3)} \mathcal{E}_{0(\ell_s,p_s)} \delta(\ell_s + \ell_1 - \ell_2 - \ell_3)$$

$$\sum_{h=0}^{p_1+p_2} \sum_{h'=0}^{h+p_3} (-1)^{h'-p_1-p_2-p_3}$$

$$\sum_{k=0}^h \binom{|\ell_2| + p_2}{p_1 - k} \binom{|\ell_1| + p_1}{p_2 - h + k} \binom{h}{k} \sum_{k'=0}^{h'} \binom{|\ell_3| + p_3}{h - k'} \binom{|\ell_1| + |\ell_2| + h}{p_3 - h' + k'} \binom{h'}{k'}$$

$$\sum_{J=0}^{h'} \binom{|\ell_1| + |\ell_2| + |\ell_3| + h'}{J} \frac{2^J}{3^{h'}}$$

$$\sum_{H=0}^{h'-J+p_s} (-1)^{H-h'+J-p_s} \left(\frac{\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} - 1 + H}{H} \right)$$

$$\sum_{K=0}^H \binom{|\ell_s| + p_s}{h' - J - K} \binom{h' - J + |\ell_1| + |\ell_2| + |\ell_3|}{p_s - H + K} \binom{H}{K}$$

Ce dernier terme correspond au coefficient $C_{p_s}^{\ell_s}$ présenté dans la section précédente par l'équation 4.8 sans la dépendance temporelle $A(t)$ (ceci par souci de clarté puisqu'on ne s'intéresse ici à la forme spatiale du champ généré par la polarisation du troisième ordre). Nous avons donc trouvé une expression analytique pour ces coefficients nous permettant donc d'exprimer le signal généré par mélange d'onde en somme de mode de Laguerre-Gauss dans le cas général.

4.3.4 Exemples et interprétations

Trois faisceaux gaussiens

Prenons le cas de trois faisceaux gaussiens : $p_1 = 0$, $p_2 = 0$, $p_3 = 0$, $\ell_1 = 0$, $\ell_2 = 0$, $\ell_3 = 0$,

$$\begin{aligned} & \int_0^\infty r dr \int_0^{2\pi} d\phi P^{(3)}(r, \phi, 0) \cdot \left(u_{\ell_s p_s}^{LG}(\sqrt{3}r, \phi, 0) \right)^* \\ &= \frac{(\sqrt{3})^{1/2}}{12} \\ & \mathcal{E}_{0(0,0)} \mathcal{E}_{0(0,0)} \mathcal{E}_{0(0,0)} \mathcal{E}_{0(0,p_s)} \delta(\ell_s) \end{aligned} \quad (4.74)$$

$$\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (4.75)$$

$$\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix}$$

$$\sum_{H=0}^{p_s} (-1)^{H-p_s} \binom{H-1}{H}$$

$$\sum_{K=0}^H \begin{pmatrix} p_s \\ -K \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ p_s - H + K \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H \\ K \end{pmatrix}$$

Le coefficient binomial impliquant $-K$ ne garde que la valeur $K = 0$

$$\begin{aligned} & \int_0^\infty r dr \int_0^{2\pi} d\phi P^{(3)}(r, \phi, 0) \cdot \left(u_{\ell_s p_s}^{LG}(\sqrt{3}r, \phi, 0) \right)^* \\ &= \frac{(\sqrt{3})^{1/2}}{12} \\ & \mathcal{E}_{0(0,0)} \mathcal{E}_{0(0,0)} \mathcal{E}_{0(0,0)} \mathcal{E}_{0(0,p_s)} \delta(\ell_s) \end{aligned} \quad (4.76)$$

$$\sum_{H=0}^{p_s} (-1)^{H-p_s} \binom{p_s-1}{p_s}$$

$$\begin{pmatrix} p_s \\ 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} p_s \\ 0 \end{pmatrix}$$

$$= \frac{(\sqrt{3})^{1/2}}{12}$$

$$\mathcal{E}_{0(0,0)} \mathcal{E}_{0(0,0)} \mathcal{E}_{0(0,0)} \mathcal{E}_{0(0,p_s)} \delta(\ell_s) \begin{pmatrix} p_s - 1 \\ p_s \end{pmatrix}$$

Comme

$$\begin{pmatrix} p_s - 1 \\ p_s \end{pmatrix} = \delta_{p_s 0} \quad (4.77)$$

on obtient

$$\int_0^\infty r dr \int_0^{2\pi} d\phi P^{(3)}(r, \phi, 0) \cdot \left(u_{\ell_s p_s}^{LG}(\sqrt{3}r, \phi, 0) \right)^* = \frac{(\sqrt{3})^{1/2}}{12} (\mathcal{E}_{0(0,0)})^4 \delta(\ell_s) \cdot \delta_{p_s 0}$$

l'équation 4.8 en $z = 0$ nous donne dans ce cas (avec $w_{0(s)} = 1/\sqrt{3}$) dans une forme simplifiée :

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_s(r) &= e^{-3r^2} \sum_{p_s, \ell_s} (-1)^{p_s} C_{p_s}^{\ell_s} \left(r\sqrt{6} \right)^{|\ell_s|} L_{p_s}^{(\ell_s)}(6r^2) e^{i\ell_s \phi} + C.C \\ &= e^{-3r^2} \frac{\sqrt{3}^{1/2}}{12} \end{aligned} \quad (4.78)$$

i.e. une gaussienne, bien sûre.

Nous pouvons vérifier aussi que l'expression précédente 4.74 avec $p_1 = p_2 = p_3 = 0$ nous permet bien de retrouver le résultat trouvé dans la section précédente.

STED

La microscopie STED permet d'atteindre des résolution sub-diffraction par l'utilisation de la non-linéarité de l'émission stimulé présenté en 2.3.3. Celle-ci est réalisée en excitant les fluorophores avec un faisceau focalisé par une lentille dont l'intensité dans le plan focale sera note h_{exc} et d'un faisceau de Laguerre-Gauss avec $l = 1$ et $p = 0$, appelé faisceau STED, qui a pour but d'inhiber la fluorescence sur les bords extérieur de h_{exc} . Déterminons l'extension spatiale effective du microscope de fluorescence STED. Tout d'abord nous savons que l'excitation est limité par la diffraction, donc h_{exc} sera décrit par une figure de Airy : $h_{exc}(x) = cste \left(\frac{2J_1(x)}{x} \right)^2$ où $x = 2\pi r \frac{O.N.}{\lambda_{exc}}$ est l'unité de mesure dans le plan focale. L'intensité effective dans le plan focale est donné par $h_{eff}(x) = h_{exc}(x) \cdot n_2$ où n_2 correspond à la population (normalisée) encore dans l'état excité après le faisceau STED. Or, nous savons, [56], que la capacité de fluorescence des molécules décroît avec e^{-I_{STED}/I_s} où I_s est l'intensité de saturation de fluorescence des molécules étudiées. Le nombre de molécules encore dans l'état excité (c'est à dire pouvant encore émettre de la fluorescence) est alors proportionnel à e^{-I_{STED}/I_s} . Pour $I_{STED} \leq I_s$, $e^{-I_{STED}/I_s} \approx 1 - (I_{STED}/I_s) + (I_{STED}/I_s)^2 - (I_{STED}/I_s)^3$ où on voit apparaître des puissances de l'intensité STED, c'est à dire des non-linéarités. Celles-ci seront importantes au centre du faisceau STED tandis que sur l'anneau du faisceau STED on choisit $I_{STED} \gg I_s$ afin que sur les bords externes du faisceau d'excitation la majorité des fluorophores soient éteints. Pour s'en rendre compte : nous avons tracé $h_{exc}(x)$ (en vert sur la figure 4.3) et $h_{eff}(x) = h_{exc}(x) \cdot e^{-I_{STED}/I_s}$ en prenant $I_{STED}^{max} \gg I_s \gg h_{exc}^{max}$ (en bleu sur la figure 4.3). On voit clairement sur la figure 4.3 que le faisceau STED a effectivement permis d'observer de la fluorescence sur une zone spatiale beaucoup plus petite que celle donnée par h_{exc} .

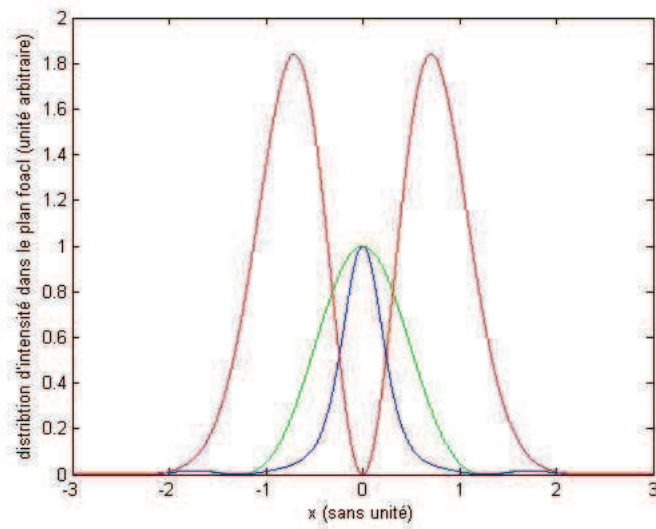


FIGURE 4.3 - en rouge le faisceau STED d'intensité $I_{STED} = 10x^2.e^{-2x^2}$, en vert l'intensité d'excitation $h_{exc}(x) = \left(\frac{2J_1(3x)}{3x}\right)^2$ et en bleu $h_{eff}(x) = h_{exc}(x).e^{-I_{STED}/I_s}$

Chapitre 5

Échantillon étudié : puits quantique de CdTe/CdZnTe

Afin de comprendre les propriétés optiques du puits quantique de CdTe/CdZnTe utilisé dans nos expériences, il est nécessaire de comprendre les propriétés électroniques des matériaux massifs correspondants. Ces semi-conducteurs ont des « gaps » directs avec des propriétés optiques très intéressantes en bord de bande. Ce chapitre rappelle les concepts de base de la structure de bande des semi-conducteurs II-VI de structure blende de zinc, que sont le tellure de cadmium (CdTe) et le tellure de zinc cadmium (CdZnTe), pour ensuite décrire la structure de bande du puits quantique et comprendre ses propriétés optiques.

5.1 Propriétés générales des matériaux massifs CdTe et CdZnTe

5.1.1 Structure cristallographique

Le cadmium et le zinc ont pour configuration électronique $[\text{Kr}]4d^{10}5s^2$ et $[\text{Ar}]3d^{10}4s^2$, respectivement, semblables à celles des atomes de la deuxième colonne de la classification périodique. Le tellure appartient quant à lui à la sixième colonne, sa configuration électronique s'écrit $[\text{Kr}]4d^{10}5s^25p^4$. Les composés CdTe ou CdZnTe sont alors appelés des semi-conducteurs II-VI. Ces composés cristallisent selon une structure type blende de zinc (figure 5.1). Cette structure, qui s'apparente à celle du diamant, est constituée de deux sous-réseaux cubiques à faces centrées formés par les atomes de Cd d'une part et de Te d'autre part, décalés l'un par rapport à l'autre d'un quart de la grande diagonale du cube. Chaque atome de cadmium (respectivement de tellure) est donc situé dans un environnement tétraédrique formé par ses quatre premiers voisins de tellure

(respectivement cadmium). Dans le composé $Cd_{1-x}Zn_xTe$ une fraction x des atomes de cadmium est remplacée aléatoirement par des atomes de zinc.

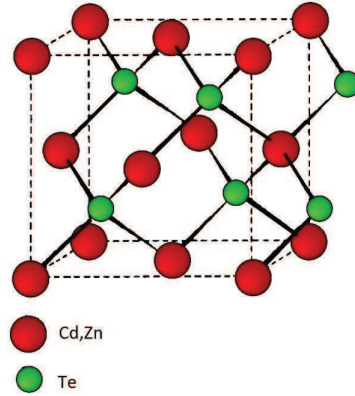


FIGURE 5.1 – Structure cristalline de type blende de zinc.

5.1.2 Structure de bande

Le cristal blende de zinc possède une structure de bande représentée sur la figure 5.2. Le minimum absolu de la bande de conduction et le maximum absolu de la bande de valence du semi-conducteur CdTe sont au centre de la zone de Brillouin (point Γ). Le fort couplage spin-orbite lève partiellement la dégénérescence de la bande de valence en deux groupes de niveaux : un quadruplet de symétrie Γ_8 (spin effectif $j = l + s = 3/2$) correspondant aux bandes de trous lourds ($j_z = \pm 3/2$) et de trous légers ($j_z = \pm 1/2$), et un doublet de symétrie Γ_7 (spin effectif $j = 1/2$) décalé de Δ_{so} , appelé bande de *split-off* ($j_z = \pm 1/2$). Chacune de ces bandes est deux fois dégénérée. La différence entre les extrema de la bande de valence et de conduction ($\Gamma_6 - \Gamma_8$), notée E_g , représente le gap fondamental ou largeur de bande interdite.

La valeur du gap fondamental pour CdTe est $E_g(CdTe) = 1.595eV$ à $T = 1.8K$ [20]; pour $Cd_{1-x}Zn_xTe$ la valeur dépend de la fraction de zinc remplaçant les atomes de cadmium, on trouve dans la littérature $E_g(Cd_{1-x}Zn_xTe) = 1.606 + 0.525x + 0.260x^2$ [42]. L'échantillon utilisé ici correspond à $x = 0.05$, ce qui nous donne $E_g(Cd_{1-x}Zn_xTe) = 1.633eV$ (à $T = 1.8K$).

5.1.3 Les excitons

Dans les semi-conducteurs, l'absorption d'un photon d'énergie supérieure ou égale à la largeur de bande interdite provoque la transition d'un électron depuis la bande de valence vers la bande de conduction. L'électron ainsi excité laisse une lacune, appelée trou, dans la bande de valence, qui se comporte comme un porteur de charge positive.

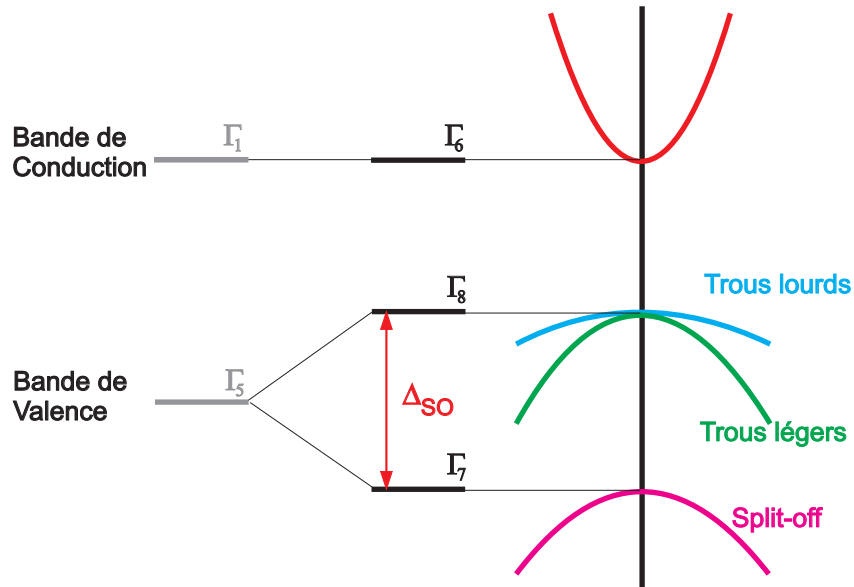


FIGURE 5.2 – Structure de bande d'un semi-conducteur blende de zinc au centre de la zone de Brillouin.

Une paire électron-trou est donc photocréée. L'électron, de charge opposée, interagit avec le trou par interaction coulombienne. La paire électron-trou présente alors, en analogie avec l'atome d'hydrogène, des états liés et se nomme exciton [41]. La présence des excitons induit d'importants effets sur les propriétés optiques des semi-conducteurs. Ils se manifestent en tant que pics résonants dans les spectres d'absorption et de luminescence. Les premières théories d'excitons ont été formulées par Frenkel [19] et Wannier [67] dans les années 30. Dès lors, deux différents types d'excitons ont été identifiés : ceux où la séparation électron-trou est grande (excitons de Wannier-Mott) et ceux où elle est petite (excitons de Frenkel) comparée au paramètre de maille du cristal (distance inter-atomique). Dans les semi-conducteurs, nous sommes concernés par les excitons de Wannier-Mott. Plaçons nous dans l'approximation de la masse effective, prenons le cas d'un semi-conducteur massif à bandes de conduction et de valence non dégénérées et négligeons l'interaction d'échange électron-trou. Le spectre d'énergie d'un exciton est le spectre des états liés de la paire interagissant via le potentiel coulombien :

$$E_{ex}(\mathbf{K}, n) = E_g - E_{ex} \frac{1}{n^2} + \frac{\hbar^2 \mathbf{K}^2}{2 M} \quad (5.1)$$

avec n le nombre quantique principal, $M = m_e + m_h$ avec m_e et m_h les masses effectives de l'électron et du trou, respectivement, et \mathbf{K} la masse et le vecteur d'onde de son centre de masse, m_0 étant la masse de l'électron libre.

L'énergie de l'état fondamental est donc diminuée, par rapport à celle du gap dans le matériau massif E_g , de l'énergie de liaison excitonique :

$$E_{ex} = R_y \frac{m_r}{m_0} \frac{1}{\epsilon_r^2}, \quad (5.2)$$

où R_y est l'énergie de Rydberg qui vaut $13.6eV$, $m_r = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h}$ est la masse relative de l'exciton, et où ϵ_r est la fonction diélectrique relative du milieu. Ainsi au centre de la zone de Brillouin (au point Γ), la création d'excitons implique des pics résonnants aux énergies $E_{n_B} = E_g - \frac{E_{ex}^b}{n_B^2}$. Spatialement, l'exciton est caractérisé par son pseudo rayon de Bohr a_{ex} , qui est la distance moyenne entre l'électron et le trou, tel que :

$$a_{ex} = \frac{\epsilon_r}{m_r} a_B \quad (5.3)$$

où a_B est le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène ($5.2910^{-11}m$). Enfin, la fonction d'onde excitonique s'écrit :

$$\Phi_{ex}(r_e, r_h) = \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \varphi_e(\mathbf{r}_e) \varphi_h(\mathbf{r}_h) \phi_{nl_m}(\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h) e^{i\mathbf{K} \cdot \mathbf{R}}, \quad (5.4)$$

avec $\frac{1}{\sqrt{\Omega}}$ un facteur de normalisation, $\varphi_e(r_e)$ et $\varphi_h(r_h)$ les fonctions d'onde de l'électron et du trou, respectivement, $\mathbf{R} = (m_e \mathbf{r}_e + m_h \mathbf{r}_h) / (m_e + m_h)$ la position du centre de masse où \mathbf{r}_e et \mathbf{r}_h décrivent les mouvements de l'électron et du trou. $\phi_{nl_m}(\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h)$ est la fonction enveloppe de l'exciton décrivant le mouvement relatif de l'électron et du trou. Dans un semi-conducteur massif, les fonctions d'ondes de l'électron et du trou s'écrivent, d'après le théorème de Bloch, de la manière suivante :

$$\varphi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \quad (5.5)$$

où $u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ est une fonction qui possède la périodicité du cristal. Ainsi, les excitons de Wannier-Mott sont des états délocalisés et peuvent se déplacer librement dans le cristal. Lorsque la dimension du semi-conducteur est réduite, comme dans un puits quantique, les fonctions d'ondes de l'électron et du trou seront modifiées, ce qui impliquera des changements dans le spectre d'énergie des excitons, cela sera l'objet de la prochaine section.

5.2 Description de l'échantillon

5.2.1 Croissance épitaxiale par jet moléculaire de puits quantique

Les puits quantiques sont des exemples d'hétérostructures semi-conductrices. Ces hétérostructures sont des cristaux artificiels qui contiennent des couches de différents

matériaux déposés sur un substrat cristallin. L'hétérostructure étudiée ici a été fabriquée par épitaxie par jets moléculaires (MEB) au laboratoire de Physique des matériaux et microstructure de Grenoble. Cette méthode de croissance a été développée pour la croissance cristalline des semi-conducteurs. Elle consiste à envoyer un ou plusieurs jets atomiques ou moléculaires vers un substrat monocristallin préalablement choisi pour réaliser une croissance épitaxiale. Cette technique sous ultra-vide repose sur l'évaporation séquentielle des constituants élémentaires placés dans des cellules à effusion de Kundsén. L'avantage de cette méthode repose sur la possibilité de contrôle et de caractérisation de la croissance en temps réel grâce à l'utilisation *in situ* de la diffraction d'électrons de haute énergie en incidence rasante (RHEED). Par contre, en raison de la faible vitesse de croissance, typiquement inférieure à $2\mu\text{m}/h$, la MBE ne permet pas une croissance aisée de couches épitaxiales d'épaisseurs supérieures à quelques microns mais elle est très bien adaptée à l'élaboration d'empilements de couches minces de différents matériaux. L'échantillon utilisé ici, appelé Z1044, est composé de 307 mono-couches de $\text{Cd}_{0.9}\text{Zn}_{0.1}\text{Te}$ puis de 125 mono-couches de CdTe et d'encore 307 mono-couches de $\text{Cd}_{0.9}\text{Zn}_{0.1}\text{Te}$. Sa structure est décrite figure 5.3.

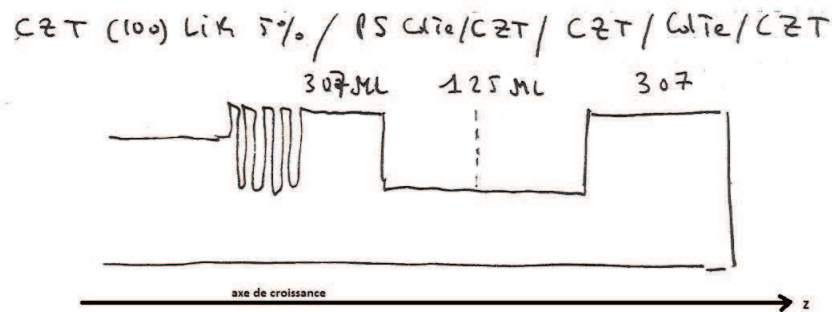


FIGURE 5.3 – Schéma de la structure d'un puits quantique de $\text{CdTe}/\text{CdZnTe}$.

La différence d'énergie entre les « gaps » du CdTe et du $\text{Cd}_{0.9}\text{Zn}_{0.1}\text{Te}$ implique la formation d'un puits quantique (figure 5.4). En effet, l'inclusion d'une couche nanométrique d'épaisseur d de bande interdite relativement petite entre deux couches de bande interdite plus élevée donne lieu à un confinement bidimensionnel des porteurs de charge si d est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde de Broglie $\lambda_{deB} = \sqrt{\frac{2\pi\hbar^2}{mk_B T}}$ caractéristique du mouvement thermique des porteurs. À température ambiante, $\lambda_{deB} = 5\text{nm}$. Or, l'échantillon étudié ici possède un puits de largeur $d = 40\text{nm}$, ce qui impliquera de travailler à basse température, environ 20 Kelvin. À cette température, le mouvement des porteurs sera quantifié dans la direction de croissance du puits mais libre dans le plan perpendiculaire à celle-ci. Ceci aura des conséquences sur les propriétés optiques de l'échantillon. Avant de s'intéresser à ces conséquences, notons qu'entre le substrat et les premières mono-couches de CdTe un

super-réseau de CdTe/Cd_{0.95}Zn_{0.05}Te est inséré. Il a pour but de bloquer les dislocations engendrées par la différence de maille entre le substrat de Cd_{0.95}Zn_{0.05}Te et la barrière de Cd_{0.9}Zn_{0.1}Te afin d'obtenir un puits quantique de bonne qualité. Ce super-réseau est de très courte période (2 à 3nm) comparée au puits qui fait 40nm de large. Les énergies de transitions optique dans ce super-réseau sont bien supérieures à celles du puits quantiques. Ce super-réseau permet donc d'isoler le puits quantique des contraintes mécaniques imposées par le substrat de Cd_{0.95}Zn_{0.05}Te car il n'a pas la même structure cristalline que les mono-couches de Cd_{0.9}Zn_{0.1}Te. Ces contraintes modifieraient la hauteur des barrières du puits [13].

5.2.2 Structure de bande et propriétés optiques

La réduction de dimensionnalité du semi-conducteur implique un changement des niveaux électroniques d'une part et de l'énergie de liaison de l'exciton d'autres part. En effet, dans un puits quantique, les électrons et des trous sont libres de se déplacer dans le plan (x, y) mais ils sont confinés dans la direction z . La fonction d'onde d'un électron s'écrira alors sous la forme :

$$\varphi(x, y, z) = \varphi(x, y)\psi(z) \quad (5.6)$$

où $\varphi(x, y)$ a le même forme que l'expression donnée dans l'équation 5.5 restreinte au plan (x, y) . $\psi(z)$ est déterminé en résolvant l'équation de Schrödinger pour la coordonnée z dans un puits de largeur d et dont les barrières sont de hauteur infinie. La solution s'écrit :

$$\psi_n(z) = \sqrt{\frac{2}{d}} \sin\left(\frac{n\pi}{d}z + \frac{n\pi}{2}\right) \quad (5.7)$$

Ce type d'onde décrit une onde stationnaire à l'intérieur du puits quantique avec des nœuds aux interfaces (ces nœuds se transforment en ondes évanescentes lorsque l'on considère un puits dont les barrières ont une hauteur finie). L'énergie qui correspond au n^{ieme} niveau est donnée par :

$$E_n = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left(\frac{n\pi}{d}\right)^2, \quad (5.8)$$

avec m^* la masse effective de l'électron ou du trou. Ainsi l'énergie totale pour un électron ou pour un trou dans le n^{ieme} niveau quantique est :

$$E(n, \mathbf{k}_{x,y}) = E_n + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}_{x,y}^2}{2m^*} \quad (5.9)$$

$k_{x,y}$ est associé au mouvement libre des porteurs dans le plan (x, y) .

La figure 5.4 montre schématiquement la série des niveaux d'énergie des porteurs dans un puits quantique.

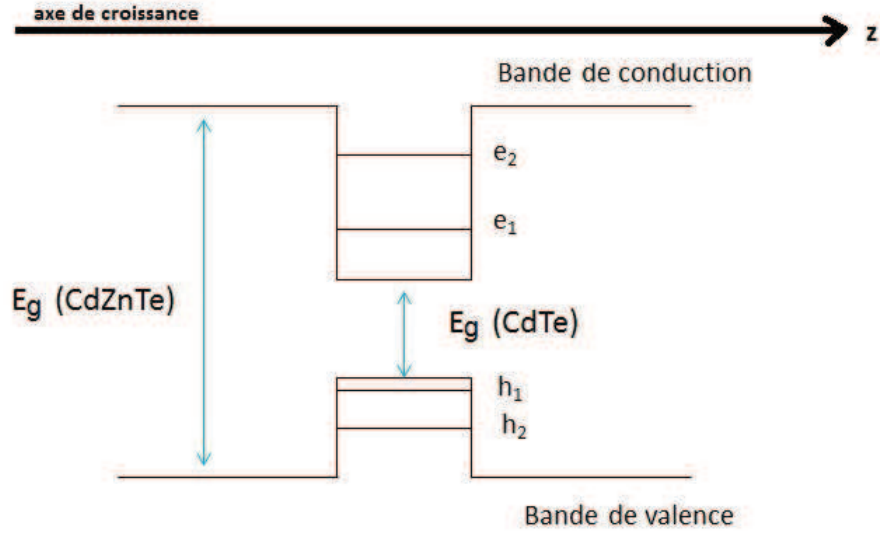


FIGURE 5.4 – Représentation schématique des niveaux d'énergie des porteurs dans un puits quantique.

Considérons maintenant l'absorption d'un photon, en ne prenant tout d'abord pas en compte l'effet d'interaction excitonique, on l'appellera alors absorption interbandes. Un photon pourra exciter un électron de l'état fondamental de la bande de valence (le niveau $n = 1$ du trou lourd) au premier niveau excité de la bande de conduction (au point Γ) s'il possède l'énergie :

$$\hbar\omega_{cv} = E_g + E_{hh1} + E_{e1} = E^* \quad (5.10)$$

avec E_g l'énergie du gap dans le matériau massif, E_{hh1} l'énergie du trou lourd sur le niveau $n = 1$ de la bande de valence et E_{e1} l'énergie de l'électron sur le niveau $n = 1$ de la bande de conduction. Le coefficient d'absorption $K(\omega)$ est décrit par l'expression suivante :

$$K(\omega) = \frac{1}{n_B c} \omega \epsilon_2(\omega), \quad (5.11)$$

avec n_B l'indice de réfraction du matériau, c la célérité de la lumière et $\epsilon_2(\omega)$ la partie imaginaire de la fonction diélectrique du matériau donnée par la relation :

$$\epsilon_2(\omega) = \frac{e^2 \pi \hbar}{2m_0 \epsilon_0 \omega V} F_{cv}(\omega) D_{cv}(\omega), \quad (5.12)$$

où e est la charge élémentaire, V le volume du matériau. $D_{cv}(\omega)$ est la densité d'état conjointe d'état qui chiffre le nombre d'état se correspondant verticalement (entre électron et trou) dans l'espace des \mathbf{k} avec une différence d'énergie constante égale à $\hbar\omega$.

$F_{cv}(\omega)$ est la force d'oscillateur qui s'exprime au point Γ selon :

$$F_{cv}(\omega) = \frac{2}{m_0 \hbar \omega_{cv}} |d_{cv}|^2, \quad (5.13)$$

avec $\mathbf{d}_{cv} = \langle c | \mathbf{p} \cdot \mathbf{u} | v \rangle$, où $|c\rangle$ et $|v\rangle$ représente les états final et initial (donnés par $\varphi(x, y, z)$), \mathbf{p} l'opérateur impulsion et \mathbf{u} le vecteur de polarisation de la lumière. Cet élément de matrice est caractéristique du couplage photon-électron, il gouverne les règles de sélection des transitions optiques. Nous ne détaillerons pas ces règles, nous allons nous concentrer ici sur la description des états quantiques qui participent à l'absorption. Celle-ci se caractérise via la densité conjointe d'état $D_{cv}(\omega)$. Sur la figure 5.5, on a représenté le coefficient d'absorption (proportionnelle à la densité d'états des électrons ou des trous) pour une structure 3D et pour une structure 2D. Pour une structure 3D, le nombre d'états participant à l'absorption augmente de façon monotone au delà de l'énergie de la bande interdite suivant une loi en $\sqrt{E - E_g}$ tandis que pour une structure 2D, il augmente en marche d'escalier à partir de $E = E_g + E_{hh1} + E_{e1}$. La réduction de la dimensionnalité du semi-conducteur modifie fortement la signature spectrale de l'interaction lumière-matière. Cet effet est encore plus marqué si on prend en compte les effets excitoniques.

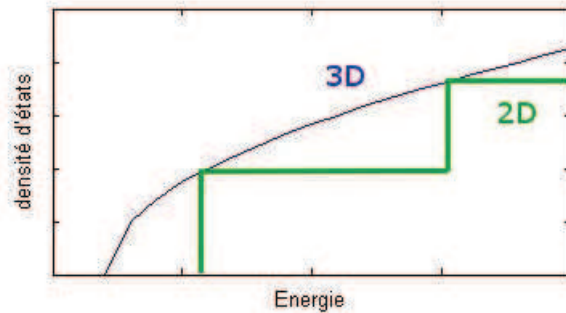


FIGURE 5.5 – Représentation de la densité d'états ou absorption interbandes pour des semi-conducteurs 3D et 2D.

Nous avons déjà vu que l'interaction coulombienne entre l'électron et le trou photo-crées se manifeste par des pics de résonance dans le spectre d'absorption aux énergies données par l'équation 5.1. Dans un puits quantique, le confinement force l'électron et le trou à être plus proches qu'ils ne le seraient dans un semi-conducteur massif et donc augmente le potentiel attractif. Les pics de résonance excitonique apparaissent alors à des énergies inférieures à E^* :

$$E_N = E^* - \frac{E_{ex}}{(N - 1/2)^2}. \quad (5.14)$$

où N est le niveau excitonique considéré.

Cette expression est une approximation basée sur le calcul des états liés de l'atome d'hydrogène en 2D, qui correspondrait à un exciton dans un puits de largeur nulle et de barrières infinies [9] [60]. De la même manière, on peut estimer la force d'oscillateur de ces états discrets et on peut montrer qu'elle est plus importante en 2D qu'en 3D, néanmoins l'amplitude des pics décroît très vite avec N .

La figure 5.6 nous montre plusieurs bords d'absorption excitonique pour différentes dimensionnalités α comprises entre 1 et 3. Le cas $\alpha = 3$ correspond au matériau massif et celui $\alpha = 2$ au puits quantique infini (puits de largeur nulle et de barrières de potentiel infinies). Le zéro des énergie correspond à l'énergie $E^* = E_g + E_{hh1} + E_{e1}$, ainsi l'écart entre l'énergie 0 et l'énergie des pics correspond à l'énergie de liaison excitonique. Elle augmente effectivement lorsque la dimensionnalité diminue. Notons aussi que l'énergie E^* augmente aussi avec le confinement (en augmentant la séparation entre bande de valence et bande de conduction). Mais cette augmentation n'est pas contre-balançée par celle de l'énergie de liaison excitonique $\frac{E_{ex}}{(N-1/2)^2}$.

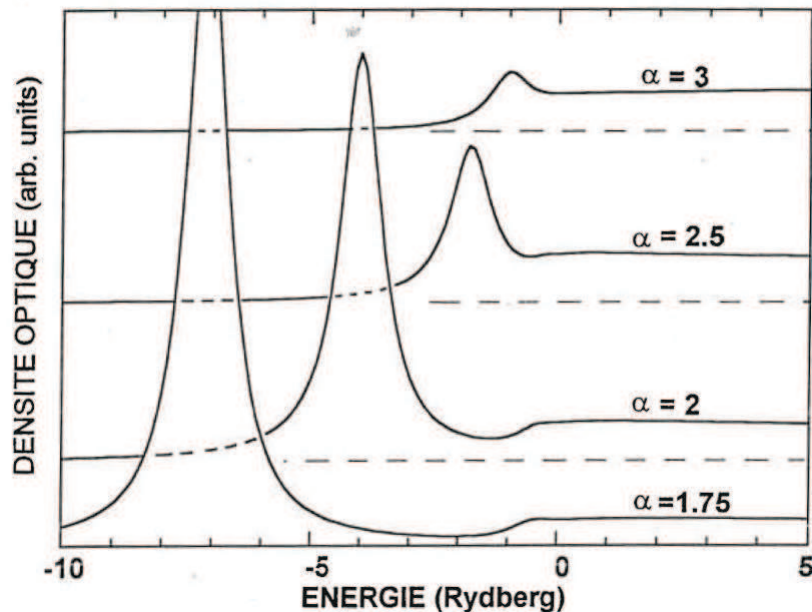


FIGURE 5.6 – Densité optique, ou absorbance, pour différentes valeurs de la dimensionnalité effective en fonction de l'énergie en unité Rydberg Ry 3D (avec $Ry \approx 13.606eV$). Pour faciliter la comparaison, l'énergie $E^* = E_g + E_{hh1} + E_{e1}$ des différentes structures est à l'énergie zéro. Image extraite de [11].

Globalement, lorsque la dimensionnalité diminue, la force d'oscillateur tend à se concentrer sur le niveau excitonique fondamental. L'étude de système de basse dimensionnalité permet donc de disposer d'une susceptibilité diélectrique très intense localisée

sur une résonance (on tend vers un système à 2 niveaux) qui permet donc d'obtenir un signal de mélange à quatre ondes d'intensité considérable.

Le spectre de transmission du puits quantique de CdTe/CdZnTe utilisée ici est montré figure 5.7. Deux pics sont remarquables, ils correspondent à une absorption excitonique (X) et une absorption trionique (un exciton chargé X^- , état lié mettant en jeu deux électrons et un trou) [39]. Ces pics sont d'autant plus marqués que la température est basse et donc que le confinement quantique est important. Un spectre

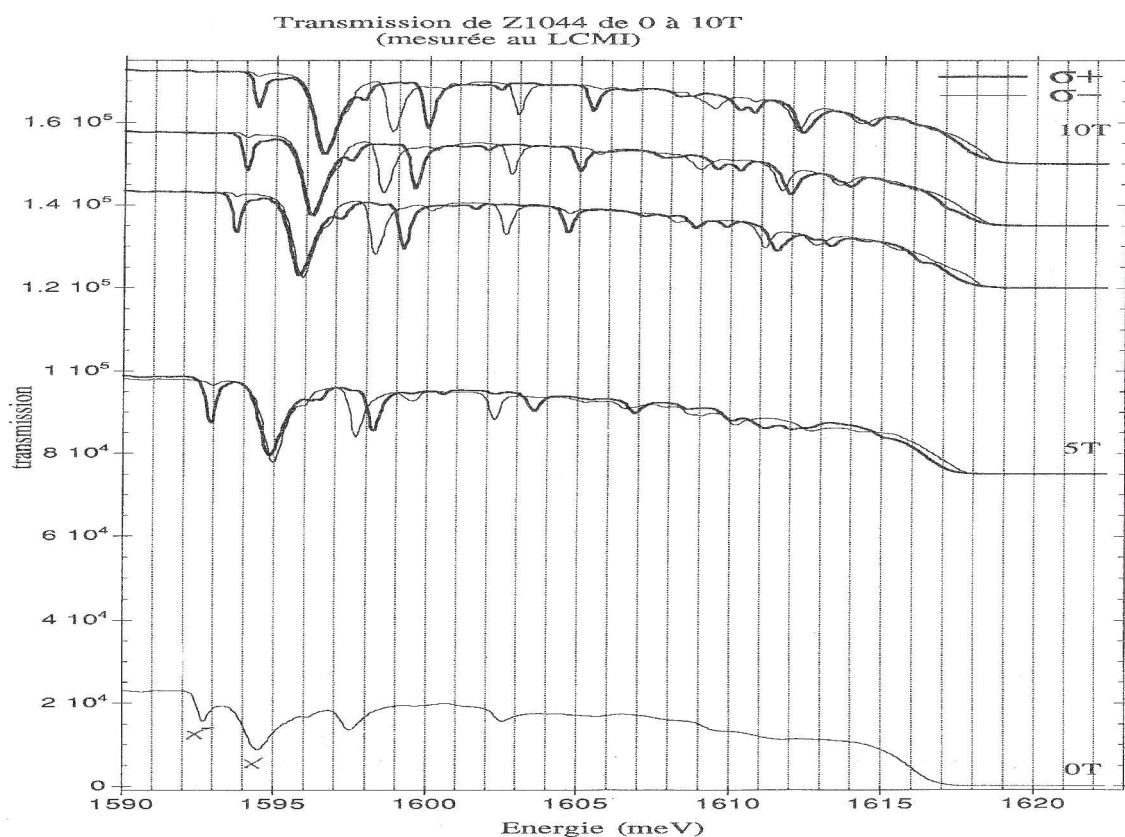


FIGURE 5.7 – Spectre de transmission de l'échantillon Z1044 pour différentes valeurs du champ magnétique appliquée. On observe à champ nul les résonances du trion X^- et de l'exciton neutre X . Image tirée de [39].

de transmission effectué avec une puissance de $120\mu W$ à une température de 25 Kelvin montre une résonance excitonique à $777.5nm$, soit $1.6eV$, qui est attribuée à la création d'un trion (X^-).

5.3 Refroidissement de l'échantillon

Le refroidissement est fait avec un cryostat MicroStatHe de l'entreprise Oxford représenté sur la figure 5.8. L'échantillon est placé sur un porte-échantillon de cuivre lié à un doigt froid dont la base est en contact avec une chambre dans laquelle un flux d'hélium liquide évacue la chaleur par conduction thermique. L'hélium, vaporisé au contact de l'échangeur thermique, est extrait par une pompe à membrane isolée de la table optique pour éviter les vibrations. Le pompage est effectué en continu pour assurer la température minimale possible sur l'échantillon tout au long des expériences. Le porte-échantillon se situe dans une chambre isolée dans laquelle la lumière pénètre

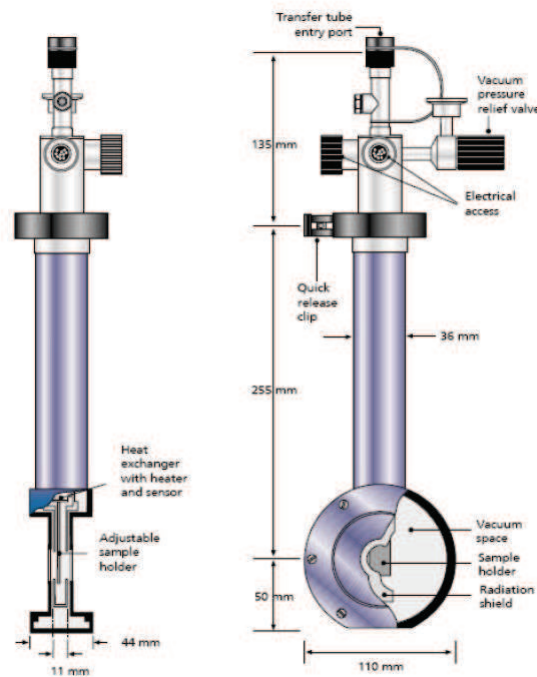


FIGURE 5.8 – Schéma représentatif du cryostat MicroStatHe de chez Oxford

au travers de hublots en silice. Le vide est fait dans cette chambre avant le démarrage du refroidissement par deux pompes à membrane et turbo-moléculaire en série. Le corps du doigt froid exposé dans la chambre de l'échantillon est entouré d'un bouclier thermique limitant le réchauffement par absorption de rayonnement.

Un contrôleur est connecté à une thermo-résistance à la base du doigt froid. L'ensemble mesure la température en temps réel. La place disponible au niveau de l'échantillon impose un étalonnage indépendant de la température entre l'échantillon et la thermo-résistance, on estime alors la température minimale au niveau de l'échantillon à 25K.

Chapitre 6

Expérience de mélange d'ondes en géométrie non-colinéaire

Nous avons tout d'abord effectué une première expérience pour vérifier les résultats théoriques présentés dans le chapitre 4. Nous souhaitons démontrer expérimentalement que les signaux de mélange d'ondes générés dans un échantillon de semi-conducteur de vecteur d'onde $2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$ et $2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$, où \mathbf{k}_a et \mathbf{k}_b sont les vecteurs d'onde des faisceaux excitateurs de moment orbital angulaire l_a et l_b respectivement, possèdent un moment orbital angulaire de valeur $2l_a - l_b$ et $2l_b - l_a$ respectivement.

6.1 Montage expérimental

La figure 6.1 récapitule les chemins optiques des impulsions jusqu'à l'échantillon. Au début de la chaîne optique, un oscillateur génère des impulsions dont chacune est à l'origine d'une paire de faisceaux excitateurs (noté L_a et L_b) et d'une paire de faisceaux de références (R_1 et R_2).

6.1.1 Génération des impulsions

Les impulsions sont générées par un oscillateur commercial Tsunami de marque Spectra Physics. Ce dernier est un laser à blocage de mode dont le milieu amplificateur est un cristal de saphir dopé au titane pompé par un laser continu à $532nm$ d'une puissance moyenne de $5W$. L'émission est centrée à $800nm$. Les impulsions sont émises avec un taux de répétitions de $80MHz$ et ont une durée de $100fs$. Une fraction des impulsions est extraite par un modulateur acousto-optique (*oupulse picker*) dont le fonctionnement est détaillé dans la sous-section suivante, pour obtenir un taux de répétition de $4MHz$ ce qui correspond à avoir une impulsions toutes les $250ns$. En sortie, le faisceau a un profil gaussien et est de polarisation linéaire.

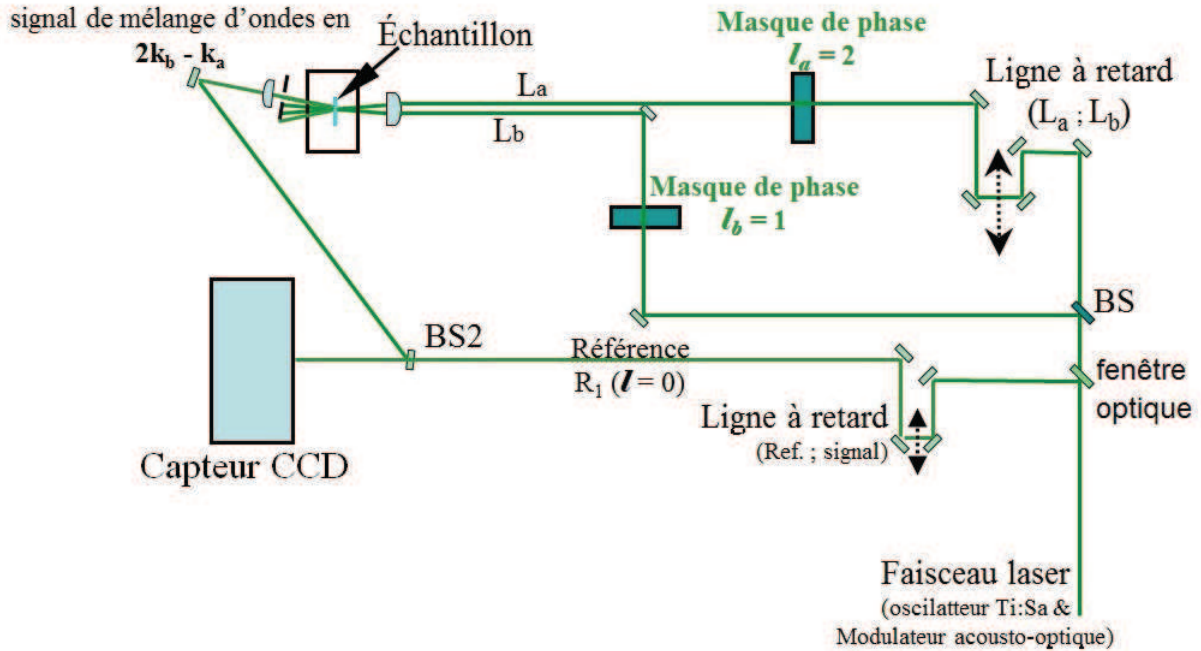


FIGURE 6.1 – Schéma du montage expérimental du mélange à quatre ondes en géométrie non-colinéaire utilisé pour mesurer le moment angulaire orbital du signal généré dans la direction $\mathbf{k}_p = 2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$ par méthode interférométrique. Le montage expérimental pour mesurer le moment angulaire orbital du signal dans la direction $\mathbf{k}_m = 2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$ est le symétrique de celui-ci. BS est un séparateur de faisceau qui divise le faisceau en deux parties L_a et L_b d'égales intensités. L_a passe ensuite par un masque de phase pour former un mode de LG de charge $l_a = 2$. Le deuxième, L_b , devient un mode de charge $l_b = 1$. L_a et L_b sont focalisés sur l'échantillon par une lentille $f = 100\text{mm}$. L_a a alors pour vecteur d'onde \mathbf{k}_a et L_b , \mathbf{k}_b . Après l'échantillon, le signal de mélange d'onde étudié, ici celui de direction $2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$ interfère avec le faisceau de référence R_1 grâce à la deuxième séparatrice de faisceau BS2 afin d'observer leur figure d'interférence sur la caméra CCD refroidie par effet Peltier.

6.1.2 Modulateur acousto-optique

Un modulateur acousto-optique utilise l'effet acousto-optique pour diffracter et ainsi changer le taux de répétitions des impulsions d'un laser impulsif par ondes sonores. Il est composé d'un oscillateur piézo-électrique relié à un morceau de silice. Un signal électrique oscillant force la cellule piézo-électrique à vibrer, ce qui crée des ondes sonores stationnaires dans la silice. La lumière est alors périodiquement diffractée selon la loi de Bragg sur le réseau d'indice formé dans la silice. On récupère en sortie l'ordre 1 de diffraction, l'ordre 0 étant bloqué.

Le signal électrique envoyé à la cellule piézo-électrique est synchronisé avec la cavité

laser via une photodiode placée dans l'oscillateur qui détecte les impulsions émises. Cette synchronisation permet de moduler le temps entre deux ondes sonores, c'est à dire entre deux déflexions du faisceau laser et donc de ne récupérer en sortie du modulateur acousto-optique qu'une impulsion sur N , avec N la fréquence du signal électrique. Dans notre cas $N = 20$, le taux de répétition des impulsions passe donc de $80MHz$, en sortie du laser, à $4MHz$.

6.1.3 Configuration du montage expérimental

Une fois l'impulsion émise, une fenêtre optique est placée sur son chemin optique afin d'extraire deux faisceaux de références R_1 et R_2 (le dernier n'est pas représenté sur le schéma par souci de clarté), l'un provenant de la réflexion sur l'interface air/verre et l'autre de la réflexion sur l'interface verre/air. Ils seront utilisés pour mesurer le moment orbital angulaire de chacun des faisceaux générés. Une ligne à retard est placée sur le trajet de ces deux faisceaux permettant de modifier la longueur de leur chemin optique afin de les rendre synchrones aux signaux de mélange d'ondes que l'on souhaitera caractériser.

Puis l'impulsion est séparée en deux faisceaux L_a et L_b d'égales intensités grâce à une séparatrice (BS). L_a passe alors par une ligne à retard qui permet de varier la différence de chemin optique entre L_a et L_b . Des masques de phase sont ensuite utilisés pour transformer chacun de ces faisceaux en mode de Laguerre-Gauss, L_a et L_b acquièrent alors des charges $l_a = 2$ et $l_b = 1$ respectivement. Enfin, les faisceaux L_a et L_b sont focalisés sur l'échantillon par une lentille de focale $f = 100mm$. Ils arrivent alors sur l'échantillon avec des directions différentes. L_a aura pour vecteur d'onde \mathbf{k}_a et L_b , \mathbf{k}_b . La lentille de focalisation a été choisie de sorte à ce que l'angle entre L_a et L_b soit faible (l'approximation paraxiale doit être vérifiée), nous avons mesuré un angle d'environ 10 degrés.

6.1.4 Contrôle du retard, précision des mesures résolues en temps

La ligne à retard utilisée pour faire varier la différence de chemin optique entre L_a et L_b est une platine de translation micrométrique M-ILS 250CC de marque Newport Corporation. Elle est pilotée par un contrôleur MM4006 de la même société interfacé à l'ordinateur via un protocole GPIB. Son pas minimal est de $1\mu m \pm 0.5\mu m$, la variation minimale de retard est donc d'environ $7fs$. L'amplitude maximale de la ligne est de $250mm$ ce qui lui permet d'atteindre théoriquement un retard maximal de $1.7ns$. En pratique le retard maximal utilisable est inférieur à $1ns$.

La différence de chemin optique entre L_a et L_b est directement proportionnelle au retard $\Delta(t)$ lui-même défini par la position de la ligne et qui peut s'exprimer par $\Delta(t) = t(L_b) - t(L_a)$.

6.2 Détections et caractérisations des faisceaux générés

Comme nous l'avons vu au premier chapitre, les faisceaux de mélanges d'ondes sont générés dans des directions particulières vérifiant l'accord de phase. La théorie prévoit la génération d'un signal dans la direction $\mathbf{k}_m = 2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$ provenant de l'auto-diffraction du faisceau L_a sur le réseau d'indice caractérisé par son pas $\frac{2\pi}{k_g}$ avec $\mathbf{k}_g = \mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$, ce signal apparaîtra alors dans le cas où $t(L_b) \leq t(L_a)$. De manière symétrique, pour $t(L_b) \geq t(L_a)$, on devrait observer la décroissance du signal dans la direction $\mathbf{k}_p = 2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$.

6.2.1 Imagerie et mesure du moment orbital angulaire des faisceaux générés

Pour $t(L_a) = t(L_b)$, l'ensemble des signaux sont visibles. La photo 6.2 montre le profil transverse d'intensité des quatre faisceaux juste après l'échantillon, on observe le profil des faisceaux excitateurs L_a et L_b transmis par l'échantillon et celui des signaux générés dans l'échantillon. La photo a été prise en plaçant un écran noir à quelques centimètres après l'échantillon avec un appareil Reflex en utilisant un long temps de pause. A gauche, le signal de direction $\mathbf{k}_m = 2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$ a une forme annulaire alors que celui de droite, de direction $\mathbf{k}_p = 2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$, semble correspondre au profil d'un faisceau gaussien. Afin de déterminer exactement la valeur de la charge du moment orbital angulaire de chacun des faisceaux générés nous les faisons interférer avec des faisceaux de référence, le motif d'interférence nous permettra alors de déterminer la valeur de leur moment orbital angulaire comme cela a été expliqué dans la section 3.3. Pour ce faire, une deuxième séparatrice (BS2) recombine le signal de mélange d'onde étudié et le faisceau de référence correspondant. La figure 6.3 montre le profil d'interférence entre le signal de direction $\mathbf{k}_m = 2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$ et le faisceau de référence R_2 . On observe une fourche à 4 dents, la charge du moment orbitale angulaire l_m du signal généré dans la direction $\mathbf{k}_m = 2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$ est donc 3. On a ainsi, comme la théorie le prévoit, $l_m = 2l_a - l_b$. De la même manière, nous avons enregistré l'interférence entre le signal de direction \mathbf{k}_p et le faisceau de référence R_1 . Nous n'observons que des franges parallèles et aucune fourche, voir figure 6.4. Ainsi $l_p = 0$, comme prédit $l_p = 2l_b - l_a$. Les résultats présentés ici ont été effectués avec une puissance lumineuse d'excitation d'environ $3mW$

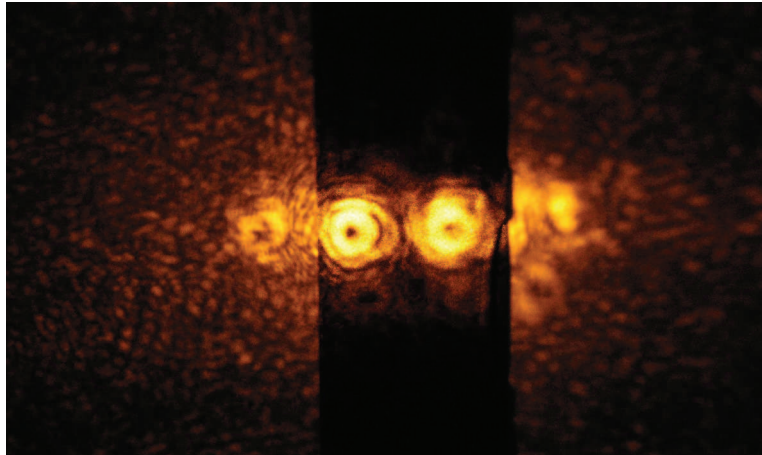


FIGURE 6.2 – Profil transverse d'intensité des faisceaux après l'échantillon. De gauche à droite : signaux dans les directions $\mathbf{k}_m = 2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$, \mathbf{k}_a , \mathbf{k}_b et $\mathbf{k}_p = 2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$.

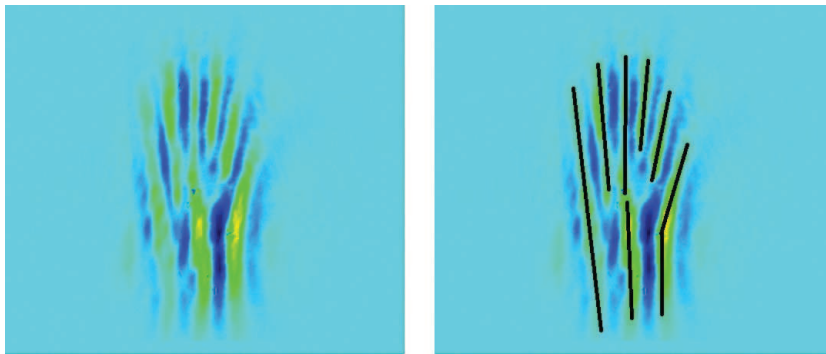


FIGURE 6.3 – A gauche, l'image de la figure d'interférence entre le signal généré dans la direction $2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$ avec un faisceau de référence avec une puissance d'excitation de 3mW. A droite, la même image sur laquelle est tracée les différentes franges pour faciliter le comptage.

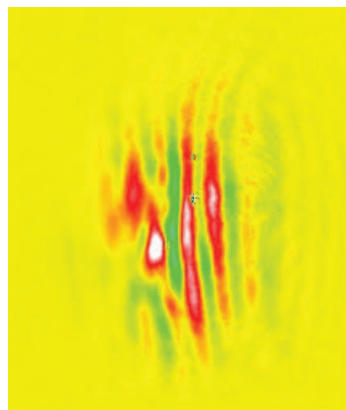


FIGURE 6.4 – Image de la figure d'interférence entre le signal généré dans la direction $2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$ avec un faisceau de référence avec une puissance lumineuse d'excitation de 3mW.

(mesurée au niveau de la face d'entrée du cryostat). Cette forte puissance nous a permis d'observer facilement les profils transverse d'intensité des faisceaux après l'échantillon (6.2) mais elle ne nous permet pas d'effectuer des mesures résolues en temps. En effet, à cette puissance la réponse du puits quantique de CdTe/CdZnTe est saturée et on ne peut pas mesurer les décroissances temporelles des signaux de mélange à quatre ondes, donnant accès au temps T_2 de décroissance des cohérences des excitations créées dans le puits.

Nous avons donc réitéré les mesures de moment orbital angulaire par interférométrie avec une puissance lumineuse d'excitation de $120\mu W$. Sur la figure 6.5 est présentée le profil d'interférence entre le faisceau de direction \mathbf{k}_p et la référence R_1 ; celui-ci ne possède aucune fourche correspondant à $l_p = 2l_b - l_a = 0$. Le motif d'interférence entre le faisceau de direction \mathbf{k}_m et le faisceau de référence R_2 est aussi présenté sur la figure 6.5; il montre 3 fourches simples (c'est à dire avec une seule dent). La mesure donne donc une charge totale de 3 correspondant à la valeur de $2l_a - l_b$. Remarquons que l'on n'observe pas la fourche de charge 3 attendu, nous supposons que cette anomalie est due à des légères modifications des modes de LG des faisceaux pompes par les imperfections des éléments optiques. Ces résultats montrent qu'il y a conservation du

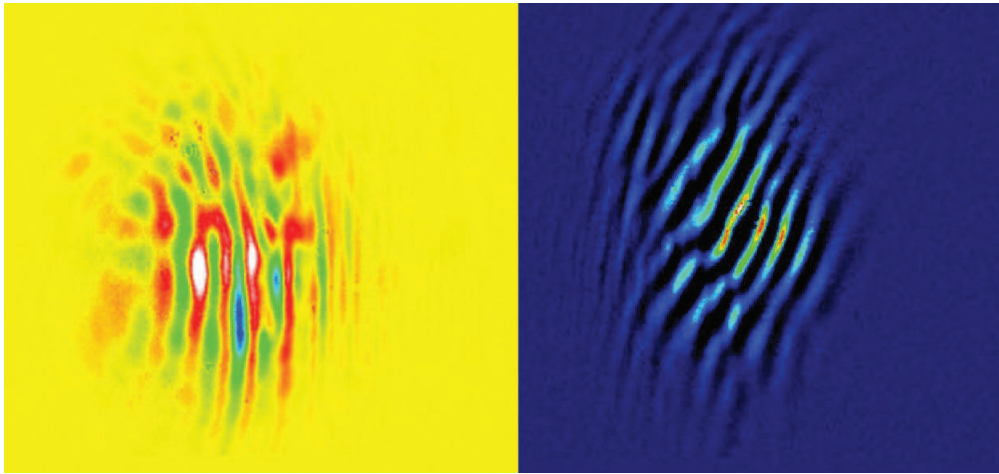


FIGURE 6.5 – A gauche, le profil d'interférence entre le faisceau de direction \mathbf{k}_p et la référence R_1 . A droite, le profil d'interférence entre le faisceau de direction \mathbf{k}_m et le faisceau de référence R_2 . Mesures faites avec une puissance lumineuse d'excitation de $120\mu W$.

moment orbital angulaire lors du processus non-linéaire du mélange à quatre onde. Ainsi à partir de deux modes de Laguerre-Gauss de charge l_a et l_b , deux nouveaux modes sont générés : $l_p = 2l_b - l_a$ et $l_m = 2l_a - l_b$.

6.2.2 Mesures résolues en temps

Pour mesurer la décroissance temporelle des signaux de mélanges d'ondes en fonction du retard $\Delta(t)$ entre les deux impulsions, nous utilisons un spectrophotomètre centré à $777.5nm$ avec une ouverture de fente de $50\mu m$ équipé d'une caméra CCD refroidie par de l'azote liquide sur laquelle on focalise le signal que l'on souhaite mesurer. Un des miroirs de L_b est monté sur un pot vibrant, sa vibration permet de se prémunir des interférences entre la diffusion de L_a et de L_b après l'échantillon. Des obturateurs mécaniques (ou *shutters*) sont placés sur le chemin optique du faisceau L_a et L_b afin d'effectuer des mesures suivant la procédure suivante : elle consiste à enregistrer pour chaque position de la ligne à retard le signal avec (1) L_a et L_b , puis (2) sans L_a , puis (3) sans L_b et enfin (4) sans L_a ni L_b ; un programme procède ensuite à l'opération $(1) - (2) - (3) + (4)$ pour nous donner l'intensité du signal de mélange d'onde, existant uniquement quand L_a et L_b sont présents, sans les parasites générés par L_a seul ou L_b seul. Nous obtenons alors une valeur de l'intensité pour chaque position de la ligne à retard tel que $\Delta(t) = [-2ps, 2ps]$ par pas de $0.05ps$ et pour chaque longueur d'onde. On intègre ensuite le signal entre $777nm$ et $778nm$, puis on le trace en fonction de $\Delta(t)$. Ces mesures ont été faites avec une puissance lumineuse d'excitation de $300\mu W$.

La figure 6.6 montre l'intensité du signal de mélange d'onde dans la direction \mathbf{k}_p à $\Delta(t) = 0$ en fonction de la longueur d'onde. Nous observons sur cette figure la résonance du trion centrée à $777.5nm$ ainsi que celle de l'exciton à environ $776nm$ plus faible (le laser centré à $800nm$ favorise le trion).

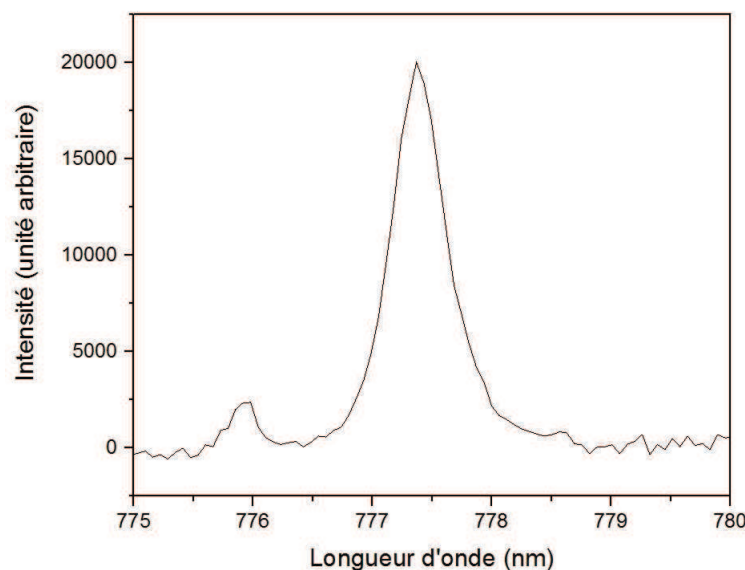


FIGURE 6.6 – Intensité du signal de mélange d'onde à $\Delta(t) = 0$ en fonction de la longueur d'onde.

La figure 6.7 présente l'intensité du signal généré dans la direction \mathbf{k}_p intégrée entre $777nm$ et $778nm$ en fonction du retard. Le signal croît d'abord rapidement pour $\Delta(t) < 0$ puis on observe sa décroissance pour $\Delta(t) > 0$ avec une constante de temps de $0.5ps$.

La figure 6.8 présente l'intensité du signal généré dans la direction \mathbf{k}_m intégrée entre $777nm$ et $778nm$ en fonction du retard $\Delta(t)$ entre les deux impulsions. Le signal croît d'abord rapidement pour $\Delta(t) > 0$ puis il décroît pour $\Delta(t) < 0$ avec une constante de temps de $0.5ps$.

Nous pouvons déjà constater que les décroissances observées sont en accord avec la théorie : le signal de vecteur d'onde $\mathbf{k}_p = 2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$ décroît pour $t(L_b) > t(L_a)$ et le signal de vecteur d'onde $\mathbf{k}_m = 2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$ décroît pour $t(L_b) < t(L_a)$. Les deux temps de décroissance mesurés sont très proches et correspondent à la valeur mesurée avec des faisceaux gaussiens. En effet, la figure 6.9 montre l'intensité du signal de direction \mathbf{k}_p obtenu avec de tels faisceaux intégrée entre $777nm$ et $778nm$ en fonction du retard $\Delta(t)$, une décroissance de constante de temps de $0.5ps$ est mesurée.

Les constantes de temps de décroissance des signaux de mélange d'onde générés par des faisceaux de LG sont en accord avec les résultats obtenus avec des faisceaux gaussiens. Ces constantes de temps correspondent au temps de déphasage des excitations photocréées (ici les trions X^-) $T_2/2$ comme nous l'avons montré en 1.4.1. Nos mesures nous donne donc un temps de déphasage de $1ps$ qui est en accord avec les temps de déphasage mesurés sur des échantillons similaires [21].

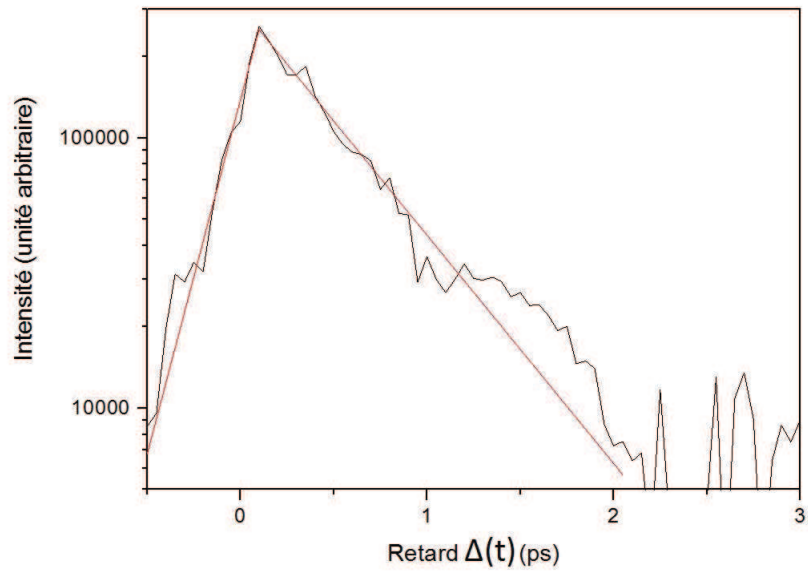


FIGURE 6.7 – Intensité du signal généré dans la direction \mathbf{k}_p intégrée entre 777nm et 778nm en fonction du retard $\Delta(t)$ entre les deux impulsions. Après une augmentation rapide pour $\Delta(t) < 0$, le signal décroît avec une constante de temps de 0.5ps pour $\Delta(t) > 0$.

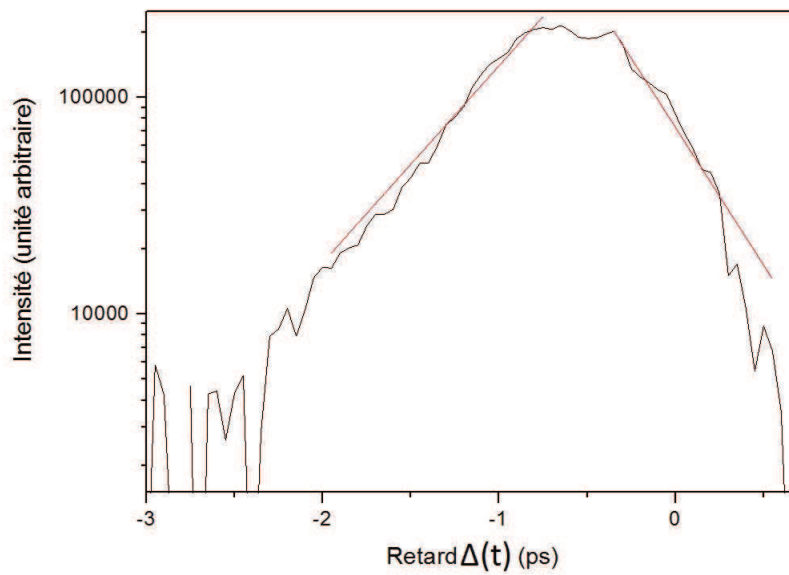


FIGURE 6.8 – Intensité du signal généré dans la direction \mathbf{k}_m intégrée entre 777nm et 778nm en fonction du retard $\Delta(t)$. Le signal apparaît rapidement puis décroît pour $\Delta(t) < 0$ avec une constante de temps de 0.5ps.

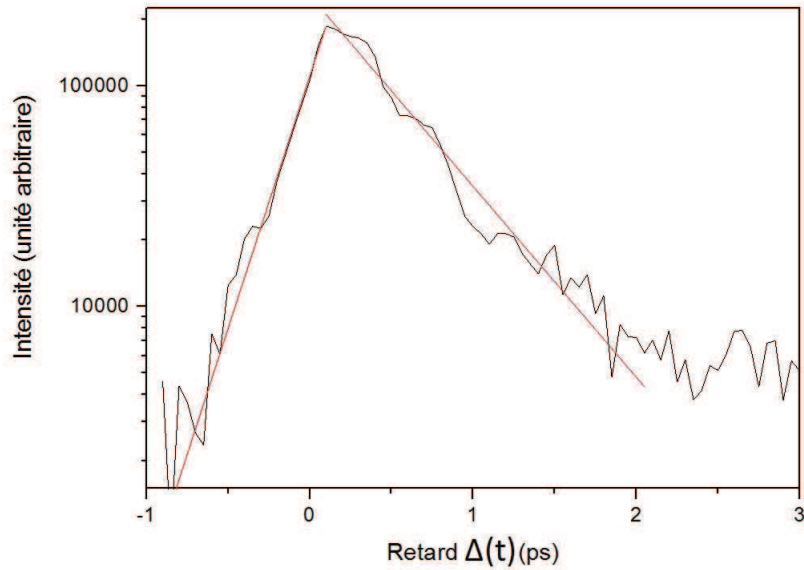


FIGURE 6.9 – Intensité du signal généré dans la direction \mathbf{k}_p avec des faisceaux gaussiens intégrée entre 777nm et 778nm en fonction du retard $\Delta(t)$. Le signal décroît pour $\Delta(t) > 0$ avec un temps caractéristique de 0.5ps.

6.3 Conclusion

Cette expérience préliminaire a permis de démontrer expérimentalement les conditions d'accord de phase du moment orbital angulaire lors d'un processus de mélange à quatre ondes. Nous savons que les faisceaux de mélange d'onde sont générés dans des directions particulières : pour des faisceaux excitateurs de vecteurs d'onde \mathbf{k}_a et \mathbf{k}_b arrivant au instant t_a et t_b respectivement, deux signaux seront générés dans les directions $2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$, pour $t_a \leq t_b$, et $2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$, pour $t_a \geq t_b$. La mesure du temps de décroissance des signaux en fonction du retard entre les deux impulsions excitatrices, c'est à dire en fonction de $t_b - t_a$, donne accès au temps de cohérence T_2 . Lorsque les faisceaux utilisés pour effectuer cette expérience possèdent un moment orbital angulaire bien défini, comme c'est le cas des faisceaux de Laguerre-Gauss, les faisceaux générés par le processus de mélange d'ondes auront eux aussi un moment orbital angulaire bien défini. En effet, nous avons démontré que le signal émis dans la direction $2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$ possède un moment orbital angulaire de charge $2l_b - l_a$, de la même manière celui en $2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$ possède une charge de $2l_a - l_b$. Ainsi en travaillant avec $l_a = 2$ et $l_b = 1$, le processus de mélange d'onde génère deux signaux de charge respective $l = 0$ et $l = 3$. Celui de charge $l = 0$ ne possèdera pas la forme annulaire des autres faisceaux (transmis et générés). On peut donc effectuer cette expérience avec des faisceaux excitateurs colinéaires et sélectionner le signal grâce uniquement à son moment orbital angulaire.

Seul le faisceau de charge $l = 0$ a une intensité non nulle sur l'axe de propagation, on peut alors l'extraire et discriminer tous les autres faisceaux avec un simple diaphragme. C'est ce que nous allons montrer dans le chapitre suivant.

Chapitre 7

Expérience de mélange d'ondes en géométrie colinéaire

7.1 Le montage expérimental

La configuration du montage expérimental est décrite sur la figure 7.1, ce montage est directement dérivé de celui utilisé pour effectuer l'expérience de mélange à quatre ondes en géométrie non-colinéaire.

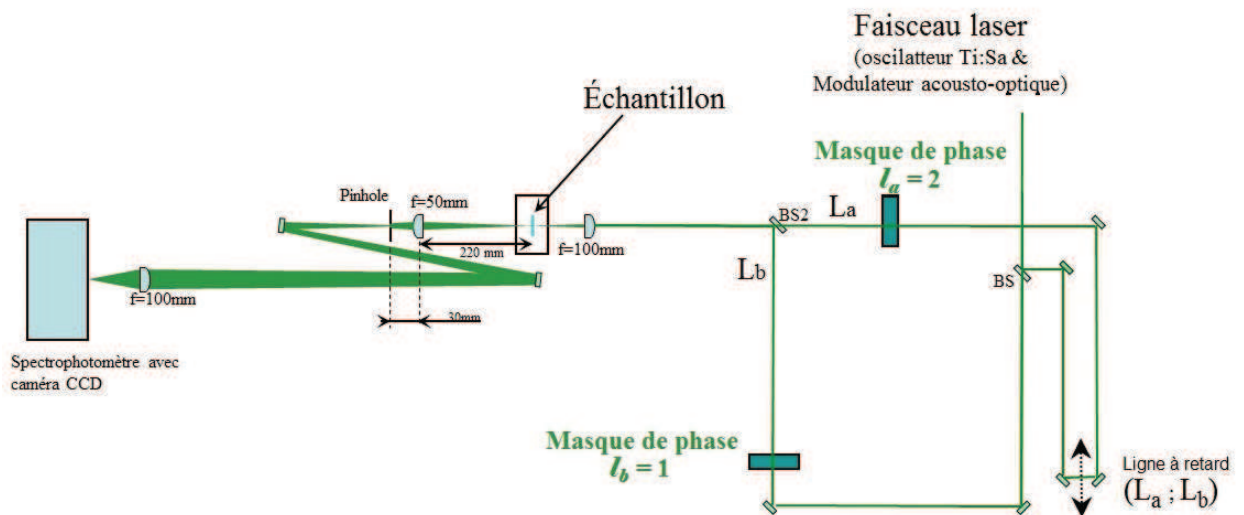


FIGURE 7.1 – Configuration utilisée pour faire l'expérience de mélange à quatre ondes en géométrie colinéaire avec des faisceaux de Laguerre-Gauss.

Les impulsions sont générées comme précédemment par un oscillateur Tsunami puis extraites par un modulateur acousto-optique (Pulse picker). On travaille alors avec des impulsions de $100fs$ à un taux de répétition de $4MHz$. Leur profil spectral est gaussien centré à $800nm$ avec une largeur à mi-hauteur de $15nm$.

Une fois qu'une impulsion est émise, elle est séparée en deux faisceaux L_a et L_b d'égales intensités grâce à un séparateur de faisceau (BS). Puis L_2 passe par une ligne à retard qui permet de faire varier la différence de chemin optique entre L_a et L_b . Le retard entre ces deux impulsions s'écrit : $\Delta(t) = t(L_b) - t(L_a)$. La ligne à retard utilisée est la même que celle décrite dans la section précédente.

Des masques de phase sont ensuite utilisés pour transformer chacun des faisceaux en mode de Laguerre-Gauss, L_a et L_b qui posséderont alors un moment orbital angulaire de charge $l_a = 2$ et $l_b = 1$ respectivement. Puis un deuxième séparateur de faisceau (BS2) recombine les deux faisceaux afin de les rendre colinéaires. Ils sont ensuite focalisés par une lentille de focale $f = 100mm$ sur la surface de l'échantillon, refroidi à 25 Kelvin dans un cryostat à hélium liquide. Après avoir été transmis par l'échantillon, une lentille de $f = 50mm$ de focale, distante de $220mm$ de l'échantillon, collecte les faisceaux.

Un diaphragme de $100\mu m$ de diamètre est placé juste après le point focal de cette lentille afin d'extraire le signal. Le diaphragme diffracte alors le signal correspondant au mode de charge $l = 0$ et élimine les autres de moment orbital angulaire de charge $l \neq 0$. Ce signal est ensuite focalisé avec une lentille $f = 100mm$ sur la fente d'entrée du spectrophotomètre. Il est alors analysé spectralement et enregistré par une caméra CCD refroidie par de l'azote liquide. Le spectrophotomètre est centré à $777.5nm$.

7.2 Résultats

Le signal est généré autour de la résonance du trion du puits quantique du CdTe/CdZnTe utilisé (échantillon Z1044) qui se situe à $777.5nm$. Afin de réduire le rapport signal sur bruit, le signal est intégré spectralement sur une largeur de $1nm$ autour de la résonance.

La figure 7.2 montre le résultat obtenu. On observe que le signal croît rapidement pour $\Delta(t) \approx 0$ et décroît pour des retards positifs. Ce comportement est similaire à celui observé pour le signal de mélange d'ondes de charge $l_p = 0$ dans les expériences préliminaires en géométrie non-colinéaire. De plus, le signal décroît sur la même gamme de temps et l'ajustement des données nous donne la même constante de temps de $0.5ps$. Celle-ci peut donc être associée au temps de déphasage de la polarisation créée sur les transitions de l'exciton chargé X^- .

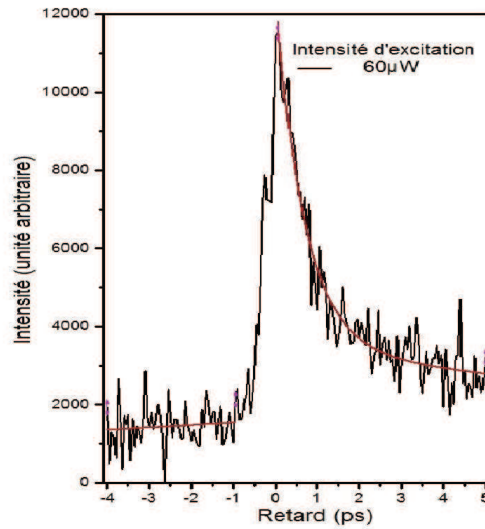


FIGURE 7.2 – Intensité du signal sur l’axe optique en fonction du retard intégrée sur une largeur de 1nm autour 777.5nm .

Cependant, on remarque une contribution non nulle pour des retards plus grand, des deux côtés du signal principal de mélange d’ondes qui est maximum à $\Delta(t) = 0$, c’est à dire pour des retards positifs comme pour des retards négatifs.

Un ajustement des données sur une fenêtre temporelle plus grande (de 150ps) donne un temps de décroissance autour de 80ps . Cette valeur est typique du temps de vie (T_1) des excitons dans un puits quantique de $\text{CdTe}/\text{CdZnTe}$. Cela montre qu’un signal dû à la création par photoexcitation d’une population excitonique se superpose au signal de mélange d’onde sur l’axe optique z . Il apparait sur la figure 7.2 comme un décalage de la ligne de base du signal de mélange d’onde ; ce décalage possède des valeurs différents pour des retards positifs et négatifs qui doivent donc venir de deux contribution différentes. Un tel signal, qui est dû à la population d’excitons induits optiquement et qui reflète donc sa dynamique, est caractéristique d’une expérience « Pompe-Sonde » où l’impulsion transmise est modifiée quand l’échantillon a été excité par une première impulsion. Dans notre expérience, le diaphragme utilisé pour sélectionner le signal de charge $l = 0$ se trouvant sur l’axe optique z a une taille finie : cela permet à une partie des faisceaux incidents, autour de leurs minima à $r = 0$, de passer à travers. De plus, tout changement de distribution spatiale et d’intensité d’un faisceau induit par les autres, telle que les signaux de pompe-sonde, peut être observé avec notre technique de détection différentielle (identique à celle utilisée dans l’expérience en géométrie non-colinéaire).

Revenons à notre définition du retard afin de déterminer quels signaux de pompe-sonde sont générés. Pour des retards positifs, l’impulsion de charge $l_a = 2$ arrive avant celle de charge $l_b = 1$, le signal de pompe-sonde correspond alors aux changements de

l'impulsion (b) dus aux modifications de l'échantillon provoquées par l'impulsion (a). On observera l'inverse pour des retards négatifs. Ceci explique pourquoi le signal de pompe-sonde observé sur nos données est plus important pour des retards positifs que pour des retards négatifs : le trou au centre du faisceau de charge $l_b = 1$ est plus petit que celui du faisceau de charge $l_a = 2$, comme on peut le voir sur les profils figure 7.3, il y a donc plus de lumière transmise par le diaphragme pour le premier ($l_b = 1$) et donc le signal différentiel observé est plus grand pour les retards positifs.

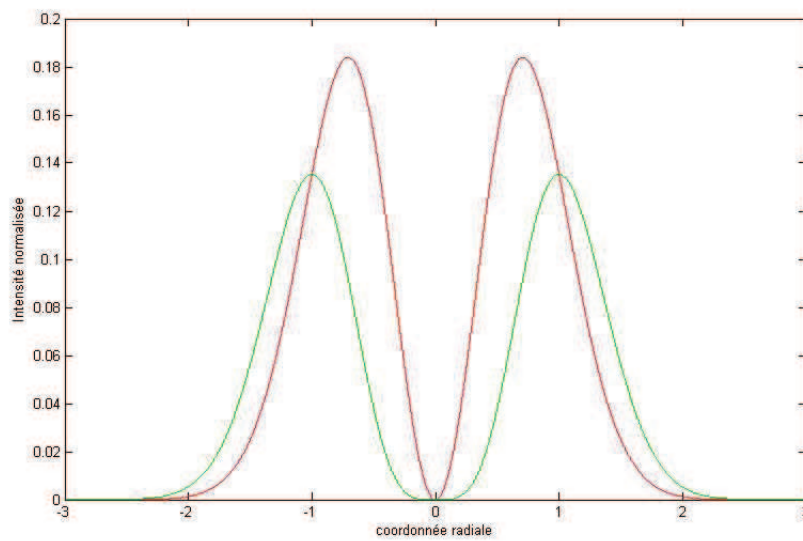


FIGURE 7.3 – Profil transverse d'intensité d'un faisceau de charge $l_a = 2$ (courbe verte) et d'un faisceau de charge $l_b = 1$ (courbe rouge) montrant la différence de taille du trou central sur l'axe optique z .

7.3 Conclusion

Notre expérience montre qu'il est possible de détecter un signal de mélange d'onde dans une configuration colinéaire en utilisant la conservation du moment orbital angulaire, donnant la relation $l_s = 2l_b - l_a$, à la place des conditions d'accords de phase usuelles du vecteur d'onde, qui s'écrit $\mathbf{k}_s = 2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$. Néanmoins, tandis qu'une détection *via* le vecteur d'onde assure de se prémunir du bruit de fond, généré par les autres impulsions, autour de la direction \mathbf{k}_s du signal, la sélection du signal de charge $l_s = 0$ grâce à un diaphragme placé sur l'axe optique n'assure pas une parfaite réjection des faisceaux incidents. Cependant cette méthode montre un grand avantage : comme nous n'avons plus besoin d'avoir de vecteurs d'ondes bien définis pour les faisceaux incidents et pour les signaux générés nous pouvons utiliser des faisceaux de Laguerre-Gauss avec

une grande ouverture numérique, en les focalisant sur l'échantillon avec un objectif de microscope. Cela permettra d'avoir un $\Delta(k)$ plus grand et donc un $\Delta(x)$ plus petit au niveau de l'échantillon, on obtiendra ainsi une meilleure résolution spatiale. Ces résultats ouvre la voie à des expériences de mélange d'onde dans des échantillons inhomogènes où l'efficacité du processus ainsi que sa dynamique temporelle peuvent être cartographiées précisément.

Troisième partie

Développement d'une expérience d'imagerie résolue en temps

8	Principes et contraintes du montage expérimental	147
8.1	Objectifs	147
8.2	Technique de spectroscopie ultra-rapide pompe-sonde	148
8.3	Proposition de montage	148
8.4	Cahier des charges	149
9	Bases nécessaires à l'expérience	151
9.1	Échantillon utilisé	151
9.1.1	Élaboration de l'échantillon	151
9.1.2	Structure cristallographique	152
9.1.3	Structure de bande	153
9.1.4	Transitions optiques bande à bande	153
9.1.5	Spectres d'absorption et de photoluminescence : propriétés optiques	155
9.2	Génération des impulsions	159
9.2.1	Source laser	159
9.2.2	L'amplificateur paramétrique optique non-colinéaire (NOPA) : préparation des impulsions pompe et sonde	160
10	Montage d'imagerie pompe-sonde	165
10.1	Détection interférométrique	165
10.1.1	Configuration du montage expérimental	165
10.1.2	Le compensateur de Babinet-Soleil et son point de fonctionnement	168
10.2	Imagerie	170
10.2.1	Disposition du montage expérimental	170
10.2.2	Image en champ large de l'échantillon	170
10.2.3	Grandissement réel	171
10.3	Dispositif pompe-sonde	173
10.3.1	Configuration finale du montage expérimental	173
10.3.2	Résolution temporelle	174
10.4	Mesures pompe-sonde intégrées spatialement	175
10.4.1	Pompe centrée à $395nm$	175
10.4.2	Pompe centrée à $500nm$	177
10.5	Mesures pompe-sonde résolues spatialement	178
10.5.1	Images enregistrées	178

10.5.2 Coupes spatiales	182
10.5.3 Résolution spatiale	184
10.6 Modélisation des mesures réalisées	184
11 Conclusions et perspectives	189
11.1 Bilan	189
11.2 Perspectives	189
Conclusion générale	195

Chapitre 8

Principes et contraintes du montage expérimental

8.1 Objectifs

La spectroscopie résolue en temps, telle que la technique pompe-sonde, construite autour des lasers à impulsions ultra-courtes, permet de déterminer les cinétiques de relaxations électroniques ou vibrationnelles des objets étudiés sur des échelles de temps descendant à la femtoseconde en couplant leur mesure à celle de non-linéarités optiques. Mais elle se restreint la plupart du temps à des mesures d'ensemble. En effet, la taille du volume excité par un faisceau lumineux est limitée par la diffraction et ne peut alors descendre en dessous de $\lambda/2$ dans le plan transverse. Les mesures de spectroscopie ultra-rapide sont faites sur des dimensions de l'ordre de quelques dizaines micromètres et, au mieux, du micromètre.

Or, au cours des années 70, des progrès constants ont été faits en matière de synthèse chimique de nano-objets individuels (nanocristaux semiconducteurs, nanoparticules métalliques, nanotubes de carbone etc.) [40] et de procédés de croissance de systèmes nanométriques auto-assemblés tels que les puits quantiques [38]. De plus, ces systèmes peuvent posséder des inhomogénéités spatiales qui peuvent fortement influencer leur réponse optique.

Il devient donc indispensable de disposer de méthodes d'exploration optique permettant de cartographier les caractéristiques optiques d'un échantillon ainsi que les cinétiques de relaxation de ses inhomogénéités.

Avant d'aborder les méthodes que nous proposons pour améliorer la résolution spatiale des mesures, rappelons tout d'abord les particularités de la technique de spectroscopie ultra-rapide pompe-sonde.

8.2 Technique de spectroscopie ultra-rapide pompe-sonde

Dans une technique de spectroscopie pompe-sonde usuelle, deux faisceaux dégénérés et non-colinéaires sont focalisés sur un échantillon : un faisceau sonde et un faisceau pompe.

En l'absence de faisceau pompe, le faisceau sonde dont l'énergie est résonnante avec la bande interdite du semi-conducteur est partiellement absorbée et induit un certain nombre de transitions électroniques entre bande de valence et bande de conduction. Lorsque une impulsion du faisceau pompe excite l'échantillon avant l'arrivée de la sonde et modifie l'occupation des états entre bande de valence et bande de conduction, l'absorption de la sonde, qui est proportionnelle à la fois au nombre d'états occupés dans la bande de valence et d'états libres dans la bande de conduction, s'en trouve alors diminuée. Cette modification transitoire perdure donc pendant le temps de vie T_1 des excitations électroniques (pour le détail se référer à la première partie de ce manuscrit, 1.4.2). En jouant sur le retard entre pompe-sonde, il est possible de mesurer l'évolution temporelle de la variation d'absorption et ainsi de déterminer le temps de relaxation des excitations électroniques.

On mesure donc avec cette technique la variation induite de transmission de la sonde $\frac{\Delta T}{T} = \frac{I_{avec\ pompe} - I_{sans\ pompe}}{I_{sans\ pompe}}$, I dénote l'intensité de la sonde transmise par l'échantillon en présence de la pompe ($I_{avec\ pompe}$) ou en l'absence de pompe ($I_{sans\ pompe}$), en fonction du retard pompe-sonde. Or, la variation induite de transmission est directement reliée à la variation induite d'absorption $\Delta\alpha$. De plus, on peut relier la variation induite d'absorption à la variation induite de l'indice de réfraction Δn par une relation de Kramers-Kronig si la variation d'absorption $\Delta\alpha$ est petite, c'est à dire si on peut utiliser l'approximation linéaire $\Delta\alpha \propto I$ et $\Delta n \propto I$. On peut donc également avoir accès au temps de vie des excitations électroniques par mesure de la variation d'indice Δn induite par la pompe dans la zone de transparence de l'échantillon étudié plutôt que de mesurer la variation de transmission d'un faisceau sonde qui doit alors être en résonance avec l'état d'excitation électronique étudié. C'est ce que nous allons utiliser dans la suite.

8.3 Proposition de montage

D'une part nous voulons faire de la cartographie, c'est à dire imager une zone large de l'échantillon avec un grandissement suffisamment important pour pouvoir visualiser les détails qu'elle contient. D'autre part, nous souhaitons mesurer les cinétiques de relaxation des excitations électroniques en différents « points » de l'échantillon.

Nous avons vu que la technique de spectroscopie ultra-rapide pompe-sonde est une méthode efficace pour mesurer le temps de relaxation des excitations électroniques. De plus, même si cette mesure se fait habituellement *via* la variation de transmission de la sonde induite par la pompe, elle peut être réalisée en mesurant la variation induite d'indice de réfraction dans la zone de transparence de l'échantillon étudié. La question qui se pose alors est : comment mesurer une variation d'indice ?

La réponse est : par une méthode interférométrique. En effet, lorsque deux faisceaux synchrones et cohérents interfèrent, la mesure du profil d'interférence nous renseigne sur la différence de phase entre les deux faisceaux. Or, une variation d'indice induit une variation de phase. Donc, un système de détection interférométrique de la sonde dans une technique pompe-sonde permet de mesurer les cinétiques de relaxation désirées. Pour ce faire, il faut concevoir un montage expérimental de type pompe-sonde avec deux sondes. Ces deux sondes doivent pouvoir interférer en fin de montage pour mesurer les variations d'intensités, et donc de phase, de leur profil d'interférence. La longueur d'onde des sondes peut alors se situer dans la zone de transparence de l'échantillon étudié tandis que celle de la pompe doit se situer dans sa zone spectrale d'absorption pour modifier l'indice de réfraction de l'échantillon étudié. La non-dégénérescence des énergies de photon pompe et sonde permet en outre d'éliminer facilement à l'aide de filtre spectraux les photons résiduels de pompe avant qu'ils n'atteignent le détecteur.

8.4 Cahier des charges

Au vu de la proposition de montage que nous venons de faire, plusieurs contraintes expérimentales doivent être respectées, nous allons les lister ici :

- avoir une source accordable pour modifier la longueur d'onde de la sonde et de la pompe en fonction des échantillons étudiés ;
- avoir des objectifs de microscope de grande ouverture numérique afin d'obtenir la meilleure résolution spatiale possible ;
- pouvoir faire varier le chemin optique de la pompe pour avoir une résolution temporelle ;
- avoir un dispositif de détection interférométrique suffisamment sensible pour que de petites variations de phase se traduisent par d'importantes modifications d'intensité ;
- avoir une caméra CCD suffisamment sensible pour mesurer de faibles variations d'intensité et suffisamment rapide pour suivre ces variations sur des temps d'acquisition raisonnables en fonction de la position temporelle de la pompe par rapport à la sonde sur laquelle elle agit.

Chapitre 9

Bases nécessaires à l'expérience

9.1 Échantillon utilisé

L'échantillon que nous avons utilisé pour la mise au point de l'expérience de nanoscopie résolue en temps est une plaquette de monocristal de sulfure de cadmium. Le CdS est en effet connu pour être un matériau non-linéaire intéressant à température ambiante [34]. De plus, les plaquettes de CdS mono-cristallin sont de bonne qualité optique. Enfin, d'importants changements des constantes optiques peuvent y être observés à des énergies proches de celle de la bande interdite. Celle-ci se situant autour de $500nm$, le CdS est un matériau adapté pour effectuer des mesures à des longueurs d'ondes du spectre visible.

Nous allons à présent décrire plus en détail l'échantillon de CdS utilisé dans nos expériences.

9.1.1 Élaboration de l'échantillon

L'échantillon de monocristal de sulfure de cadmium a été fabriqué par transport en phase vapeur sous atmosphère d'argon [10]. La croissance des monocristaux est obtenue à partir d'une poudre polycristalline de CdS de 5N (au maximum 10^{-5} mole d'impuretés pour une mole de CdS). Cette poudre est placée dans une nacelle en carbone vitreux à l'intérieur d'un tube de silice. Ce tube est chauffé dans un four à gradient thermique. La nacelle est placée au point de plus haute température du tube. Le processus de transport physique en phase vapeur s'établit sous l'action du gradient de température et du flux continu d'argon, ce gaz servant d'agent de transport.

Les monocristaux ainsi obtenus se présentent sous la forme de plaquettes et d'aiguilles. Leur épaisseur est comprise entre 0.5 et $100\mu m$ environ. Les surfaces des échantillons correspondent à une face cristallographique (100) ou à une face équivalente. Les plaquettes sont biréfringentes, l'axe optique étant parallèle à la surface principale de

la plaquette. On notera que la taille et la qualité des cristaux dépendent fortement des conditions de fabrication, en particulier du débit d'argon ainsi que des extrema de température dans le tube. Les paramètres caractéristiques de croissance sont entre 0.3 et 3L/min pour le débit d'argon, entre 1050 et 1190°C pour la température maximale dans le tube.

L'échantillon utilisé ici a été préparé à l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg.

9.1.2 Structure cristallographique

Bien qu'il soit possible de l'obtenir sous forme cubique, le sulfure de cadmium cristallise essentiellement sous forme hexagonale de type wurtzite. C'est un semi-conducteur uniaxe, sans centre d'inversion, qui appartient au groupe de symétrie ponctuelle C_{6v}^4 . Sa maille élémentaire (figure 9.1) contient deux atomes de soufre et deux atome de cadmium.

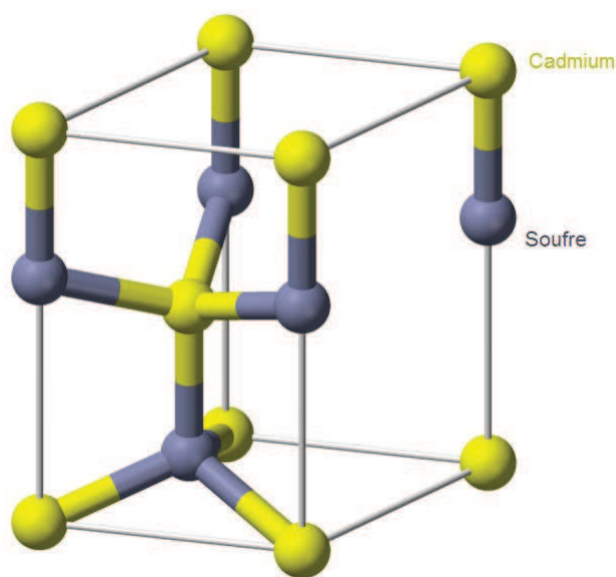


FIGURE 9.1 – Maille élémentaire du CdS.

9.1.3 Structure de bande

Le composé CdS est un semi-conducteur du type II-IV par suite de la structure électronique du cadmium ($[\text{Kr}]4d^{10}5s^2$) et de celle du soufre ($[\text{Ne}]3s^23p^4$). Dans sa structure wurtzite, ce composé possède une structure de bande représentée sur la figure 9.2 où les bandes électroniques ont leurs extrema au centre de la zone de Brillouin, en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ [35]. Le triplet de la bande de valence, provenant de l'orbitale $3p$ du soufre, de symétrie Γ_5 (dans le groupe ponctuel du cristal) est divisé en un doublet de symétrie Γ_5 et un singulet de symétrie Γ_1 du fait du champ cristallin. Si l'on tient compte du spin des électrons, on doit considérer le couplage spin-orbite donnant lieu à une variation d'énergie Δ_{SO} des états de valence. La non-cubicité de la structure wurtzite implique effectivement que l'écart d'énergie induit dans la symétrie hexagonale par le champ cristallin, Δ_{cr} , est du même ordre de grandeur que celle apportée par l'interaction spin-orbite, Δ_{SO} , contrairement à la structure blende de zinc où l'effet du champ cristallin peut être négligé. L'interaction spin-orbite lève elle aussi partiellement la dégénérescence de la bande de valence de symétrie Γ_5 en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$. La bande de valence est alors scindée en trois bandes, une de symétrie Γ_9 et deux de symétrie Γ_7 , respectivement appelées A, B et C.

La bande de conduction provient de l'orbitale $5s$ du cadmium et est de symétrie Γ_1 du groupe ponctuel de symétrie du cristal. Celle-ci n'est pas affectée par les interactions du type champ cristallin et spin-orbite. En $\mathbf{k} = \mathbf{0}$, la bande de conduction de même symétrie Γ_1 dans le groupe ponctuel possède la symétrie Γ_7 lorsque l'on prend en compte le spin.

9.1.4 Transitions optiques bande à bande

La symétrie de l'opérateur d'interaction entre le champ électromagnétique de la lumière et la matière (opérateur dipolaire $\hat{\mu}$) est Γ_1 pour une direction de polarisation parallèle à l'axe optique (axe \mathbf{c}) du cristal. Lorsque la polarisation de la lumière est perpendiculaire à l'axe optique, la symétrie de cet opérateur est Γ_5 . Ainsi, au vu de la structure de bande du CdS (figure 9.2), les transitions optiques verticales entre la bande de valence et la bande de conduction, de symétries respectives Γ_9 et Γ_7 , séparées de 2.501eV à 300K [26], ne sont autorisées que pour une polarisation perpendiculaire du champ ($\mathbf{E} \perp \mathbf{c}$). Par contre, les transitions optiques entre les bandes de valence B et C et la bande de conduction peuvent être observées pour les deux états de polarisation de la lumière ($\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$ et $\mathbf{E} \perp \mathbf{c}$) comme le montre la figure 9.3.

Il a été montré que le premier état excitonique à température ambiante est à une énergie d'environ $2.48eV$ [34]. Rappelons qu'un état excitonique correspond au niveau d'énergie d'une paire électron-trou photocréée par absorption d'un photon par un électron d'une bande de valence, celui est alors promu dans la bande de conduction laissant un espace vacant (ou trou) dans la bande de valence d'origine. L'énergie d'un état excitonique est donc donnée par l'énergie de la transition bande à bande diminuée de l'énergie de l'interaction coulombienne entre l'électron et le trou (énergie de liaison excitonique).

9.1.5 Spectres d'absorption et de photoluminescence : propriétés optiques

L'intensité lumineuse I^T transmise par un échantillon éclairé par un faisceau incident d'intensité I^I est donnée par la loi de Lambert. Si l'on considère qu'un seul passage de la lumière à travers le cristal, cette loi s'écrit :

$$I^T(\omega) = I^I(\omega)(1 - \mathcal{R}(\omega))e^{-\alpha(\omega)d} \quad (9.1)$$

où \mathcal{R} est le coefficient de réflexion de l'interface CdS-air, ω la pulsation de la lumière, $\alpha(\omega)$ le coefficient d'absorption et d l'épaisseur de l'échantillon.

On peut ainsi évaluer le coefficient d'absorption $\alpha(\omega)$ à partir de la mesure des coefficients de transmission \mathcal{T} et de réflexion \mathcal{R} par :

$$\alpha(\omega) = \frac{1}{d} \ln \left(\frac{(1 - \mathcal{R}(\omega))}{\mathcal{T}(\omega)} \right) \quad (9.2)$$

avec $\mathcal{T}(\omega) = \frac{I^T(\omega)}{I^I(\omega)}$ et $\mathcal{R}(\omega) = \frac{I^R(\omega)}{I^I(\omega)}$

où I^R est l'intensité réfléchiée par l'interface échantillon-air. Cependant, dans le cas des lames minces, pour déduire correctement le coefficient d'absorption $\alpha(\omega)$ des mesures de \mathcal{R} et \mathcal{T} , il faut tenir compte des réflexions multiples possibles entre les deux faces parallèles de l'échantillon, celui-ci se comportant comme une cavité Fabry-Pérot. L'intensité de la lumière transmise est alors modulée comme le montre le spectre de transmission expérimental d'un échantillon de CdS de $14.3\mu m$ d'épaisseur représenté figure 9.4. L'expression de cette transmission est alors donnée par la formule d'Airy :

$$\mathcal{T} = \frac{I^T}{I^I} = \frac{(1 - R)^2}{\left(e^{\frac{\alpha d}{2}} - R e^{-\frac{\alpha d}{2}} \right)^2 + 4R \sin^2 \left(\frac{\phi}{2} \right)} \quad (9.3)$$

où R est le coefficient de réflexion des deux interfaces air-CdS tel que $R \simeq \frac{|n-1|^2}{|n+1|^2}$, n étant l'indice linéaire de réfraction du milieu et ϕ le déphasage correspondant au trajet optique dans le cristal tel que $\phi = \frac{4\pi n d}{\lambda}$, où λ est la longueur d'onde du faisceau

incident. Ce déphasage détermine les positions spectrales des maxima de transmission, ils sont données par $\phi = 2\pi p$ (p entier).

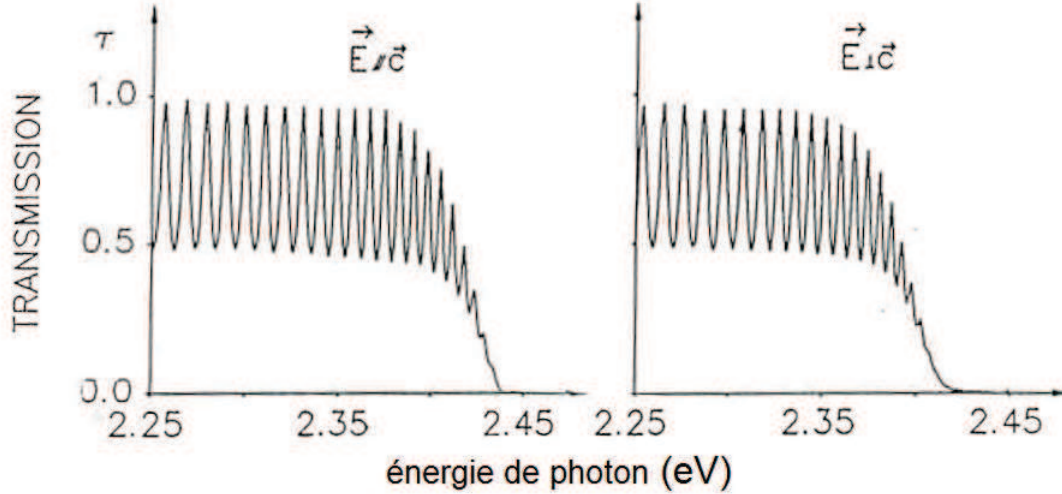


FIGURE 9.4 – Transmission expérimentale d'un échantillon de CdS de $14\mu\text{m}$ d'épaisseur pour deux états de polarisation de la lumière blanche incidente. Spectre extrait de [49].

Quand les échantillons sont de bonne qualité cristalline et de grande pureté chimique, l'absorption liée aux transitions bande à bande de plus faibles énergies, c'est à dire du côté des petites énergies de photon (E_{ph}) du bord d'absorption ($10^1 \leq \alpha \leq 10^4 \text{cm}^{-1}$), est donnée par la formule d'Urbach :

$$\alpha(E_{ph}, T) = \alpha_0 e^{-\sigma \frac{E_0 - E_{ph}}{k_B T}} \quad (9.4)$$

avec

$$\sigma = \sigma_0 \frac{2k_B T}{\hbar \omega_{LO}} \tanh \left(\frac{\hbar \omega_{LO}}{2k_B T} \right) \quad (9.5)$$

où α_0 et E_0 sont des constantes caractéristiques du cristal et $\sigma/k_B T$ décrit la raideur du bord d'absorption. Celle-ci dépend de la température et de $\hbar \omega_{LO}$ qui est une énergie assimilée à celle des phonons longitudinaux optiques (quasi-particule représentant les états de vibrations du cristal). Les paramètres de cette formule empirique sont données en partie dans [63] et par un ajustement des spectres expérimentaux [49]. On détermine finalement :

$$\alpha(E_{ex}^A(n=1)) \approx 4.10^4 \text{cm}^{-1} \quad (\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}) \quad (9.6)$$

et

$$\alpha(E_{ex}^B(n=1)) \approx 7.10^4 \text{cm}^{-1} \quad (\mathbf{E} \perp \mathbf{c}) \quad (9.7)$$

Des mesures de transmission ont été effectuées sur notre échantillon. L'échantillon est alors éclairé par une lumière blanche filtrée par un monochromateur et modulée temporellement. L'intensité lumineuse transmise par l'échantillon est enregistrée par détection synchrone *via* une photodiode. La figure 9.5 présente le spectre de transmission obtenu. Nous pouvons observer des franges de Fabry-Pérot sur le spectre de transmission, celles-ci sont espacées d'environ 0.013eV soit 95376nm . En supposant que nous avons éclairé l'échantillon en incidence normale, on a $2ne = 95376\text{nm}$ avec n l'indice de réfraction du CdS valant environ 3.3, on détermine alors l'épaisseur e de la plaquette de monocristal utilisée : $e \approx 15\mu\text{m}$. Ces franges ne sont pas aussi fines que celles présentes sur la figure 9.4 car la zone de l'échantillon sondée ici est large et recouvre donc des épaisseurs inhomogènes de l'échantillon.

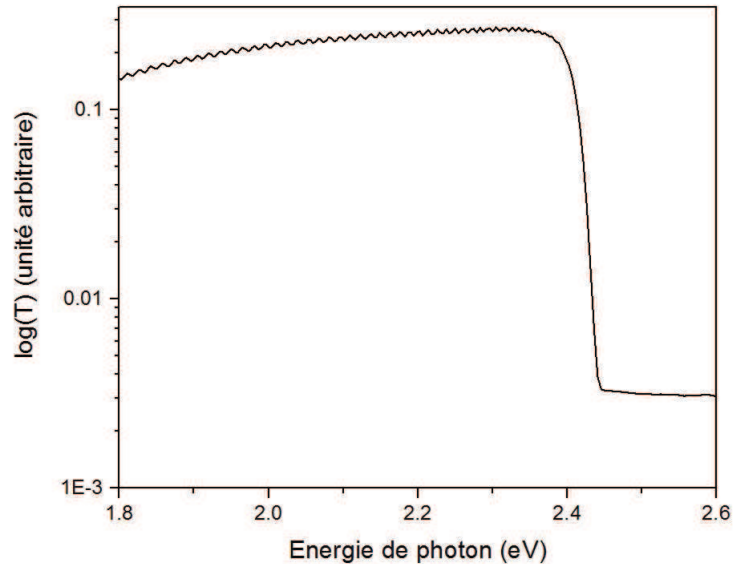


FIGURE 9.5 – Transmission T d'une plaquette de CdSen fonction de l'énergie de photon incident ($\hbar\omega$) et dans la géométrie $\mathbf{E} \parallel \mathbf{c}$.

Des expériences de photoluminescence ont permis de situer la position spectrale du bord d'absorption. Celles-ci ont été effectuées en illuminant le cristal avec une lampe blanche suivi d'un monochromateur. La luminescence est recueillie du côté de l'excitation par une lentille de grande ouverture qui la condense sur la fente d'entrée d'un spectromètre. Ce dernier est centré à 700nm . Le spectre d'excitation de la photoluminescence de l'échantillon utilisé est présenté sur la figure 9.6.

La décroissance de l'intensité d'excitation de la photoluminescence autour de 450nm est un artefact dû à l'expérience : un filtre a été placé à la sortie du monochromateur afin de supprimer les longueurs d'onde autour de 350nm dues à la diffraction au deuxième ordre des longueurs d'onde comprises entre 550 et 700nm .

Nous pouvons déterminer la position du bord d'absorption en effectuant un ajustement du pic centré à environ 510nm . Un ajustement de l'intensité absorbée en fonction de l'énergie des photons d'excitation par une fonction de Voigt (produit de convolution entre une lorentzienne et une gaussienne) nous donne la position à mi-hauteur du bord d'absorption : 2.352eV soit environ 527nm .

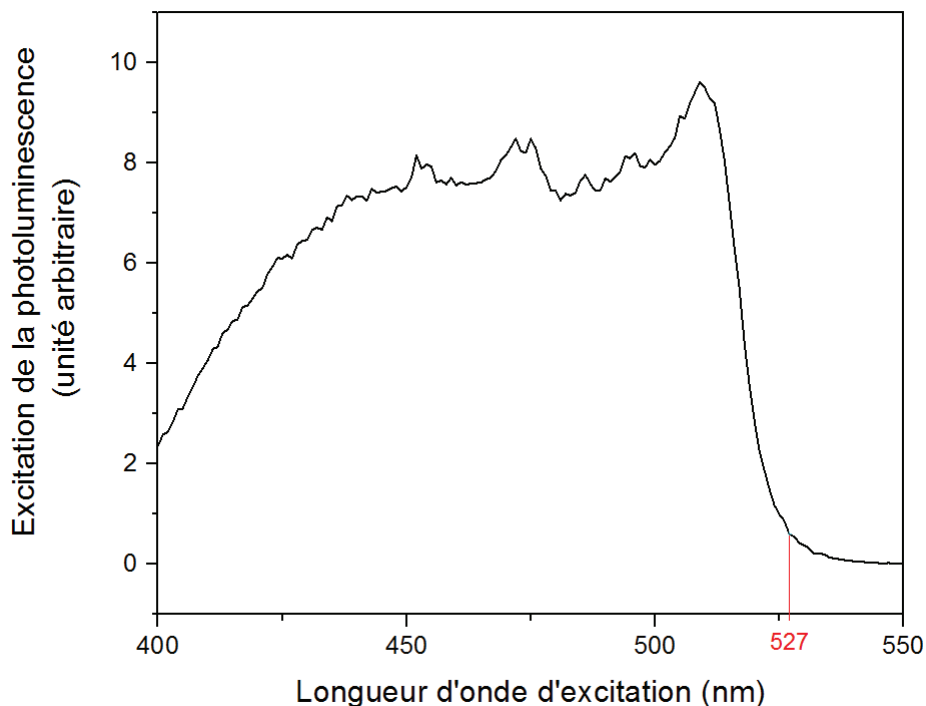


FIGURE 9.6 – Spectre d'excitation de la photoluminescence réalisée sur l'échantillon de CdS utilisé.

La figure 9.7 montre le spectre de photoluminescence réalisé pour une excitation à 507.5nm . Le pic de photoluminescence est centré à 728.8nm . Ceci montre que la recombinaison radiative des porteurs ne se fait pas entre le bas de la bande de conduction et le haut de la bande de valence, qui correspondrait à une photoluminescence autour de 500nm , mais à partir d'états intermédiaires venant d'impuretés. Cette mesure nous montre donc que les porteurs relaxent tout d'abord non-radiativement sur des défauts qui les piègent, la relaxation radiative se fait ensuite à partir des états électroniques de ces impuretés. Les plaquettes de CdS sont donc des échantillons idéaux pour travailler avec de la lumière visible. En effet, un faisceau polarisé parallèlement à l'axe \mathbf{c} du cristal de longueur d'onde en dessous de 530nm , correspondant à une énergie de photon supérieure à 2.48eV , est absorbé par l'échantillon, donnant lieu à une luminescence autour de 498nm . De plus, pour des faisceaux de longueur d'onde supérieure à 530nm l'échantillon est transparent.

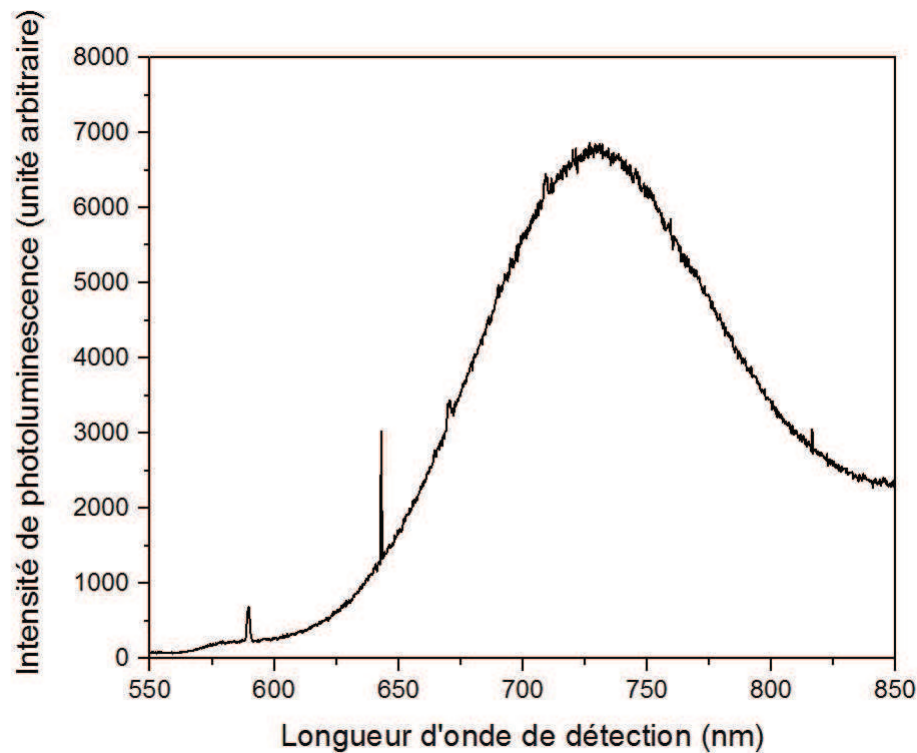


FIGURE 9.7 – Spectre de photoluminescence réalisée sur l'échantillon de CdS utilisé.

9.2 Génération des impulsions

9.2.1 Source laser

Les impulsions sont générées par un laser à fibre Satsuma HP² de marque Amplitude Systems. Le milieu amplificateur de ce laser est une fibre optique dopée aux ions Ytterbium pompée à 976nm par une diode laser d'une puissance moyenne 60W . L'émission est alors centrée à $1.03\mu\text{m}$. Les impulsions sont générées grâce au verrouillage de mode passif d'un absorbant saturable, matériau dont la transmission varie selon l'excitation lumineuse à laquelle il est soumis. L'absorbant saturable présent dans le laser Satsuma est un SESAM (*Semiconductor Saturable Absorber Mirrors*) qui contient un miroir de Bragg GaAs/AlAs et, proche de la surface, un puits quantique unique d'In-GaAs. Une explication détaillée du fonctionnement de ce type de laser, notamment de la génération d'impulsion courte avec des SESAMs, se trouve dans la référence [44].

Les principales caractéristiques des impulsions issues du laser à fibre sont rassemblées dans le tableau 9.1.

Les impulsions sont émises avec un taux de répétition de 250kHz (correspondant à une impulsion toutes les $4\mu\text{s}$) et ont une durée de 290fs . En sortie, le faisceau a un profil gaussien et une polarisation linéaire.

Propriété	Valeur
Puissance moyenne	10.2W
Taux de répétition	250kHz
Énergie par impulsion	40.3μJ
Longueur d'onde centrale	1031.9nm
Largeur spectrale	8nm
Durée	290fs

TABLE 9.1 – Caractéristiques du laser à fibre Satsuma HP².

9.2.2 L'amplificateur paramétrique optique non-colinéaire (NOPA) : préparation des impulsions pompe et sonde

Afin d'obtenir des impulsions à deux longueurs d'onde différentes pour les faisceaux sondes et le faisceau pompe, nous utilisons un amplificateur paramétrique optique non-colinéaire ou NOPA. Il s'agit d'un type particulier d'oscillateur paramétrique optique ou OPA [8], permettant d'obtenir des impulsions accordables sur l'ensemble du spectre visible. L'étude du fonctionnement des NOPAs dépasse le cadre de cette thèse et a déjà été décrit en détail dans de nombreuses références (notamment [55] et particulièrement [48]). Nous nous bornerons ici à rappeler brièvement le principe de l'amplification paramétrique optique et de la spécificité de la géométrie non-colinéaire.

L'amplification paramétrique optique repose sur le principe de la différence de fréquence dans un cristal non-linéaire du second ordre. Ce principe est rappelé sur la figure 9.8. Un champ de pompe intense, de pulsation ω_p , ainsi qu'un champ signal faible, de pulsation ω_s , sont envoyés dans un cristal non-linéaire ($\chi^{(2)}$). Par différence de fréquence, une partie des photons du champ pompe est convertie en paires de photons de pulsations ω_s et ω_i . Ces pulsations vérifient la relation de conservation de l'énergie $\omega_p = \omega_s + \omega_i$. L'interaction au sein du cristal du champ de pompe avec le champ signal se traduit donc par une amplification de ce dernier et l'apparition d'un champ complémentaire (appelé idler) de pulsation $\omega_i = \omega_p - \omega_s$.

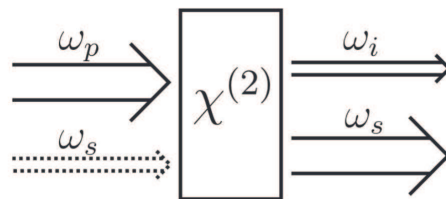
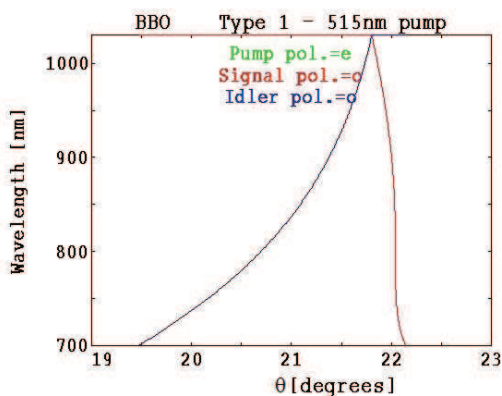


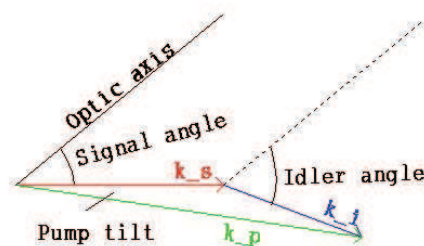
FIGURE 9.8 – Principe de la différence de fréquence utilisée dans l'amplification paramétrique optique.

- Dans le cas d'impulsions courtes, plusieurs processus limitent cette amplification :
- les impulsions pompe et signal se propagent à des vitesses différentes dans le cristal (désaccord de vitesse de groupe) ce qui réduit leur interaction ;
 - les impulsions sont étirées lors de leur propagation (dispersion de la vitesse de groupe) et sont donc moins intenses ce qui diminue l'amplification ;
 - en plus de la conservation de l'énergie, les trois champs présents dans le cristal doivent vérifier l'accord de phase : $\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_i$. Cet accord de phase est généralement très sélectif en fréquence et ne permet pas d'amplifier une large bande spectrale et donc des impulsions courtes.

La configuration non-colinéaire, développée pour des oscillateurs paramétriques optiques, permet de lever ces limitations. L'idée est d'introduire un angle α entre l'impulsion pompe et l'impulsion signal. Pour un angle bien choisi, l'accord de phase est vérifié sur une plage spectrale qui couvre une grande partie du spectre visible. La figure 9.9a montre l'évolution de l'accord de phase θ (ou angle du signal) en fonction de la longueur d'onde du champ signal et du champ idler pour un angle interne α (ou *pump tilt*) entre les champs pompe et signal de 2.65° dans le BBO. Ceci est tracé pour un cristal de BBO de type I d'angle de coupe 23.5° (correspond à l'angle entre l'axe optique du cristal et la direction du champ signal) et une impulsion pompe centrée à 515nm . La figure 9.9b définit les différents angles : celui du signal (*signal angle*), celui de l'idler (*idler angle*) et celui de la pompe (*pump tilt*) par rapport à l'axe optique du BBO.



(a) Angle d'accord de phase θ pour un angle entre les champs pompe et signal de $\alpha = 2.65^\circ$ pour un cristal de BBO de type I d'angle de coupe 23.5° . Le champ pompe est centré à 515nm .



(b) définition des différents angles : celui du signal (*signal angle*), celui de l'idler (*idler angle*) et celui de la pompe (*pump tilt*) par rapport à l'axe optique du BBO pour un processus de mélange de fréquence dans un cristal de BBO de type I.

La figure 9.10 présente le NOPA utilisé dans notre laboratoire.

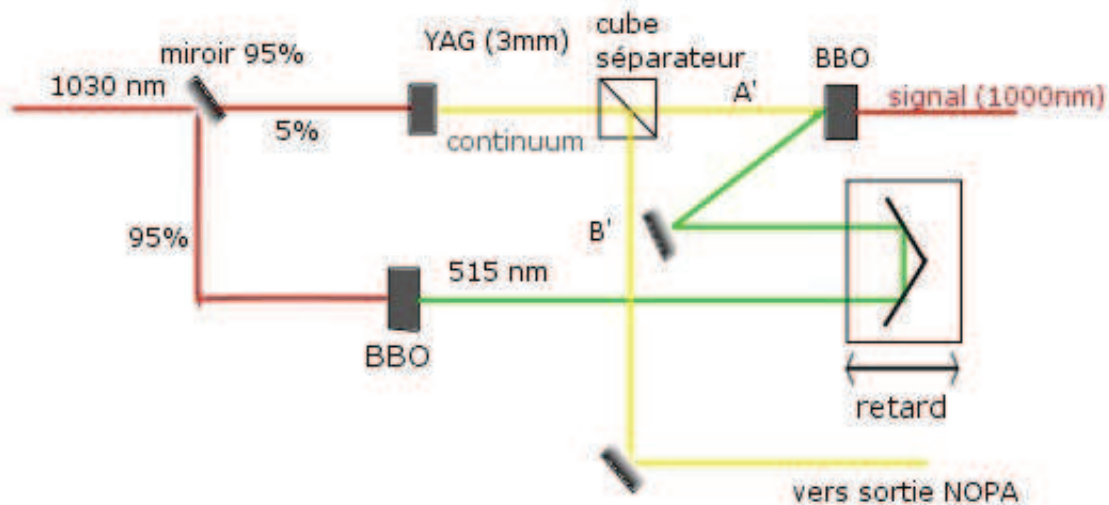


FIGURE 9.10 – Schéma de l'amplificateur paramétrique optique non-colinéaire.

Une partie de la sortie du laser Satsuma (environ 5%) est focalisée dans un cristal de YAG (grenat d'yttrium et d'aluminium de 3mm d'épaisseur). Cela génère un continuum de lumière blanche à forte dérive de fréquence. Le reste du faisceau infrarouge de 1030nm est envoyé dans un cristal de BBO de type I afin d'obtenir une impulsion à 515nm par doublage de fréquence. Cette pompe et une partie du continuum (notée A' sur le schéma 9.10) sont focalisées dans un cristal de BBO de type I. L'amplification paramétrique au sein de ce cristal permet d'obtenir un champ signal de quelques centaines de nJ . La longueur d'onde centrale de ce signal est accordée en changeant le retard entre la pompe et le continuum et elle n'amplifie qu'une « tranche » temporelle du continuum ; compte tenu de la dérive de fréquence du continuum, cette « tranche » a une longueur d'onde qui dépend du retard continuum-pompe. Il est alors possible d'amplifier les longueurs d'onde appartenant à l'intervalle [700nm, 1000nm].

Nous avons réglé le NOPA afin qu'à sa sortie nous ayons un signal amplifié à 1000nm. Puis, pour obtenir un faisceau à 500nm correspondant à une énergie de photons d'environ 2.48eV qui se situe dans zone d'absorption de l'échantillon de monocristaux de CdS utilisé, nous doublons la fréquence à la sortie du NOPA. Le doublage du 1000nm s'effectue dans un cristal de BBO de type I. Le faisceau résultant contient alors du 500nm mais encore du 1000nm et du 1030nm, pour ne garder que le 500nm nous utilisons un compresseur à prismes qui permet à la fois d'effectuer une sélection en longueur d'onde et de comprimer temporellement les impulsions pour leur faire atteindre la limite inférieure donnée par la transformée de Fourier. Ces impulsions constitueront alors le faisceau pompe de notre montage expérimental.

Il sera intéressant d'exciter l'échantillon à une énergie de photon supérieure à celle de sa bande interdite afin de sonder des états de plus haute énergie. Nous envisagerons, par exemple, une excitation à $395nm$. Pour obtenir un faisceau à une telle longueur d'onde, il suffit alors de régler le NOPA pour obtenir un signal amplifié à $790nm$, qui nous donnera la longueur d'onde souhaitée par doublage de fréquence, comme précédemment.

Pour obtenir des impulsions à $690nm$, nous utilisons le continuum B'. Celui-ci passe alors par un train de prismes (ou compresseur à prismes) nous permettant de sélectionner la longueur d'onde souhaitée de $690nm$ et de comprimer l'impulsion. Cette longueur d'onde a été choisie car elle correspond à une énergie de photons d'environ $1.8eV$ se situant dans la zone de transparence de l'échantillon ; ces impulsions seront utilisées pour les faisceaux sondes. Le continuum B' peut être aussi utilisé dans un deuxième NOPA. Ce NOPA est pompé à $343nm$ qui est obtenu par triplage de fréquence du faisceau infrarouge à $1030nm$. Il est ainsi possible d'amplifier des impulsions de longueur d'onde allant de $500nm$ à $900nm$ [48].

Dans notre expérience, la puissance du continuum sans amplification, dans lequel on extrait les sondes, est suffisante pour effectuer les réglages et détecter les faisceaux sondes en sortie de notre montage. De plus, nous avons intérêt à favoriser la puissance de la pompe (à $500nm$), toute utilisation du NOPA pompé à $343nm$ l'aurait défavorisée.

Pour finir, notons qu'un filtrage spatial du faisceau sonde est effectué après le train de prismes afin d'améliorer son profil transverse d'intensité.

Chapitre 10

Montage d'imagerie pompe-sonde

10.1 Détection interférométrique

10.1.1 Configuration du montage expérimental

La figure 10.1 présente les chemins optiques des impulsions à $690nm$ (les impulsions sondes) de la source jusqu'à l'échantillon et leur détection par une caméra CCD refroidie. Les impulsions sondes sont polarisées horizontalement au début de la chaîne optique et sont chacune à l'origine d'une paire de faisceaux sondes, S_1 et S_2 , de polarisations croisées.

Pour former les sondes S_1 et S_2 , le faisceau sonde S passe par une lame demi-onde ($\lambda/2$) dont l'axe est placé à 22.5° de l'horizontale. Cette lame a pour effet de tourner la polarisation de la sonde de 45° comme le montre la figure 10.2.

La sonde se décompose donc en deux polarisations de même intensité : une verticale et une horizontale. Ces deux polarisations sont séparées par le cube séparateur de polarisation PBS. En effet, ce dernier a la propriété de transmettre les faisceaux polarisés horizontalement et de réfléchir à 90° les faisceaux polarisés verticalement. Ainsi en sortie de PBS, la sonde est séparée en deux faisceaux S_1 (tracé en rouge sur la figure 10.1) et S_2 (tracé en vert sur la figure 10.1). S_1 qui est polarisé horizontalement, passe par le chemin court (a) et S_2 , de polarisation verticale, par le chemin (b) de temps de parcours de $1ns$ plus long que le chemin (a). Nous avons ajouté des polariseurs sur chacun des chemins afin de purifier les polarisations de S_1 et S_2 (non-représentés sur la figure 10.1 par souci de clarté). Une deuxième séparatrice de polarisation PBS2 permet ensuite de recombiner S_1 et S_2 . Puis, les deux sondes ainsi superposées poursuivent leur chemin pour atteindre le premier objectif de microscope, l'échantillon puis le deuxième objectif de microscope. Les deux objectifs de microscope sont identiques ($O.N. = 0.75$, $\times 20$) et sont placés en configuration afocale avec l'échantillon au niveau de leur point focal. Cette disposition est ajustée pour que les faisceaux sondes soient collimatés en sortie

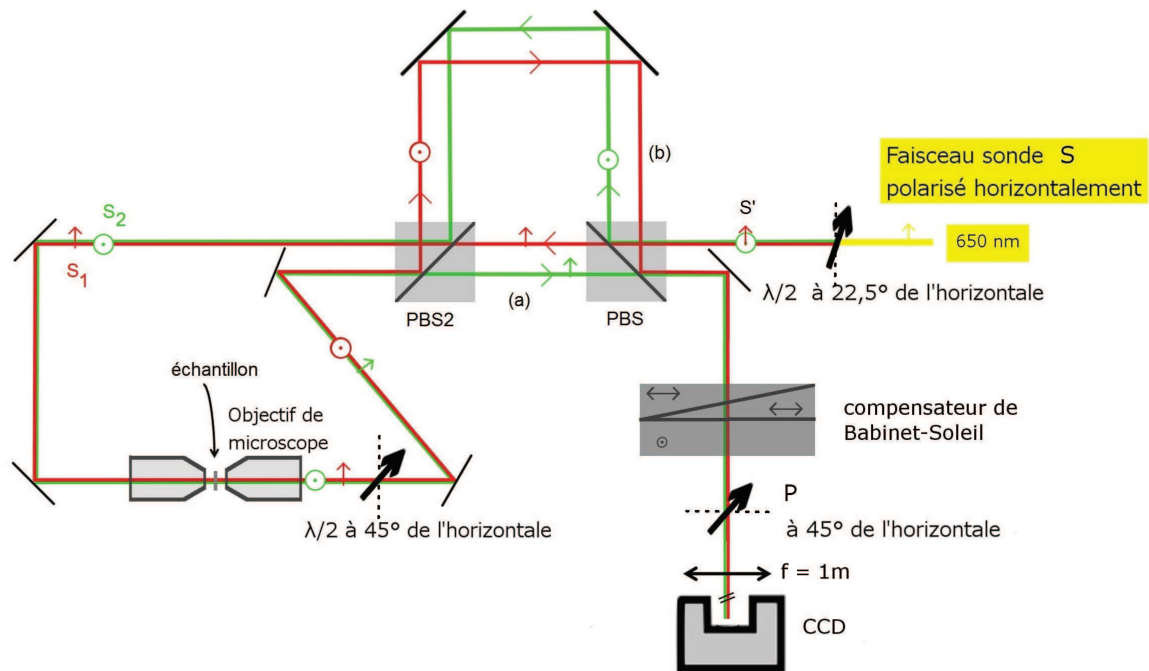


FIGURE 10.1 – Schéma du montage de détection interférométrique. Le faisceau sonde S de 690nm polarisé horizontalement passe par une lame demi-onde ($\lambda/2$) orientée à $22,5^\circ$ de l'horizontale puis elle est séparée en deux par une séparatrice de polarisation (PBS) pour donner S_1 polarisée horizontalement (en rouge) qui parcourt ensuite le chemin court (a) et S_2 polarisée verticalement (en vert) qui passe par le chemin long (b). S_1 et S_2 sont ensuite superposées par la deuxième séparatrice de polarisation (PBS2). Après être passées par les deux objectifs de microscope (et l'échantillon), les deux sondes traversent une lame demi-onde orientée à 45° de la verticale qui inverse leur polarisation : S_1 est alors polarisée verticalement et S_2 horizontalement. Puis elles sont réfléchies vers PBS2 : S_1 passe alors par le chemin (b) et S_2 par (a). PBS recombine les deux sondes, elles sont ensuite réfléchies vers un compensateur de Babinet-Soleil puis sommées suivant l'axe du Polariseur (P) orienté à 45° de la verticale. On observe finalement le profil d'interférence entre S_1 et S_2 grâce à une caméra CCD.

des objectifs (comme elles le sont en amont des objectifs) et pour que leurs parcours soient complètement symétriques par rapport à l'échantillon.

En effet, à la sortie du deuxième objectif de microscope, une lame demi-onde orientée à 45° de la verticale inverse les polarisations des deux sondes : S_1 est alors polarisée verticalement et S_2 horizontalement. Une succession de réflexions permet ensuite de renvoyer les sondes vers PBS2. Comme les polarisations de S_1 et S_2 ont été inversées, leurs chemins optiques seront aussi inverser entre PBS2 et PBS : S_1 va parcourir le chemin long (b) et S_2 le chemin court (a). Ainsi, à la sortie de PBS les deux sondes

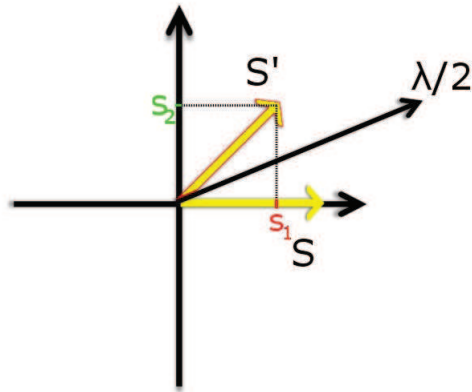


FIGURE 10.2 – Effet d'une lame demie-onde orientée à 22.5° de l'horizontale sur une polarisation horizontale S . La polarisation résultante S' est alors orientée à 45° .

auront parcouru la même longueur optique. Notons que dans le montage expérimental réel, le trajet retour de S_1 et S_2 surplombe le trajet aller.

Pour finir S_1 et S_2 passent par un compensateur de Babinet-Soleil (dont le principe est détaillé plus loin) puis par le polariseur P dont l'axe est orienté à 45° de la verticale. Ce polariseur somme S_1 et S_2 suivant son axe, ce qui leur permet d'interférer. Le profil d'intensité après P s'écrit : $I = I_0 + 2(\mathbf{e}_1 \cdot \mathbf{e}_2)I_0 \cos(\phi_{S_2} - \phi_{S_1})$ avec I_0 l'intensité de la sonde S_1 (identique à l'intensité de la sonde S_2). \mathbf{e}_{p1} et \mathbf{e}_{p2} sont les projections des vecteurs unitaires de polarisations de S_1 et S_2 , respectivement, sur l'axe de P qui sont égaux à $\frac{\sqrt{2}}{2}\mathbf{e}_p$ où \mathbf{e}_p est le vecteur unitaire décrivant la direction de l'axe de P. ϕ_{S_2} et ϕ_{S_1} sont les phases du champ électrique de S_2 et S_1 , respectivement.

Une lentille de focale $f = 1m$ conjugue alors le plan de l'échantillon avec le plan de la caméra *via* le profil d'interférence entre les deux sondes S_1 et S_2 . La caméra utilisée est une caméra EMCCD (*Electron Multiplication Charge Coupled Device*) de haute cadence refroidie par effet Peltier qui permet de travailler sur 64000 niveaux (16 bits) alors qu'une caméra CCD usuelle ne permet que de travailler sur 16000 niveaux (14 bits). Une caméra EMCCD est donc de sensibilité plus élevée qu'une caméra CCD.

Notre montage expérimental devrait donc pouvoir répondre au cahier des charges. L'image observée sur l'EMCCD correspond à la mesure de la différence de phase, $\phi_{S_2} - \phi_{S_1}$, entre la sonde S_2 et la sonde S_1 .

On a finalement, en l'absence d'impulsion pompe, un montage interférométrique qui permet d'obtenir en principe une image en champ sombre, i.e. avec S_1 et S_2 en interférence destructive (grâce au compensateur de Babinet-Soleil) en tout point des deux impulsions sondes.

10.1.2 Le compensateur de Babinet-Soleil et son point de fonctionnement

Le compensateur de Babinet-Soleil

Le compensateur de Soleil-Babinet est une lame à retard biréfringente variable utilisée comme compensateur de phase. La figure 10.3 le représente de manière schématique. Il est composé de deux prismes triangulaires biréfringents, dont les axes lents sont parallèles, qui peuvent coulisser l'un sur l'autre, ainsi qu'une lame qui possède un axe optique orthogonal aux axes optiques des deux prismes. Le matériau composant les prismes et la lame est du quartz. En notant $d1$ l'épaisseur totale traversée dans les deux prismes (variable) et $d2$ l'épaisseur de la lame le long de l'axe de propagation du faisceau, la différence de marche entre deux vibrations lumineuses orthogonales entre elles et parallèles respectivement aux axes optiques des deux parties du compensateur s'écrit : $\delta = (n_o + n_e)(d1 - d2)$ avec n_o et n_e les indices ordinaire et extraordinaire, respectivement, du matériau biréfringent composant le système. Le compensateur de Soleil-Babinet permet donc d'appliquer un déphasage entre les deux sondes S_1 et S_2 dont les polarisations sont orthogonales. Nous pouvons ainsi ajouter un déphasage entre S_1 et S_2 en modifiant $d1$ tel que le déphasage $\Delta(\phi) = \frac{2\pi}{\lambda}\delta = \phi_{S_2} - \phi_{S_1} = \pi$ conduisant théoriquement à obtenir une teinte plate noire (c'est à dire $I = 0$) à la sortie du polariseur P.

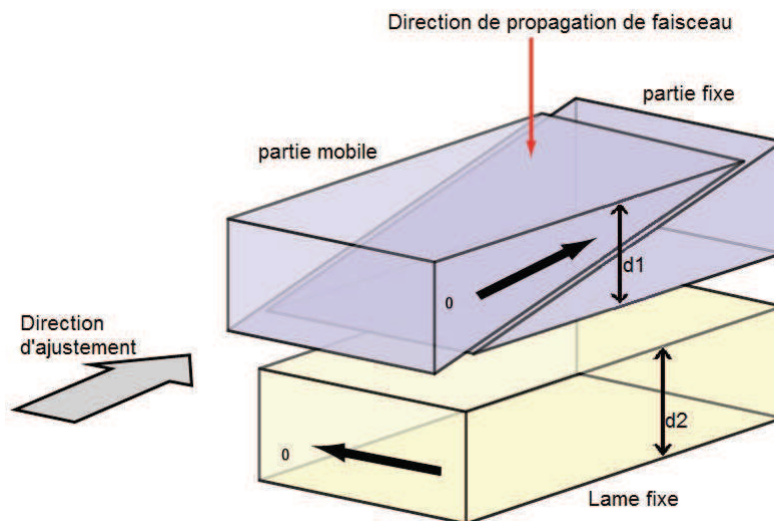


FIGURE 10.3 – Schéma de principe du compensateur de Babinet-Soleil.

Point de fonctionnement

En faisant varier le déphasage $\Delta(\phi)$, nous faisons varier l'intensité de l'interférogramme entre les deux sondes suivant la courbe présentée figure 10.4. Théoriquement cette in-

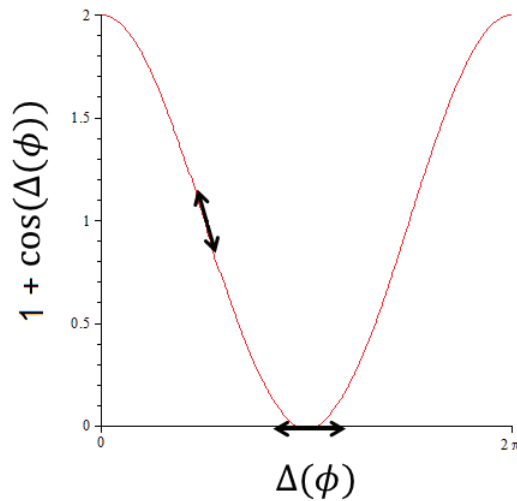


FIGURE 10.4 – Variation de l'intensité normalisée de l'interférogramme entre les sondes S_1 et S_2 en fonction du déphasage $\Delta(\phi)$ appliqué par le compensateur de Soleil-Babinet. Les doubles flèches représentent des variations de phases en deux points de fonctionnement différents.

tensité varie entre 0 et $4I_0$ où I_0 est l'intensité d'une des sondes, c'est à dire entre une teinte plate sombre et une teinte plate brillante. Cependant, expérimentalement nous avons un bruit d'environ 2% nous empêchant d'avoir une extinction totale. De plus, nous n'obtenons pas une teinte plate sombre sur toute la zone imagée mais seulement sur une portion. Cela est dû à la différence de courbure de front d'onde entre S_1 et S_2 . En effet, même si celles-ci parcourent la même longueur de chemin optique, elles ne passent pas exactement aux mêmes endroits sur les différents éléments optiques (miroirs, cubes séparateurs de polarisation PBS et PBS2, etc.). Leurs fronts d'onde peuvent donc en être atteint, causant alors des différences locales entre S_1 et S_2 . Ainsi, même si il semblerait judicieux de travailler en teinte plate noire afin que la moindre variation de phase d'une des sondes apparaisse lumineuse sur l'interférogramme, les distorsions de front d'onde des sondes ne permettent pas de travailler dans cette configuration. De plus, nous cherchons non pas à mesurer des variations de phases statiques mais des variations de phases dynamiques. Il nous faut donc travailler à un point de fonctionnement du compensateur de Babinet-Soleil qui permette d'optimiser la mesure de faibles variations de phase, celle-ci pouvant varier d'une impulsion à l'autre. Sur la figure 10.4 sont représentées par des doubles flèches des variations de phases en deux points de fonctionnement différents : au minimum d'intensité du profil d'interférence ($\Delta(\phi) = \pi$) et en un point intermédiaire ($\Delta(\phi) = \frac{\pi}{2}$). Il est clair qu'un point de fonctionnement intermédiaire permet de mesurer des variations de phases plus faibles : une petite variation de phase se traduit alors par une importante variation d'intensité, contrairement à un point de fonctionnement situé au minimum d'intensité.

Par la suite, nous positionnerons le compensateur de Babinet-Soleil de telle manière à ce que le point de fonctionnement se situe entre le maximum et le minimum d'intensité du profil d'interférence entre S_1 et S_2 , c'est à dire tel que $\Delta(\phi) = \frac{\pi}{2}$ afin d'avoir le plus de sensibilité et de dynamique possibles.

Le compensateur de Babinet-Soleil est donc un élément essentiel pour transformer une faible variation de phase en une variation d'intensité mesurable.

10.2 Imagerie

10.2.1 Disposition du montage expérimental

Le plan de l'échantillon étant conjugué avec le détecteur, nous pouvons obtenir une image en champ large de l'échantillon *via* les sondes. Pour ce faire, nous avons placé une lentille de focale $f = 200mm$ à une distance d'environ $200mm$ en amont du premier objectif de microscope. Cette distance est ajustée pour que les faisceaux sondes se focalisent au niveau du plan focal arrière de cet objectif pour être alors colimatés au niveau de l'échantillon. Cette disposition permet alors d'éclairer l'échantillon en champ large. Chaque point de l'échantillon ainsi éclairé transmet et diffuse la lumière incidente. Chaque point de l'échantillon se comporte alors comme une source secondaire et la relation de phase entre S_1 et S_2 en est alors fortement modifiée.

En sortie, l'axe du polariseur P est orienté suivant l'horizontale pour ne conserver qu'une des deux sondes, nous avons choisi arbitrairement S_2 (mais choisir S_1 nous donnerait le même résultat). En effet, les deux sondes n'ont alors plus du tout le même rayon de courbure à ce niveau car nous avons « dé-symétrisé » le chemin optique des sondes et leur interférogramme présente donc des franges d'interférences.

10.2.2 Image en champ large de l'échantillon

La figure 10.6 montre une image en champ large de l'échantillon de CdS utilisé. Nous pouvons y observer les stries de l'échantillon parallèles à l'axe \mathbf{c} du cristal de CdS. Nous avons placé l'axe \mathbf{c} du cristal à 45° de l'horizontale afin de ne pas être gêné par sa biréfringence. En effet, les faisceaux de polarisation verticale ou horizontale auront une composante parallèle à l'axe \mathbf{c} du cristal identique pour les deux états de polarisation.

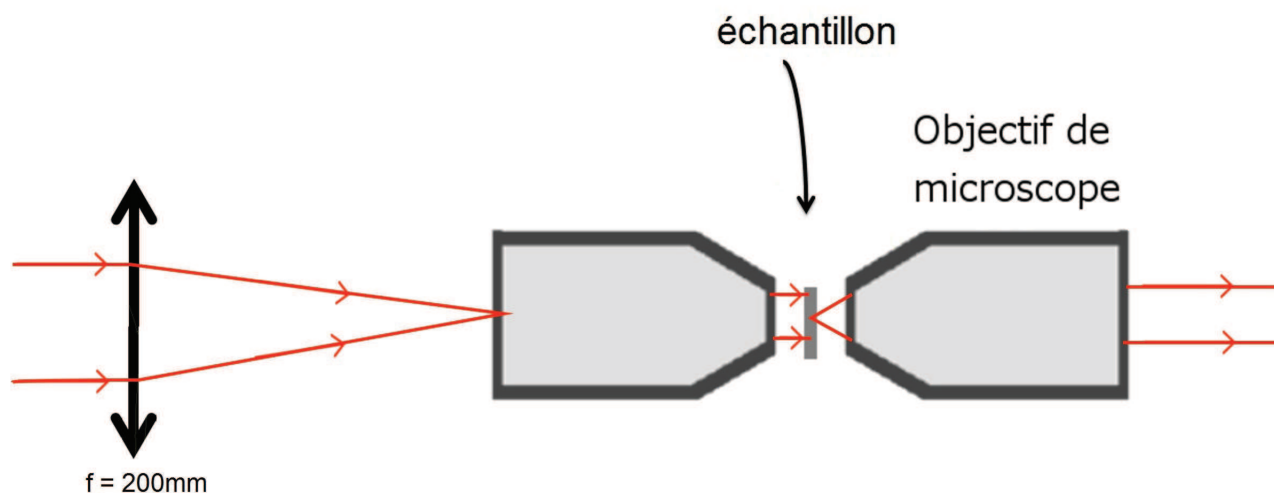


FIGURE 10.5 – Modification du trajet optique des sondes à l'avant du premier objectif de microscope utilisée pour effectuer une image en champ large de l'échantillon de CdS.

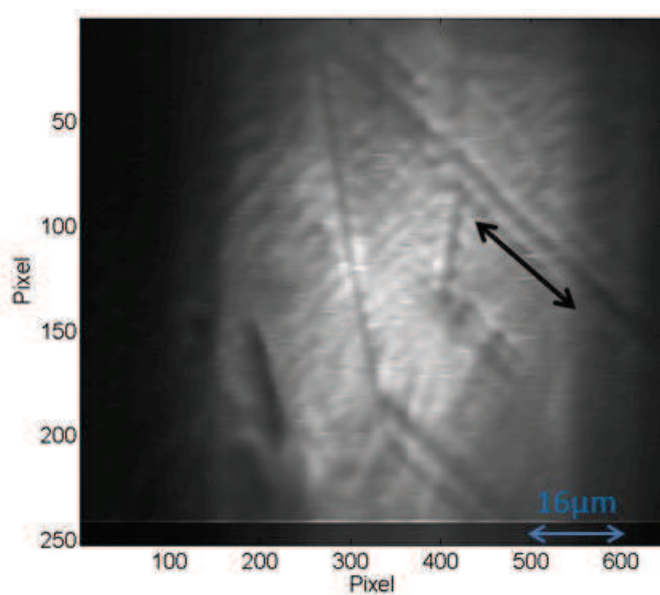


FIGURE 10.6 – Image en champ large de l'échantillon de CdS utilisé

10.2.3 Grandissement réel

Revenons maintenant au montage initial, celui de la figure 10.1. Nous souhaitons déterminer le grandissement transverse entre le plan de l'échantillon et le plan de la caméra. Pour ce faire, nous avons utilisé une mire calibrée : une grille de période $10\mu\text{m}$, que nous avons imagée avec une des sondes sur la CCD, voir figure 10.7.

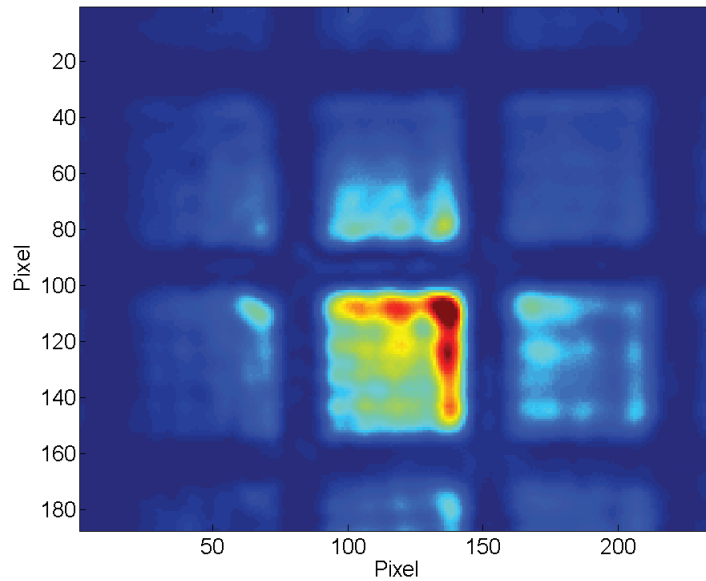


FIGURE 10.7 – Imagerie d'une grille de période $10\mu\text{m}$ réalisée avec S_1 .

Nous pouvons alors vérifier que les images données par chacune des sondes se superposent exactement. Nous obtenons une image de la grille sur la CCD dont la période horizontale est de 71 pixels et la période verticale de 68 pixels. Chaque pixel mesurant $16\mu\text{m} \times 16\mu\text{m}$ nous avons donc un grandissement horizontal de :

$$G_h = \frac{71 \times 16}{10} = 114 \quad (10.1)$$

et un grandissement vertical de

$$G_v = \frac{68 \times 16}{10} = 109 \quad (10.2)$$

Nous remarquons sur cette figure 10.7 que les bords des carrés de la mire ne sont pas très nets. En particulier, nous pouvons noter que les coins sont arrondis. En approximant l'image d'un coin de carré par un cercle dont le diamètre est de 9.7 pixels, soit $155\mu\text{m}$, deux points objets pourront être dissociés si leurs taches, approximées à des cercles, dans le plan image sont séparées d'une distance au moins égale au rayon des cercles, soit 4.85 pixels ou $77.6\mu\text{m}$. Connaissant le grandissement entre le plan objet et le plan image, on peut déterminer la distance minimale entre deux points objets qui donneront deux images distinctes, c'est à dire la résolution spatiale de notre dispositif d'imagerie : $R = 77.6/109 = 0.71\mu\text{m}$ soit 710nm supérieure à la limite de diffraction de $0.6 \frac{\lambda}{O.N.} = 520\text{nm}$.

10.3 Dispositif pompe-sonde

10.3.1 Configuration finale du montage expérimental

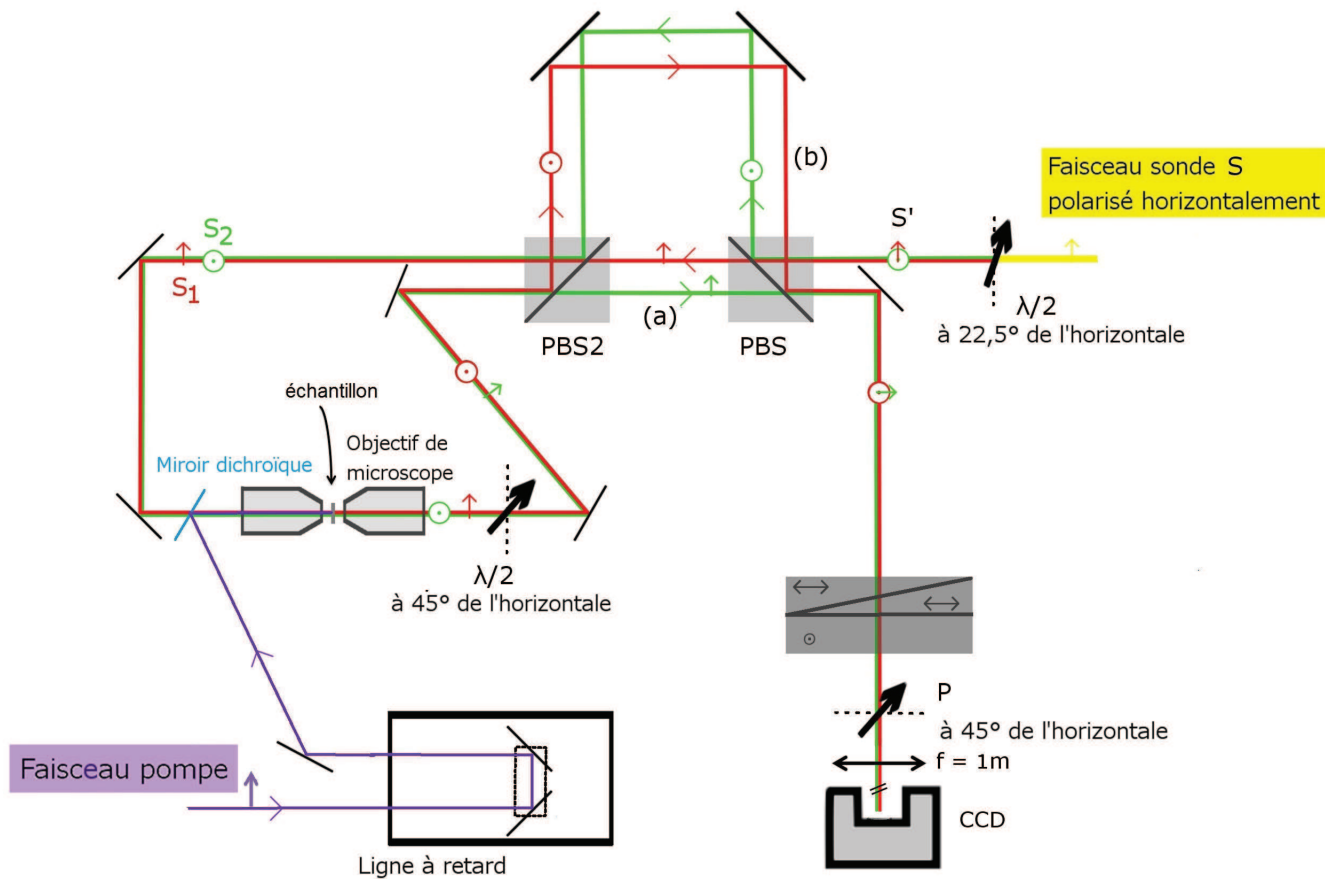


FIGURE 10.8 – Configuration du montage expérimental d'imagerie résolue en temps. Nous avons ajouté un faisceau pompe au dispositif initial de détection interférométrique.

L'impulsion centrée à 500nm constitue la pompe. Celle-ci possède donc une énergie de photon de 2.48eV qui correspond à une résonance avec le premier état excitonique du CdS à température ambiante [34].

Nous avons construit le chemin des impulsions pompe de telle sorte qu'elles arrivent initialement synchrones à celles de S_2 au niveau de l'échantillon. Une ligne à retard permet ensuite de déplacer temporellement les impulsions pompe entre les deux sondes. Le retard $\Delta(t) = t_{S_2} - t_p$ où t_p et t_{S_2} sont les instants d'arrivée sur l'échantillon des impulsions de la pompe et de la sonde S_2 , respectivement.

La pompe arrive de manière colinéaire aux sondes à l'avant du premier objectif de microscope par le biais d'un miroir dichroïque, comme on peut le voir sur la figure 10.8.

Après avoir traversé l'échantillon, la pompe est rejetée du montage expérimental avec un deuxième miroir dichroïque (non représenté sur la figure 10.8).

10.3.2 Résolution temporelle

La ligne à retard utilisée pour faire varier le chemin optique de la pompe est une platine de translation micrométrique M-ILS 250CC de marque Newport Corporation. Elle est pilotée par un contrôleur MM4006 de la même société, interfacée à l'ordinateur via un protocole GPIB. Son pas minimal est de $1\mu\text{m} \pm 0.5\mu\text{m}$, la variation minimale de retard est donc d'environ 7fs . L'amplitude maximale de la ligne est de 250mm ce qui lui permet d'atteindre théoriquement un retard maximal de 1.7ns .

Ainsi en parcourant toute la ligne à retard, la pompe peut arriver après les deux sondes (au niveau de l'échantillon) correspondant à un retard $\Delta(t) = t_{S_2} - t_p \leq 0$, puis être synchrone à S_2 ($\Delta(t) = 0$), puis balayer les 1ns séparant les deux sondes ($0\text{ns} \leq \Delta(t) \leq 1\text{ns}$), pour ensuite devenir synchrone avec la sonde S_1 ($\Delta(t) = 1\text{ns}$) et enfin arriver avant les deux sondes ($\Delta(t) \geq 1\text{ns}$) comme le montre la figure 10.9. Cette disposition permet donc d'observer les décroissances temporelles des excitations créées par la pompe mesurées par S_2 puis par S_1 .

Notons que les 1ns séparant les deux sondes ne permettent pas forcément aux excitations mesurées par S_2 d'avoir relaxées entièrement dans leur état fondamental lorsque S_1 sonde l'échantillon. Ceci dépend bien sûr de l'échantillon étudié. Pour étudier des échantillons dont le temps de relaxation des excitations est supérieur à la nanoseconde, il serait donc nécessaire d'allonger le chemin optique (*b*).

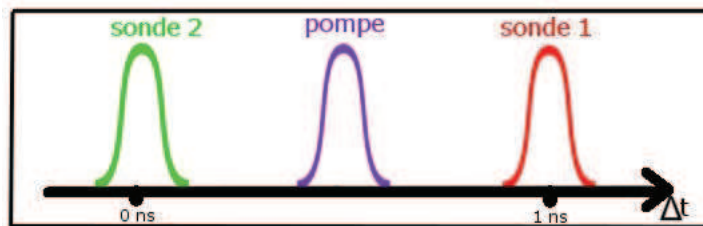


FIGURE 10.9 – Position temporelle de la pompe par rapport aux sondes S_2 et S_1 lors du déplacement de la ligne à retard. La position de la ligne à retard est donnée par $\Delta(t) = t_{S_2} - t_p$.

10.4 Mesures pompe-sonde intégrées spatialement

10.4.1 Pompe centrée à $395nm$

Nous nous sommes d'abord assurés que notre dispositif permettait effectivement de mesurer les décroissances temporelles des excitations créées par la pompe dans le CdS. Nous avons donc enregistré l'interférence entre les deux sondes avec une photodiode sur laquelle nous avons focalisé le faisceau de sortie non plus avec la lentille de $f = 1m$ mais avec une lentille de $f = 20mm$. La photodiode est synchronisée à la fréquence d'un hacheur (ou *chopper*) qui module temporellement la pompe à environ $1kHz$. La figure 10.10 montre l'intensité du signal enregistré en fonction de la position de la pompe sur la ligne à retard. Ce résultat a été obtenu avec une pompe centrée à $395nm$ correspondant à une énergie de photon de $3.8eV$.

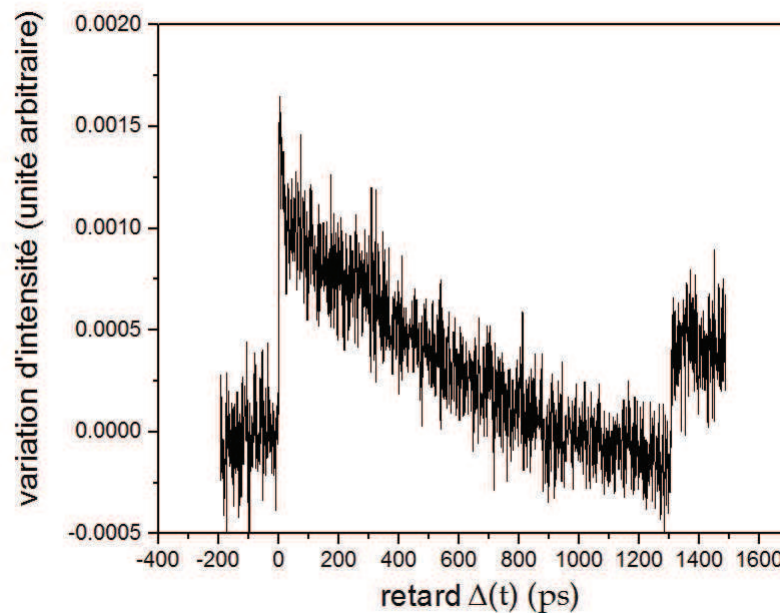


FIGURE 10.10 – Intensité de l'interférence des deux sondes intégrée spatialement en fonction de la position de la pompe sur la ligne à retard. La pompe est centrée ici à $395nm$ correspondant à une énergie de photon de $3.8eV$.

Le premier signal pompe-sonde observé sur la figure 10.10 est dû à la variation de l'intensité de la sonde S_2 transmis par l'échantillon après excitation de celui-ci par la pompe. À retard négatif, la pompe arrive après les deux sondes, celles-ci ne sont donc pas modifiées et leur interférence donne une teinte plate sombre. Ensuite à $\Delta(t) = 0$, S_2 traverse l'échantillon modifié par la pompe et un premier signal pompe-sonde apparaît. La phase de la sonde S_2 est alors fortement modifiée par le fait que

l'indice de l'échantillon a été modifié par la pompe. Nous observons ensuite une première décroissance rapide puis une deuxième plus longue.

La première est dû aux relaxations intra-bande non-radiative des excitons photocréés. Ces relaxations se font en générant des phonons LO (longitudinal optique). On estime qu'il faut $120fs$ par génération de phonon LO et que ceux-ci possèdent une énergie d'environ $37meV$ [15]. On peut alors déduire le temps de décroissance non-radiatif de la différence entre l'énergie des photons incidents et l'énergie de liaison de l'exciton B du CdS. Sachant que cette différence d'énergie est de $3.8 - 2.5 = 0.7eV$, il y a environ $\frac{0.7}{0.037} \approx 19$ phonons LO générés, on s'attend donc à un temps de décroissance non-radiatif de $T_{NR} = 19 \times 120 = 2270fs$ soit environ $2.3ps$. Un ajustement au moindre carré de la première décroissance observée sur le figure 10.10 nous donne un temps de décroissance d'environ $2ps$, ce qui correspond tout à fait à notre estimation. Une fois que les excitations photocréées ont atteint le bas de bande, c'est à dire que les électrons ont atteint le bas de la bande de conduction et les trous le haut de la bande de valence A, ils peuvent relaxer radiativement, les électrons et les trous se recombinent en émettant des photons.

La deuxième décroissance observée correspond donc à la relaxation radiative des excitons, celle-ci se fait avec un temps caractéristique $T_1 \simeq 1ns$, correspondant au temps de vie des excitations, beaucoup plus long. On trouve dans la littérature des valeurs de T_1 allant de $5ns$ à quelques dizaines de ns en fonction des échantillons [54].

Notons que le deuxième signal pompe-sonde observé, celui dû à la sonde S_1 , est légèrement moins intense que celui dû à S_2 . En effet, lorsque la sonde pompe devient synchrone à S_1 , le signal pompe-sonde vu par S_2 n'a pas encore relaxé, donc la variation d'intensité de l'interférence entre S_1 et S_2 est plus faible.

10.4.2 Pompe centrée à 500nm

La figure 10.11 présente l'intensité de l'interférence des deux sondes intégrée spatialement en fonction du retard $\Delta(t) = t_{S_2} - t_p$. La pompe est ici centrée à 500nm, soit 2.48eV, c'est à dire en résonance avec le premier état excitonique du CdS. Le signal pompe-sonde S_2 décroît avec une constante de temps longue (supérieure à 1ns) correspondant bien au temps T_1 que l'on peut trouver dans la littérature [54]. Lorsque la pompe devient synchrone avec S_1 , les deux sondes « voient » quasiment la même chose puisque les excitations photocréées par la pompe à $\Delta(t) = 0ns$ ont à peine relaxé. Le signal pompe-sonde S_1 est donc légèrement inférieur au signal pompe-sonde S_2 et la variation d'intensité de leur interférence devient négative.

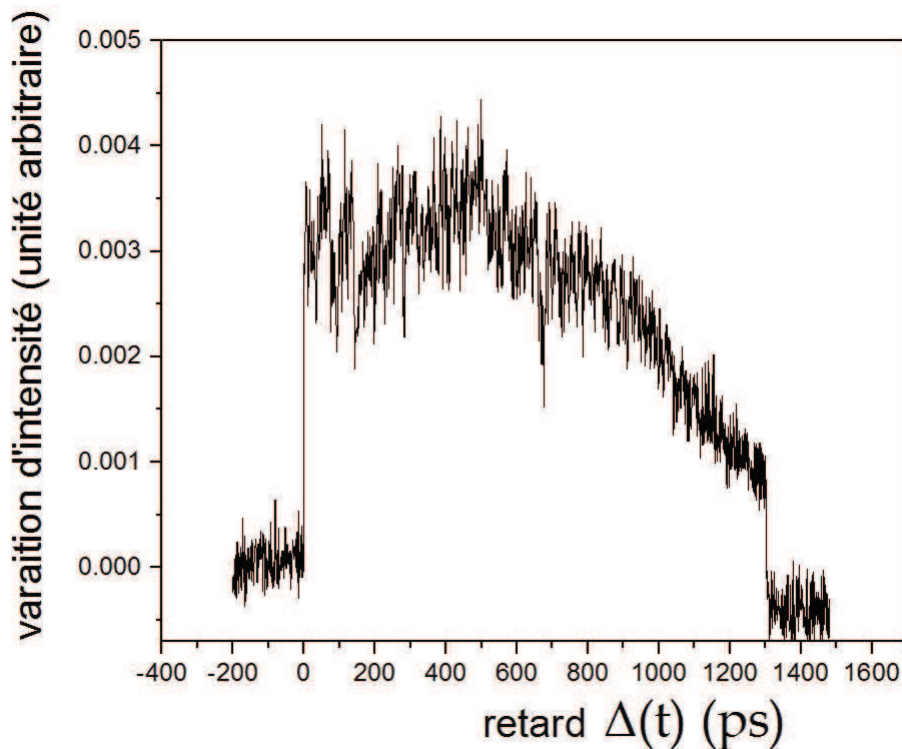


FIGURE 10.11 – Variation d'intensité de l'interférence des deux sondes intégrée spatialement en fonction de la position de la pompe sur la ligne à retard. La pompe est centrée ici à 500nm.

Notre montage expérimental permet donc de mesurer des décroissances temporelles de l'ordre de la picoseconde par mesure de la différence de phase entre les deux sondes S_1 et S_2 traversant l'échantillon.

10.5 Mesures pompe-sonde résolues spatialement

Lorsque nous mesurons le profil d'interférence des deux sondes avec la caméra EMCCD, nous enregistrons une image (ou profil d'interférence) par position de la ligne à retard. L'image est enregistrée suivant une méthode différentielle grâce à un obturateur mécanique (ou *shutter*) placé sur le chemin optique du faisceau pompe. On enregistre la succession d'images suivantes : avec pompe puis sans pompe, un programme procède ensuite à la différence des deux images enregistrées pour chaque position de la ligne à retard.

Étudions maintenant les images enregistrées. Nous allons présenter les différents résultats obtenus sur une acquisition réalisée sur l'échantillon de CdS pour laquelle nous avons fait varier la ligne à retard entre $-22ps$ et $158ps$ par pas de $1ps$. Ces mesures ont été faites avec une pompe centrée à $395nm$.

10.5.1 Images enregistrées

L'EMCCD enregistre l'intensité reçue par chaque pixel. Un programme MATLAB nous permet alors de reconstruire chaque image. Ces images sont ensuite exploitées grâce à ImageJ, un logiciel de traitement d'image. Nous avons créé un programme sous ImageJ qui nous permet d'obtenir une représentation 3D des images enregistrées. La figure 10.12 montre cette représentation en 3D. Nous visualisons alors le profil d'interférence à différents retards $\Delta(t)$. Le profil d'interférence à un retard donné correspond à une coupe suivant le rectangle vert sur la figure 10.12.

Nous pouvons aussi visualiser une coupe suivant le rectangle bleu (figure 10.12) grâce à notre programme. Cette coupe revient alors à visualiser une tranche spatiale suivant l'axe \mathbf{x} à une position y choisie en fonction du retard $\Delta(t)$.

Le traitement numérique que réalise le programme ImageJ nécessite beaucoup de ressource, c'est pourquoi nous ne pouvons pas parcourir toute la ligne à retard avec un pas aussi fin que $1ps$ (cela correspondrait à enregistrer 1700 images!).

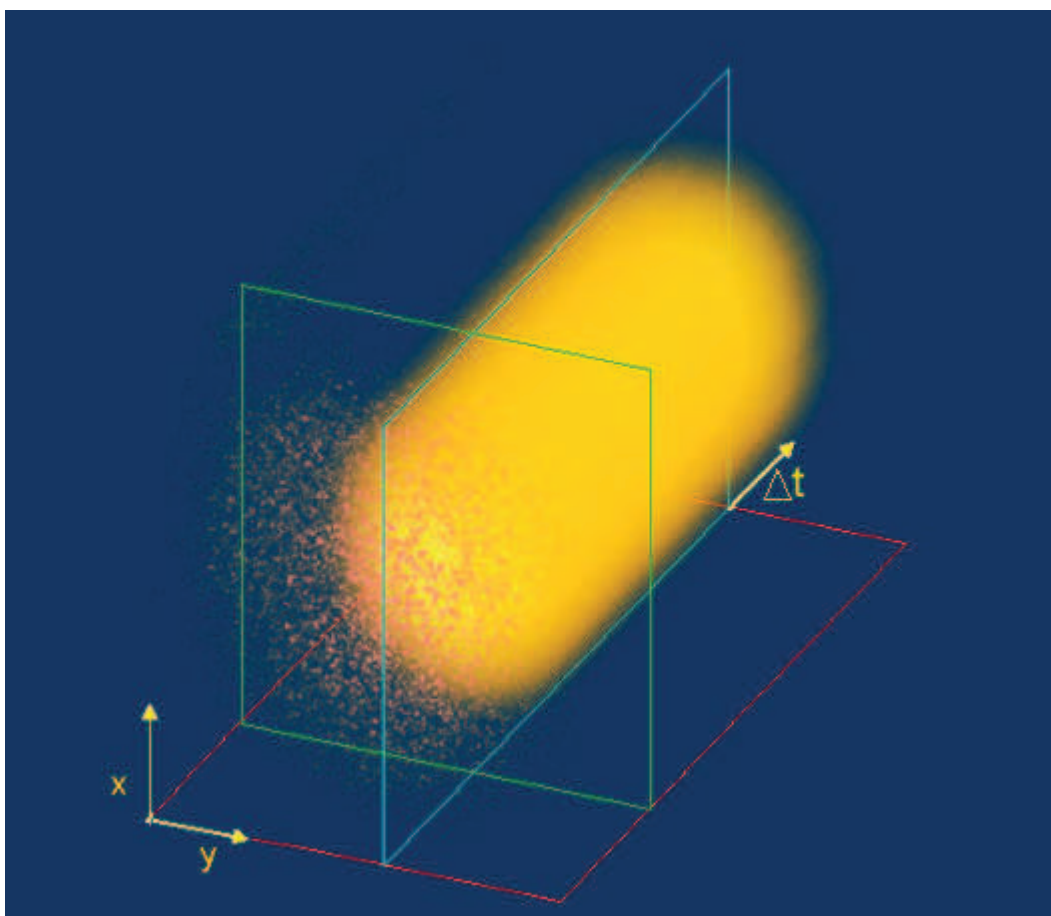


FIGURE 10.12 – Représentation de l'enregistrement faite par la caméra EMCCD.

La figure 10.13 nous montre un profil spatial de l'interférence entre les deux sondes avant l'arrivée de la pompe. Nous observons une teinte plate sombre réalisée grâce au compensateur de Babinet-Soleil.



FIGURE 10.13 – Interférogramme des sondes avant l'arrivée de la pompe.

La figure 10.14 nous montre ce même profil d'interférence après l'arrivée de la pompe pour $\Delta(t) = 24ps$. Nous observons une teinte plate brillante.

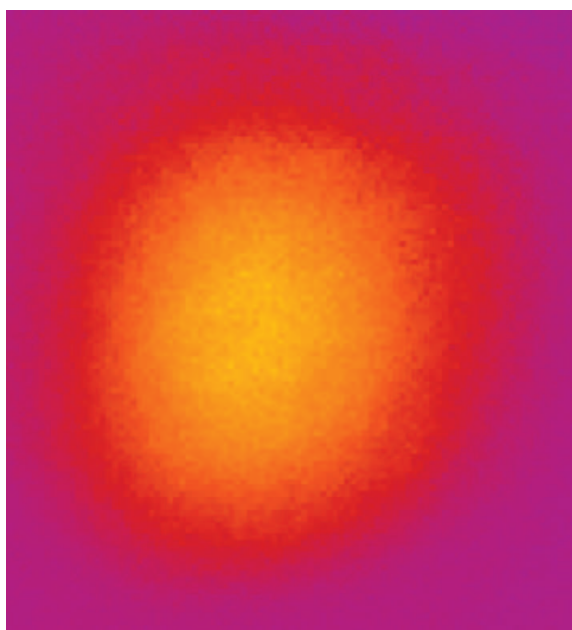


FIGURE 10.14 – Interférogramme des sondes à $\Delta(t) = 24ps$.

Sur cette dernière image, nous pouvons mesurer la taille des sondes. Sur le plan de la CCD, la dimension des sondes est horizontalement de 70 pixels et verticalement de 80 pixels. Au vue des grandissements transversaux déterminés précédemment, on déduit de nos mesures que les sondes ont horizontalement une taille de $10\mu m$ et verticalement de $12\mu m$.

Pour $\Delta(t) = 158ps$ nous observons une teinte plate d'intensité légèrement plus faible, comme on peut l'observer sur la figure 10.15. On devine ainsi la décroissance du signal pompe-sonde observé sur les données intégrées spatialement (voir 10.11).

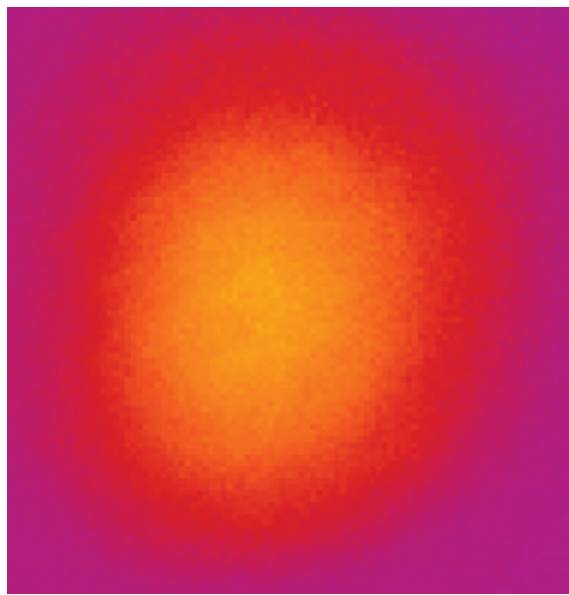


FIGURE 10.15 - *Interférogramme des sondes à $\Delta(t) = 158ps$.*

10.5.2 Coupes spatiales

La figure 10.17 présente une coupe spatiale à une position y_1 du profil d'interférence. Cela correspond à une coupe suivant le rectangle bleu de la figure 10.12 et correspond à un champ de $13 \times 16 \mu m$ dans le plan objet (identique pour toutes les figures présentées dans la suite). La position y_1 choisie pour effectuer cette coupe est indiquée par le trait noir sur la figure 10.16.

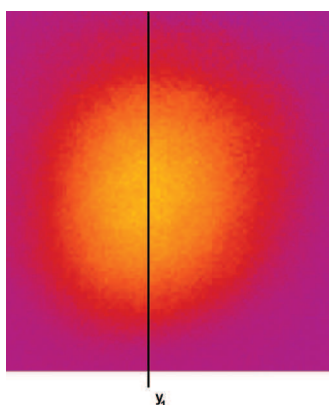


FIGURE 10.16 – Positionnement de la coupe spatiale effectuée sur le profil d'interférence enregistré à une position y_1 .

La figure 10.17 nous montre le profil d'intensité de l'interférence entre S_1 et S_2 dans le plan $(x, \Delta(t))$. Le niveau de couleur est proportionnel à l'intensité mesurée : rose est le niveau le plus bas et jaune le plus élevé.

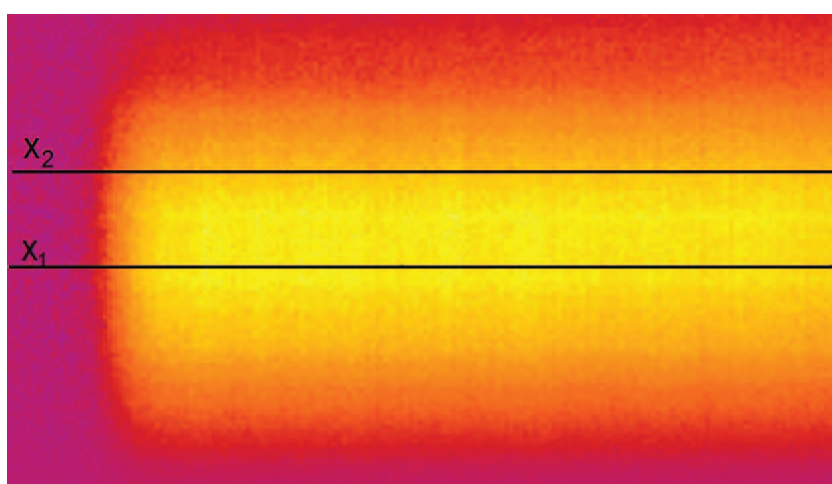


FIGURE 10.17 – Trace temporelle de la tranche spatiale (x, y_1) . Nous observons l'intensité du profil d'interférence suivant la direction x en fonction du retard $\Delta(t)$. Le niveau de couleur est proportionnel à l'intensité : rose est le niveau le plus bas et jaune le plus élevé.

Nous pouvons ensuite effectuer des coupes à différentes valeurs de x . En effectuant une coupe à une position x_1 donnée, indiqué sur la figure 10.17, nous pouvons visualiser la décroissance temporelle du signal pompe-sonde à une position (x_1, y_1) du plan de l'échantillon. La variation de l'intensité du profil d'interférence en (x_1, y_1) en fonction du retard $\Delta(t)$ est représentée sur la figure 10.18.

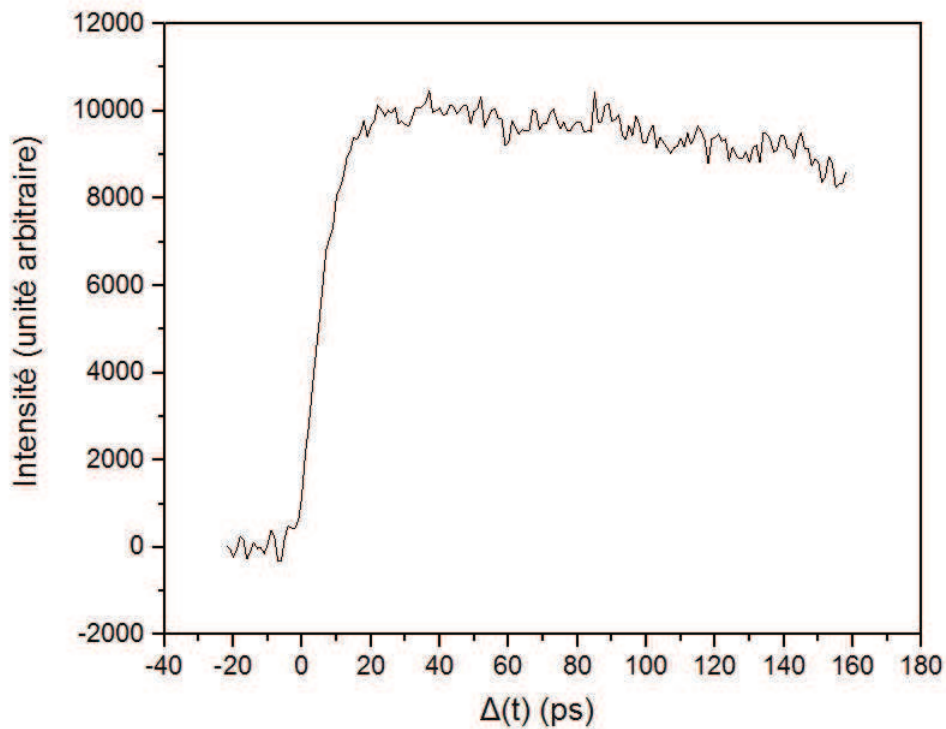


FIGURE 10.18 – Intensité de l'interférence des deux sondes à la position (x_1, y_1) en fonction de la position de la pompe sur la ligne à retard. La pompe est centrée ici à 500nm.

Une coupe à une autre valeur de x , x_2 , indiquée sur la figure 10.17, nous donne une décroissance temporelle un peu différente. Celle-ci est représentée sur la figure 10.19. À cette position (x_2, y_1) , le signal de pompe-sonde (on observe ici celui dû au variation de S_2 après l'arrivée de la pompe) présente ici un plateau et non une décroissance comme c'était le cas pour la position (x_1, y_1) . La différence entre 10.18 et 10.19 peut venir d'une différence d'épaisseur

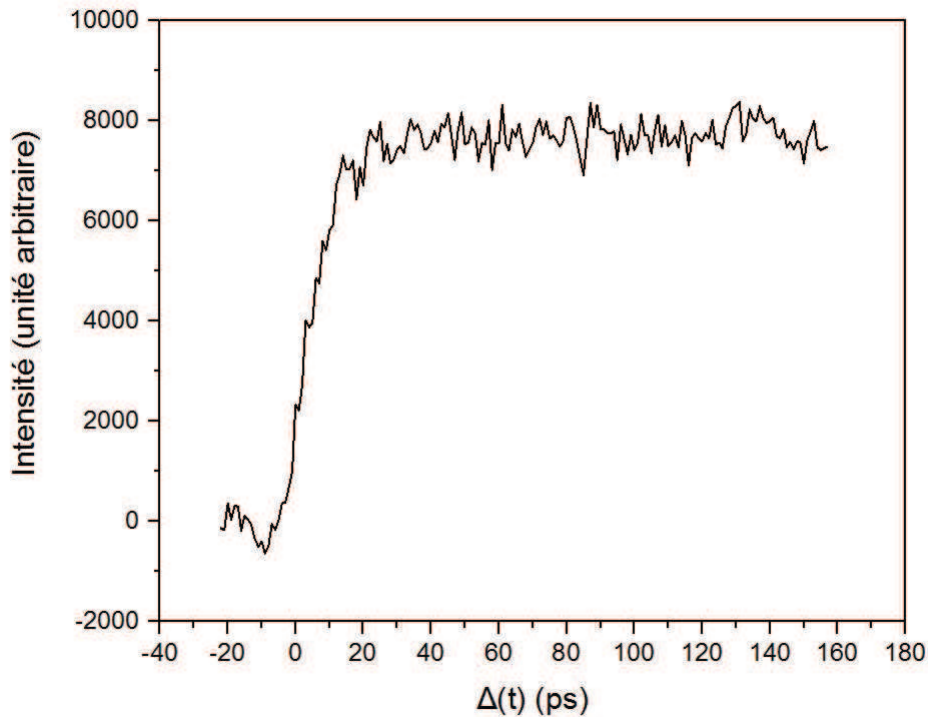


FIGURE 10.19 – Intensité de l'interférence des deux sondes à la position (x_2, y_1) en fonction de la position de la pompe sur la ligne à retard. La pompe est centrée ici à 500nm .

10.5.3 Résolution spatiale

Nous pouvons effectuer le traitement précédent pour chaque valeur de y et pour chaque valeur de x . Nous pouvons donc obtenir les variations de l'intensité de l'interférence entre S_1 et S_2 pour chaque pixel de la caméra CCD. Chaque pixel mesure $16\mu\text{m} \times 16\mu\text{m}$ sur le plan de la CCD et correspond à une taille d'environ $140\text{nm} \times 150\text{nm}$ sur le plan de l'échantillon.

Notre montage expérimental permet donc en une acquisition de réaliser des centaines d'expérience pompe-sonde à différentes positions sur l'échantillon, ce qui nécessiterait d'effectuer un scan de l'échantillon et d'observer les éventuelles inhomogénéités spatiales d'un échantillon.

10.6 Modélisation des mesures réalisées

Considérons un objet illuminé en lumière cohérente par deux impulsions. Les deux impulsions acquièrent un retard de phase dans leur traversée d'un échantillon d'épaisseur homogène d . Pour l'impulsion 2, on tient compte de la variation d'indice induite par la pompe. Les impulsions à la sortie de l'échantillon sont décrites par les champs

complexes :

$$\mathcal{E}_{10}(\mathbf{r}, t) = |\mathcal{E}_{10}(\mathbf{r}, t)| . e^{-i\phi_{10}(\mathbf{r}, t)} . e^{-in_0(\mathbf{r}) \frac{\omega_0 d}{c}} . e^{i\omega_0 t} \quad (10.3)$$

et

$$\mathcal{E}_{20}(\mathbf{r}, t) = |\mathcal{E}_{20}(\mathbf{r}, t)| . e^{-i\phi_{20}(\mathbf{r}, t)} . e^{-i(n_0(\mathbf{r}) + \Delta n(\mathbf{r})) \frac{\omega_0 d}{c}} . e^{i\omega_0 t} \quad (10.4)$$

Les phases ϕ_{i0} tiennent compte des aberrations et autres défauts du montage optique. La fonction de transfert $h(\mathbf{r})$ de l'optique imageant l'objet, décrit par \mathbf{r} , donne pour les champs dans le plan image, décrit par \mathbf{R} :

$$\mathcal{E}_{iI}(\mathbf{R}, t) = \int d\mathbf{r} h(\mathbf{R} - \mathbf{r}) \mathcal{E}_{i0}(\mathbf{r}, t) \quad (10.5)$$

L'intensité dans le plan image s'écrit :

$$I_I(\mathbf{R}, t) = \frac{\mathcal{E}_I(\mathbf{R}, t) \cdot \mathcal{E}_I^*(\mathbf{R}, t)}{16\pi} \quad (10.6)$$

$$= \frac{1}{16\pi} \int d\mathbf{r} h(\mathbf{R} - \mathbf{r}) \quad (10.7)$$

$$\begin{aligned} & \left(|\mathcal{E}_{10}(\mathbf{r}, t)| . e^{-i\phi_{10}(\mathbf{r}, t)} . e^{-in_0(\mathbf{r}) \frac{\omega_0 d}{c}} + |\mathcal{E}_{20}(\mathbf{r}, t)| . e^{-i\phi_{20}(\mathbf{r}, t)} . e^{-i(n_0(\mathbf{r}) + \Delta n(\mathbf{r})) \frac{\omega_0 d}{c}} \right) e^{i\omega_0 t} . \\ & \int d\mathbf{r}' h^*(\mathbf{R} - \mathbf{r}') \\ & \left(|\mathcal{E}_{10}(\mathbf{r}', t)| . e^{-i\phi_{10}(\mathbf{r}', t)} . e^{-in_0(\mathbf{r}') \frac{\omega_0 d}{c}} + |\mathcal{E}_{20}(\mathbf{r}', t)| . e^{-i\phi_{20}(\mathbf{r}', t)} . e^{-i(n_0(\mathbf{r}') + \Delta n(\mathbf{r}')) \frac{\omega_0 d}{c}} \right)^* e^{-i\omega_0 t} \\ & = \frac{1}{16\pi} \int \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' h(\mathbf{R} - \mathbf{r}) h^*(\mathbf{R} - \mathbf{r}') \quad (10.8) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \left(|\mathcal{E}_{10}(\mathbf{r}, t)| \cdot |\mathcal{E}_{10}(\mathbf{r}', t)| . e^{-i\phi_{10}(\mathbf{r}, t)} . e^{i\phi_{10}(\mathbf{r}', t)} . e^{-in_0(\mathbf{r}) \frac{\omega_0 d}{c}} . e^{in_0(\mathbf{r}') \frac{\omega_0 d}{c}} \right. \\ & + |\mathcal{E}_{10}(\mathbf{r}, t)| \cdot |\mathcal{E}_{20}(\mathbf{r}', t)| . e^{-i\phi_{10}(\mathbf{r}, t)} . e^{i\phi_{20}(\mathbf{r}', t)} . e^{-in_0(\mathbf{r}) \frac{\omega_0 d}{c}} . e^{i(n_0(\mathbf{r}') + \Delta n(\mathbf{r}')) \frac{\omega_0 d}{c}} \\ & + |\mathcal{E}_{20}(\mathbf{r}, t)| \cdot |\mathcal{E}_{10}(\mathbf{r}', t)| . e^{-i\phi_{20}(\mathbf{r}, t)} . e^{i\phi_{10}(\mathbf{r}', t)} . e^{-i(n_0(\mathbf{r}) + \Delta n(\mathbf{r})) \frac{\omega_0 d}{c}} . e^{in_0(\mathbf{r}') \frac{\omega_0 d}{c}} \\ & \left. + |\mathcal{E}_{20}(\mathbf{r}, t)| \cdot |\mathcal{E}_{20}(\mathbf{r}', t)| . e^{-i\phi_{20}(\mathbf{r}, t)} . e^{i\phi_{20}(\mathbf{r}', t)} . e^{-i(n_0(\mathbf{r}) + \Delta n(\mathbf{r})) \frac{\omega_0 d}{c}} . e^{i(n_0(\mathbf{r}') + \Delta n(\mathbf{r}')) \frac{\omega_0 d}{c}} \right) \end{aligned}$$

Quand la lumière est cohérente le produit des champs en deux point \mathbf{r} et \mathbf{r}' différents est non nul (ce qui se traduit par l'absence de fonction de Dirac $\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$).

Prenons le cas d'un éclairage uniforme $|\mathcal{E}_{20}(\mathbf{r}, t)| = |\mathcal{E}_{20}(\mathbf{r}', t)| = \mathcal{E}_0(t)$ et $\phi_{20}(\mathbf{r}, t) = \phi_{10}(\mathbf{r}, t) + \Delta\phi$ en tout point \mathbf{r} .

$$\begin{aligned} I_I(\mathbf{R}, t) &= \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{16\pi} \int \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' h(\mathbf{R} - \mathbf{r}) h^*(\mathbf{R} - \mathbf{r}') . e^{-i\phi_{10}(\mathbf{r}, t)} . e^{i\phi_{10}(\mathbf{r}', t)} . \quad (10.9) \\ & \left(e^{-in_0(\mathbf{r}) \frac{\omega_0 d}{c}} . e^{in_0(\mathbf{r}') \frac{\omega_0 d}{c}} \right. \\ & + e^{i\Delta\phi} . e^{-in_0(\mathbf{r}) \frac{\omega_0 d}{c}} . e^{i(n_0(\mathbf{r}') + \Delta n(\mathbf{r}')) \frac{\omega_0 d}{c}} \\ & + e^{-i\Delta\phi} . e^{-i(n_0(\mathbf{r}) + \Delta n(\mathbf{r})) \frac{\omega_0 d}{c}} . e^{in_0(\mathbf{r}') \frac{\omega_0 d}{c}} \\ & \left. + e^{-i(n_0(\mathbf{r}) + \Delta n(\mathbf{r})) \frac{\omega_0 d}{c}} . e^{i(n_0(\mathbf{r}') + \Delta n(\mathbf{r}')) \frac{\omega_0 d}{c}} \right) \end{aligned}$$

On considère maintenant une variation petite de l'indice, on peut alors faire l'approximation suivante :

$$e^{-i(n_0(\mathbf{r})+\Delta n(\mathbf{r}))\frac{\omega_0 d}{c}} \simeq \left(1 - i\Delta n(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c} e^{-in_0(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c}}\right) \quad (10.10)$$

L'intensité dans le plan image au point \mathbf{R} et à l'instant t s'écrit alors :

$$I_I(\mathbf{R}, t) = \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{16\pi} \int \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' h(\mathbf{R} - \mathbf{r}) h^*(\mathbf{R} - \mathbf{r}') . e^{-i\phi_{10}(\mathbf{r}, t)} . e^{i\phi_{10}(\mathbf{r}', t)} . \quad (10.11)$$

$$\begin{aligned} & \left(e^{-in_0(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c}} . e^{in_0(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c}} \right. \\ & + e^{i\Delta\phi} . e^{-in_0(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c}} . \left(1 + i\Delta n(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c} \right) e^{in_0(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c}} \\ & + e^{-i\Delta\phi} . \left(1 - i\Delta n(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c} \right) e^{-in_0(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c}} e^{in_0(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c}} \\ & \left. + \left(1 - i\Delta n(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c} \right) e^{-in_0(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c}} . \left(1 + i\Delta n(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c} \right) e^{in_0(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c}} \right) \end{aligned}$$

$$= \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{16\pi} \int \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' h(\mathbf{R} - \mathbf{r}) h^*(\mathbf{R} - \mathbf{r}') . \quad (10.12)$$

$$e^{-i(\phi_{10}(\mathbf{r}, t) - \phi_{10}(\mathbf{r}', t))} . e^{-i(n_0(\mathbf{r}) - n_0(\mathbf{r}'))\frac{\omega_0 d}{c}} .$$

(1

$$\begin{aligned} & + e^{i\Delta\phi} . \left(1 + i\Delta n(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c} \right) \\ & + e^{-i\Delta\phi} . \left(1 - i\Delta n(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c} \right) \\ & \left. + \left(1 - i\Delta n(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c} \right) . \left(1 + i\Delta n(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c} \right) \right) \end{aligned}$$

$$= \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{16\pi} \int \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' h(\mathbf{R} - \mathbf{r}) h^*(\mathbf{R} - \mathbf{r}') . \quad (10.13)$$

$$e^{-i(\phi_{10}(\mathbf{r}, t) - \phi_{10}(\mathbf{r}', t))} . e^{-i(n_0(\mathbf{r}) - n_0(\mathbf{r}'))\frac{\omega_0 d}{c}} .$$

(2 + 2 cos($\Delta\phi$)

$$\begin{aligned} & + e^{i\Delta\phi} . i\Delta n(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c} - e^{-i\Delta\phi} . i\Delta n(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c} \\ & - i\Delta n(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c} + i\Delta n(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c} + \Delta n(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c} \Delta n(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c} \end{aligned}$$

$$= \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{16\pi} \int \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' h(\mathbf{R} - \mathbf{r}) h^*(\mathbf{R} - \mathbf{r}') . \quad (10.14)$$

$$e^{-i(\phi_{10}(\mathbf{r}, t) - \phi_{10}(\mathbf{r}', t))} . e^{-i(n_0(\mathbf{r}) - n_0(\mathbf{r}'))\frac{\omega_0 d}{c}} .$$

(2 + 2 cos($\Delta\phi$)

$$\begin{aligned} & + i(e^{i\Delta\phi} + 1) . \Delta n(\mathbf{r}')\frac{\omega_0 d}{c} - i(e^{-i\Delta\phi} + 1) . \Delta n(\mathbf{r})\frac{\omega_0 d}{c} \\ & + \Delta n(\mathbf{r}) . \Delta n(\mathbf{r}') . \omega_0^2 d^2 / c^2 \end{aligned}$$

On obtient donc :

$$\begin{aligned}
I_I(\mathbf{R}, t) &= \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{16\pi} \int \int d\mathbf{r}d\mathbf{r}' h(\mathbf{R} - \mathbf{r}) h^*(\mathbf{R} - \mathbf{r}') \cdot \\
&e^{-i(\phi_{10}(\mathbf{r}, t) - \phi_{10}(\mathbf{r}', t))} \cdot e^{-i(n_0(\mathbf{r}) - n_0(\mathbf{r}')) \frac{\omega_0 d}{c}} \cdot \\
&\left(4 \cos^2 \left(\frac{\Delta\phi}{2} \right) \right. \\
&+ 2i \frac{\omega_0 d}{c} \cos^2 \left(\frac{\Delta\phi}{2} \right) (\Delta n(\mathbf{r}') - \Delta n(\mathbf{r})) \\
&- 2 \frac{\omega_0 d}{c} \cos \left(\frac{\Delta\phi}{2} \right) \cdot \sin \left(\frac{\Delta\phi}{2} \right) (\Delta n(\mathbf{r}') + \Delta n(\mathbf{r})) \\
&\left. + \frac{\omega_0^2 d^2}{c^2} \Delta n(\mathbf{r}) \cdot \Delta n(\mathbf{r}') \right)
\end{aligned} \tag{10.15}$$

Deux cas particuliers sont intéressants. D'une part quand la différence de phases entre les deux impulsions sondes $\Delta\phi = \pi$ est appliquée avec le compensateur de Soleil-Babinet pour être en teintes plates sombres :

$$\begin{aligned}
I_I(\mathbf{R}, t) &= \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{16\pi} \int \int d\mathbf{r}d\mathbf{r}' h(\mathbf{R} - \mathbf{r}) h^*(\mathbf{R} - \mathbf{r}') \cdot \\
&e^{-i(\phi_{10}(\mathbf{r}, t) - \phi_{10}(\mathbf{r}', t))} \cdot e^{-i(n_0(\mathbf{r}) - n_0(\mathbf{r}')) \frac{\omega_0 d}{c}} \cdot \\
&\frac{\omega_0^2 d^2}{c^2} \Delta n(\mathbf{r}) \cdot \Delta n(\mathbf{r}')
\end{aligned} \tag{10.16}$$

L'intensité dans le plan image est alors proportionnelle au carré de la variation d'indice induite par la pompe Δn . Cette variation d'indice étant faible, la variation d'intensité dans le plan image due à la pompe sera alors très faible et difficilement mesurable.

D'autre part quand $\Delta\phi = \pi/2$, la phase des impulsions sondes est alors réglée pour être au point de fonctionnement intermédiaire du Soleil-babinet où la modulation est mesurée à son maximum :

$$\begin{aligned}
I_I(\mathbf{R}, t) &= \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{16\pi} \int \int d\mathbf{r}d\mathbf{r}' h(\mathbf{R} - \mathbf{r}) h^*(\mathbf{R} - \mathbf{r}') \cdot \\
&e^{-i(\phi_{10}(\mathbf{r}, t) - \phi_{10}(\mathbf{r}', t))} \cdot e^{-i(n_0(\mathbf{r}) - n_0(\mathbf{r}')) \frac{\omega_0 d}{c}} \cdot \\
&(2 \\
&+ i \frac{\omega_0 d}{c} (\Delta n(\mathbf{r}') - \Delta n(\mathbf{r})) \\
&- \frac{\omega_0 d}{c} (\Delta n(\mathbf{r}') + \Delta n(\mathbf{r})) \\
&+ \frac{\omega_0^2 d^2}{c^2} \Delta n(\mathbf{r}) \cdot \Delta n(\mathbf{r}'))
\end{aligned} \tag{10.17}$$

Dans ce dernier cas, le dernier terme sera négligeable car il est proportionnel au carré de Δn . Quant au premier terme, il reste quand la variation d'indice est nulle : on le

soustraira en faisant une mesure « sans pompe » donnant

$$I_{I,sanspompe}(\mathbf{R}, t) = 2 \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{16\pi} \int \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' h(\mathbf{R} - \mathbf{r}) h^*(\mathbf{R} - \mathbf{r}'). \quad (10.18)$$

$$e^{-i(\phi_{10}(\mathbf{r}, t) - \phi_{10}(\mathbf{r}', t))} \cdot e^{-i(n_0(\mathbf{r}) - n_0(\mathbf{r}')) \frac{\omega_0 d}{c}}. \quad (10.19)$$

Nous pouvons estimer que la variation d'indice induite se limite à une processus $\chi^{(3)}$, c'est à dire qu'il s'agit d'un effet Kerr. On peut alors faire l'approximation suivante (voir équation 1.5 dans la première partie 1) :

$$\Delta n(\mathbf{r}) \simeq n_2(\mathbf{r}) \cdot I_P(\mathbf{r}) \quad (10.20)$$

On va maintenant supposer que l'éclairage est incohérent, c'est-à-dire que les phases $\phi_{10}(\mathbf{r}, t)$ et $\phi_{10}(\mathbf{r}', t)$ des impulsions sondes en deux points différents sont décorréliées. Dans le cas où $\Delta\phi = \pi/2$, la variation d'intensité dans le plan image se réduit donc à :

$$\begin{aligned} \Delta I_I(\mathbf{R}, t) &= I_I(\mathbf{R}, t) - I_{I,sanspompe}(\mathbf{R}, t) \\ &= -2 \frac{\omega_0 d}{c} \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{16\pi} \int d\mathbf{r} |h(\mathbf{R} - \mathbf{r})|^2 \cdot \Delta n(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (10.21)$$

$$= -\frac{\omega_0 d}{c} \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{8\pi} \int d\mathbf{r} |h(\mathbf{R} - \mathbf{r})|^2 \cdot n_2(\mathbf{r}) I_P(\mathbf{r}) \quad (10.22)$$

Dans le cas où on a une illumination homogène avec la pompe $I_P(\mathbf{r}) = I_{P0}$, on mesure donc $n_2(\mathbf{r})$ avec une résolution donnée par la résolution de l'optique d'imagerie décrite par $|h(\mathbf{R} - \mathbf{r})|^2$.

Chapitre 11

Conclusions et perspectives

11.1 Bilan

Nous avons montré que notre montage expérimental permet de cartographier la cinétique de relaxation des excitations électroniques sur une zone spatiale d'une dizaine de micron avec une résolution spatiale d'environ 700 nanomètre. Nous pouvons avec notre système d'imagerie accéder à des informations spatiales sur l'échantillon et visualiser ses inhomogénéités. De plus, grâce à la résolution temporelle nous accédons à des informations sur la structure intrinsèque des états ainsi que sur les interactions avec l'environnement, les phonons ou encore les défauts *via* une technique pompe-sonde. Ces informations étant contenues dans la phase du faisceau sonde, notre système de détection interférométrique est tout à fait adapté pour les mesurer et cela avec une bonne sensibilité grâce à l'utilisation d'un compensateur de Babinet-Soleil et d'une caméra EMCCD.

11.2 Perspectives

Notre montage expérimental va être amélioré pour atteindre de meilleure résolution spatiale. Nous pouvons même espérer atteindre des dimensions sub-longueur d'onde. En effet, nous avons vu dans la première partie en 2.3.3 plusieurs techniques de microscopie permettant d'atteindre de telle résolution. Celle-ci se base sur l'idée clef que ce sont les objets étudiés eux-mêmes, *via* leurs niveaux électroniques et leurs non-linéarités optiques, qui peuvent permettre de descendre à des résolutions de l'ordre de la dizaine de nanomètre alors que la microscopie optique est limitée à des résolutions de l'ordre de la centaine de nanomètre du fait de la diffraction.

La microscopie à illumination structurée, par exemple, permet d'imager efficacement des nano-objets non fluorescent [24]. Cette microscopie est basée sur l'effet Moiré.

Cet effet peut être observé régulièrement dans la vie de tous les jours, comme le montre la photo 11.1. Dans notre cas l'effet Moiré est utilisé pour observer le battement entre les fréquences spatiales des détails nanométriques d'un échantillon et celles générées par la réponse non-linéaire de l'échantillon soumis à un éclairage modulé spatialement. Elle donne alors accès à des informations non accessible par des microscopes conventionnels ou confocaux. Nous avons détaillé cette technique en 2.3.3.



FIGURE 11.1 – Un exemple d'effet Moiré pris au détour d'un chemin à Strasbourg. Les deux portes ont un motif, des lignes, que l'on peut à peine discerner (les lignes sont très rapprochées). Lorsque les deux portes coulissent l'une sur l'autre, un nouveau motif apparaît.

Nous avons donc eu l'idée de coupler notre montage expérimental à la technique d'illumination structurée. Nous avons déjà travaillé sur la mise en forme spatiale de l'excitation qui a été réalisée grâce à un modulateur de phase *SLM* (*Spatial Light Modulator*) et un montage de type « 4f », les particularités du SLM ainsi que la méthode de mise en forme spatiale d'un faisceau ayant été présentées en annexe (voir B). En structurant le faisceau pompe, la variation d'indice induite par la pompe dans l'échantillon ne se fait plus de manière homogène mais suivant un profil de fréquence spatiale \mathbf{K}_p inférieure à la limite de diffraction $k_0 = 2\pi/\lambda$. À forte puissance d'excitation ce profil est modifié par les non-linéarités optiques de l'échantillon et générera alors des harmoniques (d'ordres notés N) de la fréquence spatiale d'excitation. Ces harmoniques sont alors plus grandes que \mathbf{K}_p et modifient l'indice sur des dimensions sub-longueur d'onde. Les battements de ces variations spatiales d'indices avec le motif d'illumination qui sont de fréquence spatiale $\mathbf{k} \pm N\mathbf{K}_p$ peuvent alors être mesurés par les faisceaux sondes grâce à notre système de détection interférométrique.

Pour s'en convaincre, reprenons l'équation 10.22 en prenant pour $I_P(\mathbf{r})$ une modulation périodique sur la pompe :

$$I_P(\mathbf{r}) = 2I_{P0} \cos^2(\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r} + \Phi_{P0}) \quad (11.1)$$

$$= I_{P0} (1 + \cos(2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r} + 2\Phi_{P0})) \quad (11.2)$$

$$= I_{P0} \left(1 + \frac{e^{i2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} e^{i2\Phi_{P0}}}{2} + \frac{e^{-i2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} e^{-i2\Phi_{P0}}}{2} \right) \quad (11.3)$$

Et la variation d'intensité dans le plan image induite par la pompe modulée spatialement s'écrit alors (pour $\Delta\phi = \pi/2$) :

$$\Delta I_I(\mathbf{R}, t) = -\frac{\omega_0 d}{c} \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{8\pi} I_{P0} \int d\mathbf{r} |h(\mathbf{R} - \mathbf{r})|^2 \cdot \left(1 + \frac{e^{i2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} e^{i2\Phi_{P0}}}{2} + \frac{e^{-i2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} e^{-i2\Phi_{P0}}}{2} \right) \cdot n_2(\mathbf{r}) \quad (11.4)$$

$$= -\frac{\omega_0 d}{c} \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{8\pi} I_{P0} \left(\int d\mathbf{r} |h(\mathbf{R} - \mathbf{r})|^2 \cdot n_2(\mathbf{r}) + \frac{e^{i2\Phi_{P0}}}{2} \int d\mathbf{r} |h(\mathbf{R} - \mathbf{r})|^2 \cdot e^{i2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} \cdot n_2(\mathbf{r}) + \frac{e^{-i2\Phi_{P0}}}{2} \int d\mathbf{r} |h(\mathbf{R} - \mathbf{r})|^2 \cdot e^{-i2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} \cdot n_2(\mathbf{r}) \right) \quad (11.5)$$

Les trois termes de cette expression peuvent être séparés en effectuant trois mesures successives avec des phases du motif d'illumination d'excitation différentes, par exemple trois valeurs de Φ_P décalées de $4\pi/3$. On notera les résultats, une fois déterminés à partir de ces trois mesures (calcul utilisant la matrice inverse des coefficients) :

$$\Delta I_I^0(\mathbf{R}, t) = -\frac{\omega_0 d}{c} \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{8\pi} I_{P0} \int d\mathbf{r} |h(\mathbf{R} - \mathbf{r})|^2 \cdot n_2(\mathbf{r}) \quad (11.6)$$

$$\Delta I_I^+(\mathbf{R}, t) = -\frac{\omega_0 d}{c} \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{8\pi} I_{P0} \int d\mathbf{r} |h(\mathbf{R} - \mathbf{r})|^2 \cdot e^{i2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} \cdot n_2(\mathbf{r}) \quad (11.7)$$

$$\Delta I_I^-(\mathbf{R}, t) = -\frac{\omega_0 d}{c} \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{8\pi} I_{P0} \int d\mathbf{r} |h(\mathbf{R} - \mathbf{r})|^2 \cdot e^{-i2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} \cdot n_2(\mathbf{r}) \quad (11.8)$$

Calculons ensuite leur transformée de Fourier, en posant :

$$\mathcal{H}(\mathbf{k}) = \frac{\int d\mathbf{r} |h(\mathbf{r})|^2 e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}}{\int d\mathbf{r} |h(\mathbf{r})|^2} \quad (11.9)$$

Les produits de convolution se transforment alors en produits simples :

$$\Delta I_I^0(\mathbf{k}, t) = -\frac{\omega_0 d}{c} \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{8\pi} I_{P0} \mathcal{H}(\mathbf{k}) . n_2(\mathbf{k}) \quad (11.10)$$

$$\Delta I_I^+(\mathbf{k}, t) = -\frac{\omega_0 d}{c} \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{8\pi} I_{P0} \mathcal{H}(\mathbf{k}) . n_2(\mathbf{k} - 2\mathbf{K}_P) \quad (11.11)$$

$$\Delta I_I^-(\mathbf{k}, t) = -\frac{\omega_0 d}{c} \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{8\pi} I_{P0} \mathcal{H}(\mathbf{k}) . n_2(\mathbf{k} + 2\mathbf{K}_P) \quad (11.12)$$

En ayant mesuré $\mathcal{H}(\mathbf{k})$, on peut donc déterminer $n_2(\mathbf{k} + 2\mathbf{K}_P)$ pour des valeurs du vecteur d'onde normalement interdites par la bande passante de $\mathcal{H}(\mathbf{k})$. Par transformée de Fourier inverse, on trouvera $n_2(\mathbf{r})$ avec une résolution meilleure qu'en utilisant une illumination uniforme par l'impulsion pompe.

Examinons maintenant le cas où le compensateur de Soleil-Babinet est réglé en teinte sombre (c'est à dire tel que $\Delta\phi = \pi$) :

$$I_I(\mathbf{R}, t) = \frac{|\mathcal{E}_0(t)|^2}{16\pi} \int d\mathbf{r} |h(\mathbf{R} - \mathbf{r})|^2 \cdot \frac{\omega_0^2 d^2}{c^2} (\Delta n(\mathbf{r}))^2 \quad (11.13)$$

et

$$\Delta n(\mathbf{r}) = I_{P0} \left(1 + \frac{e^{i2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} e^{i2\Phi_P}}{2} + \frac{e^{-i2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} e^{-i2\Phi_P}}{2} \right) . n_2(\mathbf{r}) \quad (11.14)$$

ainsi

$$\begin{aligned} I_I(\mathbf{R}, t) &\propto (\Delta n(\mathbf{r}))^2 & (11.15) \\ &= I_{P0}^2 . n_2^2(\mathbf{r}) \left(3 + e^{i2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} e^{i2\Phi_P} + e^{-i2\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} e^{-i2\Phi_P} + \frac{e^{i4\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} e^{i2\Phi_P}}{2} + \frac{e^{-i4\mathbf{K}_P \cdot \mathbf{r}} e^{-i2\Phi_P}}{2} \right) \end{aligned}$$

On se trouve dans une situation similaire au cas précédent, mais avec 3 fréquences de modulation 0, $2\mathbf{K}_P$ et $4\mathbf{K}_P$, ce qui permet d'augmenter la résolution spatiale. Le prix à payer est cependant que les premiers termes mesurables sont proportionnels au carré de I_{P0} et de $n_2^2(\mathbf{r})$ et sont donc beaucoup plus faibles.

Conclusion générale

Dans ce mémoire, nous nous sommes intéressés à l'influence de la forme spatiale des faisceaux d'excitation dans des expériences de spectroscopie résolue en temps qui, grâce au couplage avec les non-linéarités optiques de l'échantillon étudié, peut permettre d'améliorer la résolution spatiale de ces mesures, ainsi qu'au développement d'une expérience d'imagerie résolue en temps.

Nous avons tout d'abord étudié la réponse non-linéaire d'un échantillon de semi-conducteur soumis à une excitation modulée spatialement lors d'un premier travail expérimental. Ce travail consistait en une expérience de mélange à quatre ondes, avec des faisceaux de Laguerre-Gauss sur un puits quantique de CdTe/CdZnTe. Celui-ci a donné lieu à une étude théorique du développement de la polarisation du troisième ordre sur la base des modes de Laguerre-Gauss.

Les modes de Laguerre-Gauss sont des solutions de l'équation de propagation de Helmholtz en symétrie cylindrique (les modes d'Hermite-Gauss usuels sont solutions de cette équation en symétrie rectangulaire) dont le profil transverse présente une forme d'anneau. Les photons associés à de tels modes possèdent un moment orbital angulaire $L = l\hbar$ (avec l entier relatif appelé la charge du moment orbital angulaire) dont la donnée remplace celle des composantes de leur moment cinétique k (ou vecteur d'onde) des descriptions en ondes planes [52] [37] [58]. Lors d'une expérience de mélange à quatre ondes usuelle (décrite par des ondes planes et utilisant des faisceaux gaussiens), les vecteurs d'onde des deux signaux générés sont obtenus par combinaison linéaire de ceux des deux faisceaux incidents [45]. Avec des faisceaux de Laguerre-Gauss on s'attend à obtenir de la même manière le moment orbital angulaire des signaux générés en combinant ceux des faisceaux incidents. Ainsi, pour des faisceaux incidents de vecteurs d'onde \mathbf{k}_a et \mathbf{k}_b et dont le moment orbital angulaire est caractérisé par la charge, l_a et l_b , respectivement, nous nous attendons à observer dans la direction $2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$ un signal de moment $2l_a - l_b$ et dans la direction $2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$ un signal de charge $2l_b - l_a$.

Nous avons travaillé avec des faisceaux de charge $l_a = 2$ et $l_b = 1$, les résultats obtenus montrent que les profils transverses en intensité des signaux générés par mélange d'onde vérifient notre hypothèse : de part et d'autre des faisceaux incidents transmis

nous observons un faisceau plein et un faisceau de forme annulaire. Afin de déterminer exactement le moment orbital angulaire de ces signaux, nous avons utilisé une méthode interférométrique. L'interférence entre un mode gaussien de charge $l = 0$ et un mode de Laguerre-Gauss de charge $l \neq 0$ en géométrie non-colinéaire est caractérisée par des franges qui présentent des fourches, le nombre de fourches correspondant à la charge du moment orbital angulaire du faisceau de Laguerre-Gauss. Les mesures de moment orbital angulaire effectuées sur les signaux générés dans les directions $\mathbf{k}_m = 2\mathbf{k}_a - \mathbf{k}_b$ et $\mathbf{k}_p = 2\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a$ donnent $l_m = 3$ et $l_p = 0$. Notre expérience nous a permis de vérifier que ces signaux permettent de mesurer la dynamique de déphasage des excitations en comparant leur dynamique temporelle à celle des signaux obtenus avec des faisceaux gaussiens.

Ces résultats nous ont amené à effectuer en parallèle une étude théorique des modes de Laguerre-Gauss et de leur utilisation dans un processus de mélange à quatre ondes. En effet, les constantes de temps qui décrivent les dynamiques temporelles observées dans ces expériences sont introduites par les équations de Bloch optiques. Mais traditionnellement, les impulsions excitatrices sont supposées être des ondes planes et leur forme spatiale n'est jamais prise en compte. Nous avons donc développé la polarisation d'ordre 3, obtenue avec les équations de Bloch, sur la base des modes de Laguerre-Gauss. Ce développement nous a alors amené à calculer le produit de différents modes de Laguerre-Gauss. En se plaçant à $z = 0$, nous avons démontré qu'il existe de nouvelles conditions d'accord de phase et qu'il y a, en plus de la conservation du vecteur d'onde, conservation des moments angulaires des faisceaux. Ainsi dans l'approximation paraxiale, lorsque l'impulsion (a) précède l'impulsion (b), un signal de moment orbital $l = 2l_b - l_a$ est généré. Les calculs effectués montrent donc que si la charge du moment orbital angulaire est conservée, le faisceau généré n'est par contre pas un mode de Laguerre-Gauss pur en $z = 0$.

En nous basant sur ces résultats, aussi bien théoriques qu'expérimentaux, nous avons testé une nouvelle configuration : le mélange à quatre onde en géométrie colinéaire, configuration qui est difficile à mettre en place avec des faisceaux gaussiens pour lesquels le signal est la plupart du temps isolé *via* son vecteur d'onde qui définit sa direction de propagation. Or, l'intensité des modes de Laguerre-Gauss de valeur de $l \neq 0$ est nulle sur leur axe de propagation. Ainsi avec des faisceaux de Laguerre-Gauss de charge $l_a = 2$ et $l_b = 1$, un des signaux de mélange d'onde générés ($l_p = 2l_b - l_a = 0$) possède un moment orbital angulaire nul, c'est donc une tache pleine, isolable spatialement des autres. Les résultats obtenus sont concluants : nous avons réussi à détecter le signal de mélange à quatre ondes possédant un moment orbital angulaire de charge $l_p = 0$ et à mesurer le temps de cohérence des trions dans le puits quantique de CdTe/CdZnTe. Cette géométrie devrait permettre d'améliorer la résolution spatiale par l'utilisation

d'un objectif de microscope pour focaliser les faisceaux incidents sur l'échantillon. On obtient en effet une plus grande répartition angulaire des vecteurs d'onde et donc un spot d'excitation réduit. Cela rend possible une cartographie très fine de la surface de l'échantillon.

Cependant, cette méthode reste limitée par le critère de Rayleigh, d'où notre intérêt à développer une autre technique permettant de cartographier efficacement les cinétiques de relaxations des excitations des objets étudiés et d'observer les éventuelles inhomogénéités spatiales d'un échantillon.

Nous avons donc développé une expérience d'imagerie résolue en temps. Celle-ci consiste en un montage pompe-sonde comprenant deux sondes en polarisations croisées permettant une détection interférométrique. Les deux sondes diffèrent par leur polarisation et sont séparées temporellement d'environ $1ns$. Elles sont focalisées sur l'échantillon *via* un objectif de microscope. Après l'échantillon, par inversion des polarisations des deux sondes, celles-ci se retrouvent synchrones ; elles passent alors par un compensateur de Babinet-Soleil et sont projetées sur le même axe de polarisation afin d'interférer. La pompe, focalisée sur l'échantillon, est placée temporellement de sorte qu'elle balaie le retard temporel entre les deux sondes par le biais d'une ligne à retard.

Sans pompe, les deux sondes interfèrent de manière constructive et forment une teinte plate brillante (elles sont colinéaires en sortie du montage) qui peut être modifiée grâce au compensateur de Babinet-Soleil (ajout d'un déphasage sur l'une des deux sondes). Nous avons alors choisi un point de fonctionnement du Soleil-Babinet se situant entre le maximum et le minimum d'intensité du profil d'interférence entre les deux sondes afin d'avoir le plus de sensibilité et de dynamique possible lors de nos mesures.

Lorsque la pompe excite l'échantillon, et donc modifie son indice, la deuxième sonde s'en trouve déphasée et l'interférogramme des deux sondes modifié. Cette modification contient une information spatiale, chaque point de l'échantillon n'ayant pas la même réponse optique, notamment du fait de ses inhomogénéités.

Les premières mesures ont été effectuées sur une plaquette formée de monocristal de sulfure de cadmium. Elles ont montré que le montage présenté ici permet de mesurer le temps de déclin des excitations générées avec une résolution spatiale d'environ $700nm$ liée à la fonction de réponse du système d'imagerie, ne dépassant donc pas la « barrière » de diffraction.

Ce développement expérimental a été associé à une modélisation de notre montage expérimental. Nous avons montré qu'il mesurait effectivement les variations d'indice induites par la pompe. Nous avons aussi, au moyen de ce développement théorique, montré comment une excitation modulée spatialement permet d'améliorer considérablement la résolution spatiale des mesures par repliement de spectre associé à la

modulation spatiale de l'excitation. Ce développement est basé sur le principe de la microscopie à illumination structurée non-linéaire mise au point par Magnus Gustafsson dans les années 2000 [25].

Annexe A

Modes optiques et non-linéarité

La réponse non-linéaire implique le produit de champs électriques. On va donc chercher à calculer le produit de modes de propagation du champ, à commencer par les modes d'Hermite-Gauss et de Laguerre-Gauss qui apparaissent dans l'approximation paraxiale.

A.1 Modes gaussiens

A.1.1 Modes d'Hermite-Gauss

Un mode d'Hermite-Gauss s'écrit :

$$u_{m,n}^{HG}(x, y, z) = \frac{C_{nm}^{HG}}{w(z)} H_m \left(\frac{\sqrt{2}x}{w(z)} \right) H_n \left(\frac{\sqrt{2}y}{w(z)} \right) e^{-\frac{x^2+y^2}{w(z)^2}} \cdot e^{i\kappa \frac{x^2+y^2}{2R(z)}} \cdot e^{-i\psi_{m,n}(z)} \quad (\text{A.1})$$

où la phase de Gouy est donnée par :

$$\psi_{m,n}(z) = (n + m + 1) \arctan \left(\frac{z}{z_R} \right) \quad (\text{A.2})$$

et où la constante C_{nm}^{HG} est choisie pour normaliser $u_{m,n}^{HG}(x, y, z)$:

$$C_{nm}^{HG} = \sqrt{\frac{1}{2^n n!}} \left(\frac{2}{\pi} \right)^{1/4} \quad (\text{A.3})$$

On définit :

$$\mathcal{H}_{m,n}(x, y) = e^{-(x^2+y^2)} H_n \left(\sqrt{2}x \right) H_m \left(\sqrt{2}y \right) \quad (\text{A.4})$$

avec $n, m = 0, 1, \dots$, qui est la solution de l'équation de l'oscillateur harmonique à deux dimensions en coordonnées cartésiennes. $u_{m,n}^{HG}$ peut alors s'écrire :

$$u_{m,n}^{HG}(x, y, z) = \frac{C_{nm}^{HG}}{w(z)} \mathcal{H}_{m,n} \left(\frac{x}{w(z)}, \frac{y}{w(z)} \right) \cdot e^{i\kappa \frac{x^2+y^2}{2R(z)}} \cdot e^{-i\psi_{m,n}(z)} \quad (\text{A.5})$$

A.1.2 Modes de Laguerre-Gauss

Un mode de Laguerre-Gauss s'écrit :

$$u_{\ell p}^{LG}(r, \phi, z) = \frac{C_{\ell p}^{LG}}{w(z)} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w(z)} \right)^{|\ell|} e^{-\frac{r^2}{w^2(z)}} L_p^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{w^2(z)} \right) e^{i\kappa \frac{r^2}{2R(z)}} e^{i\ell\phi} e^{-i\psi_{p,\ell}(z)} \quad (\text{A.6})$$

où la constante de normalisation est :

$$C_{\ell p}^{LG} = \sqrt{2^{|\ell|+1} \frac{p!}{\pi (p + |\ell|)}} \quad (\text{A.7})$$

et où la phase de Gouy est donnée par :

$$\psi_{p,\ell}(z) = (2p + |\ell| + 1) \arctan \left(\frac{z}{z_R} \right) \quad (\text{A.8})$$

On définit :

$$\mathcal{L}_{p,\pm l}(x, y) = e^{-(x^2+y^2)} (x \pm iy)^l L_p^l(2x^2 + 2y^2) \quad (\text{A.9})$$

avec $n = 0, 1, \dots$ et $l = 0, 1, 2, \dots$, qui est la solution de l'équation de l'oscillateur harmonique à deux dimensions en coordonnées cylindriques. En considérant un nombre entier relatif ℓ tel que $|\ell| = l$, qui peut prendre des valeurs négatives, on peut aussi écrire :

$$\mathcal{L}_{p,\ell}(r, \phi) = e^{-r^2} r^{|\ell|} e^{i\ell\phi} L_p^{|\ell|}(2r^2) \quad (\text{A.10})$$

avec $n = 0, 1, \dots$ et $\ell = \dots - 2, -1, 0, 1, 2, \dots$

$u_{\ell p}^{LG}$ peut alors s'écrire :

$$u_{\ell p}^{LG}(r, \phi, z) = \frac{C_{\ell p}^{LG}}{w(z)} \sqrt{2^{|\ell|}} \mathcal{L}_{p,\ell} \left(\frac{r}{w(z)}, \phi \right) e^{i\kappa \frac{r^2}{2R(z)}} e^{-i\psi_{p,\ell}(z)} \quad (\text{A.11})$$

A.1.3 Modes généralisés d'Hermite-Laguerre-Gauss

$$\begin{aligned} \mathcal{G}_{m,n}(x, y|\alpha) &= \sum_{k=0}^{n+m} i^k \cos^{n-k} \alpha \sin^{m-k} \alpha P_k^{(n-k, m-k)}(-\cos 2\alpha) \mathcal{H}_{n+m-k,k}(x, y) \quad (\text{A.12}) \\ &= e^{-(x^2+y^2)^2} \\ &\quad \sum_{k=0}^{n+m} i^k \cos^{n-k} \alpha \sin^{m-k} \alpha P_k^{(n-k, m-k)}(-\cos 2\alpha) H_{n+m-k}(\sqrt{2}x) H_k(\sqrt{2}y) \end{aligned}$$

avec $n, m = 0, 1, \dots$ et où apparaissent les polynômes de Jacobi :

$$\begin{aligned} P_k^{(\mu, \nu)}(z) &= \frac{(-1)^k}{2^k k!} (1-z)^{-\mu} (1+z)^{-\nu} \frac{d^k}{dz^k} [(1-z)^{k+\mu} (1+z)^{k+\nu}] \quad (\text{A.13}) \\ &= \sum_{p=0}^k C_{k+\mu}^p C_{k+\nu}^{k-p} \left(\frac{z-1}{2}\right)^{k-p} \left(\frac{z+1}{2}\right)^p \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} P_k^{(n-k, m-k)}(z) &= \frac{(-1)^k}{2^k k!} \frac{1}{(1-z)^{n-k} (1+z)^{m-k}} \frac{d^k}{dz^k} [(1-z)^n (1+z)^m] \quad (\text{A.14}) \\ &= \sum_{p=0}^k C_n^p C_m^{k-p} \left(\frac{z-1}{2}\right)^{k-p} \left(\frac{z+1}{2}\right)^p \end{aligned}$$

Modes d'Hermite-Gauss comme cas particuliers des modes d'Hermite-Laguerre-Gauss Pour $\alpha = 0$, on a $\cos 2\alpha = \cos \alpha = 1$ et $\sin \alpha = 0$. Le facteur $\sin^{m-k} \alpha$ fait que le seul terme non-nul dans (A.13) est celui où $k = m$:

$$\mathcal{G}_{m,n}(x, y | \alpha = 0) = e^{-(x^2+y^2)^2} i^m P_k^{(n-m, 0)}(-1) H_n(\sqrt{2}x) H_m(\sqrt{2}y) \quad (\text{A.15})$$

$$\begin{aligned} P_k^{(n-m, 0)}(-1) &= \sum_{p=0}^m C_n^p C_m^{m-p} (-1)^{m-p} (0)^p \quad (\text{A.16}) \\ &= C_n^0 C_m^m (-1)^m \\ &= (-1)^m \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathcal{G}_{m,n}(x, y | 0) &= e^{-(x^2+y^2)^2} (-i)^m H_n(\sqrt{2}x) H_m(\sqrt{2}y) \quad (\text{A.17}) \\ &= (-i)^m \mathcal{H}_{m,n}(x, y) \end{aligned}$$

Modes de Laguerre-Gauss comme cas particuliers des modes d'Hermite-Laguerre-Gauss Pour $\alpha = \pi/4$, on a $\cos 2\alpha = 0$, $\cos \alpha = 1/\sqrt{2}$ et $\sin \alpha = 1/\sqrt{2}$, le facteur $\cos^{n-k} \alpha$ fait que le seul terme non-nul dans (A.13) est celui où $k = n$:

$$\begin{aligned} \mathcal{G}_{m,n}(x, y | \alpha = \pi/4) &= e^{-(x^2+y^2)^2} \sum_{k=0}^{n+m} i^n \sqrt{2}^{-m+n} P_k^{(0, m-n)}(0) H_m(\sqrt{2}x) H_n(\sqrt{2}y) \\ P_k^{(0, m-n)}(0) &= \sum_{p=0}^n C_n^p C_m^{m-p} \left(\frac{-1}{2}\right)^{n-p} \left(\frac{1}{2}\right)^p \quad (\text{A.18}) \\ &= \left(\frac{1}{2}\right)^n \sum_{p=0}^n C_n^p C_m^{m-p} (-1)^{n-p} \end{aligned}$$

$$\mathcal{G}_{m,n}(x, y|\pi/4) = e^{-(x^2+y^2)^2} \sum_{k=0}^{n+m} i^n \sqrt{2}^{-m+n} \left(\frac{1}{2}\right)^n \sum_{p=0}^n C_n^p C_m^{m-p} (-1)^{n-p} H_m(\sqrt{2}x) H_n(\sqrt{2}y) \quad (\text{A.19})$$

Un polynôme de Laguerre se décompose sur les polynômes d'Hermite :

$$e^{i\ell\phi} r^\ell L_m^\ell(2r^2) = \frac{(-1)^m}{2^{2m+\ell} m!} \sum_{r=0}^m \sum_{s=0}^{\ell} i^s C_m^r C_\ell^s H_{2r+\ell-s}(\sqrt{2}x) H_{2m-2r+s}(\sqrt{2}y)$$

On trouve donc *in fine* :

$$\mathcal{G}_{m,n}(x, y|\pi/4) = \begin{cases} (-1)^m 2^n m! \mathcal{L}_{m,n-m}(x, y) & (n \geq m) \\ (-1)^n 2^m n! \mathcal{L}_{n,m-n}(x, y) & (n \leq m) \end{cases} \quad (\text{A.20})$$

et donc :

$$\mathcal{G}_{m,n}(x, y|\pi/4) = \begin{cases} (-1)^m 2^n m! e^{-(x^2+y^2)} (x+iy)^{n-m} L_m^{n-m}(2x^2+2y^2) & (n \geq m) \\ (-1)^n 2^m n! e^{-(x^2+y^2)} (x+iy)^{m-n} L_n^{m-n}(2x^2+2y^2) & (n \leq m) \end{cases}$$

En coordonnées polaires :

$$\mathcal{G}_{m,n}(r, \phi|\pi/4) = \begin{cases} (-1)^m 2^n m! e^{-r^2} (r e^{i\phi})^{n-m} L_m^{n-m}(2r^2) & (n \geq m) \\ (-1)^n 2^m n! e^{-r^2} (r e^{i\phi})^{m-n} L_n^{m-n}(2r^2) & (n \leq m) \end{cases} \quad (\text{A.21})$$

A.2 Fonction génératrice des modes

A.2.1 Modes généralisés d'Hermite-Laguerre-Gauss

En définissant la fonction d'influence astigmatique :

$$\psi(\xi, \eta, \alpha) = (\xi^2 - \eta^2) \cos 2\alpha + 2\xi\eta \sin 2\alpha \quad (\text{A.22})$$

on a comme fonction génératrice :

$$G(x, y, \alpha, s, t) = \sum_{n,m=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}(x, y|\alpha) \frac{s^n t^m}{n! m!} \quad (\text{A.23})$$

$$= e^{-(x^2+y^2) - \psi(s, t, \alpha) + 2\sqrt{2}x(s \cos \alpha + t \sin \alpha) + 2\sqrt{2}iy(s \sin \alpha - t \cos \alpha)} \quad (\text{A.24})$$

$$= e^{-(x^2+y^2) - (s^2 - t^2) \cos 2\alpha - 2st \sin 2\alpha + 2\sqrt{2}x(s \cos \alpha + t \sin \alpha) + 2\sqrt{2}iy(s \sin \alpha - t \cos \alpha)} \quad (\text{A.25})$$

A.2.2 Modes d'Hermite-Gauss

C'est le cas où $\alpha = 0$. On a $\cos 2\alpha = \cos \alpha = 1$ et $\sin 2\alpha = \sin \alpha = 0$.

$$\psi(\xi, \eta, \alpha = 0) = (\xi^2 - \eta^2) \quad (\text{A.26})$$

Pour la fonction génératrice :

$$G(x, y, \alpha = 0, s, t) = \sum_{n,m=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}(x, y | \alpha = 0) \frac{s^n t^m}{n!m!} \quad (\text{A.27})$$

$$= e^{-(x^2+y^2)-(s^2-t^2)+2\sqrt{2}xs-2\sqrt{2}iyt} \quad (\text{A.28})$$

$$= e^{-x^2-s^2+2\sqrt{2}sx} e^{-y^2-(-it)^2+2\sqrt{2}(-it)y} \quad (\text{A.29})$$

A.2.3 Modes de Laguerre-Gauss

C'est le cas où $\alpha = \pi/4$. On a $\cos 2\alpha = 0$, $\cos \alpha = 1/\sqrt{2}$, $\sin 2\alpha = 1$ et $\sin \alpha = 1/\sqrt{2}$.

$$\psi(\xi, \eta, \alpha = \pi/4) = 2\xi\eta \quad (\text{A.30})$$

Pour la fonction génératrice :

$$G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t) = \sum_{n,m=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}(x, y | \alpha = \pi/4) \frac{s^n t^m}{n!m!} \quad (\text{A.31})$$

$$= e^{-(x^2+y^2)-2st+2x(s+t)+2iy(s-t)} \quad (\text{A.32})$$

$$= e^{-(x^2+y^2)-2st+2(x+iy)s+2(x-iy)t} \quad (\text{A.33})$$

A.3 Produits de modes gaussiens

A.3.1 Produits de polynômes d'Hermite

La fonction génératrice des polynômes d'Hermite est :

$$e^{2tz-t^2} = \sum_{n=0}^{+\infty} H_n(z) \frac{t^n}{n!} \quad (\text{A.34})$$

On a pour le produit de deux fonctions génératrices :

$$e^{2tz-t^2} \cdot e^{2sz-s^2} = e^{2(t+s)z-t^2-s^2} \quad (\text{A.35})$$

$$= e^{2(t+s)z-(t+s)^2+2ts} \quad (\text{A.36})$$

$$= \sum_{p=0}^{+\infty} H_p(z) \frac{(t+s)^p}{p!} e^{2ts} \quad (\text{A.37})$$

avec

$$e^{2ts} = 2^q \sum_{q=0}^{+\infty} \frac{t^q s^q}{q!} \quad (\text{A.38})$$

et le développement du binôme de Newton :

$$(t+s)^p = \sum_{k=0}^p C_p^k t^{p-k} s^k \quad (\text{A.39})$$

où le coefficient binomial est donné par :

$$\binom{p}{k} = C_p^k = \frac{p!}{(p-k)!k!} \quad (\text{A.40})$$

on a :

$$e^{2tz-t^2} \cdot e^{2sz-s^2} = \sum_{p=0}^{+\infty} \sum_{q=0}^{+\infty} \sum_{k=0}^p H_p(z) \frac{C_p^k t^{p-k} s^k}{p!} 2^q \frac{t^q s^q}{q!} \quad (\text{A.41})$$

$$= \sum_{p=0}^{+\infty} \sum_{q=0}^{+\infty} \sum_{k=0}^p H_p(z) \frac{2^q}{(p-k)!k!q!} t^{p-k+q} s^{q+k} \quad (\text{A.42})$$

et

$$e^{2tz-t^2} \cdot e^{2sz-s^2} = \sum_{n=0}^{+\infty} H_n(z) \frac{t^n}{n!} \sum_{m=0}^{+\infty} H_m(z) \frac{s^m}{m!} \quad (\text{A.43})$$

$$= \sum_{n=0}^{+\infty} \sum_{m=0}^{+\infty} H_n(z) H_m(z) \frac{t^n s^m}{n!m!} \quad (\text{A.44})$$

Les deux expressions sont valables pour tous t et pour tout s et on va donc identifier les coefficients des monômes. Au vu des sommes sur p , q et k , toutes les valeurs sont possibles pour les puissances respectives de t et s (on doit juste veiller à ce que les valeurs représentées par k ne dépassent pas celles de p). Pour le monôme $t^n s^m$, posons $m = q + k$. On a :

$$e^{2tz-t^2} \cdot e^{2sz-s^2} = \sum_{p=0}^{+\infty} \sum_{q=0}^{+\infty} \sum_{k=0}^p H_p(z) \frac{2^q}{(p-k)!k!q!} t^{p-k+q} s^{q+k} \quad (\text{A.45})$$

$$= \sum_{p=0}^{+\infty} \sum_{k=0}^p \sum_{m=k}^{+\infty} H_p(z) \frac{2^{m-k}}{(p-k)!k!(m-k)!} t^{p+m-2k} s^m \quad (\text{A.46})$$

La dernière somme impose $m \geq k$. On peut récrire l'expression :

$$e^{2tz-t^2} \cdot e^{2sz-s^2} = \sum_{p=0}^{+\infty} \sum_{m=0}^{+\infty} \sum_{k=0}^{\min(m,p)} H_p(z) \frac{2^{m-k}}{(p-k)!k!(m-k)!} t^{p+m-2k} s^m \quad (\text{A.47})$$

Pour un m donné, les autres termes qui donnent la même valeur sont ceux pour lesquels, les variations de p et $2k$ se compensent dans la puissance de t qui est $p + m - 2k$. On voit que la variation de $2k$ impose un incrément de 2 sur celle de p . La valeur minimale de p pour une puissance n de t déterminée, est donnée quand $n \geq m$ par $k = 0$: c'est $n - m$. Le cas inverse est identique car il correspond juste à la permutation de n et m et même temps que de t et s (on considèrera donc $n \geq m$ dans la suite). Sa valeur maximum est atteinte quand $k = m$; c'est $n - m + 2m = n + m$. En identifiant les termes des deux expressions (A.42) et (A.44), on obtient :

$$H_n(z)H_m(z)\frac{t^n s^m}{n!m!} = \sum_{k=0}^m H_{n-m+2k}(z)\frac{2^{m-k}}{(n-m+k)!k!(m-k)!}t^n s^m \quad (\text{A.48})$$

et donc :

$$H_n(z)H_m(z) = \sum_{k=0}^m H_{n-m+2k}(z)\frac{2^{m-k}n!m!}{(n-m+k)!k!(m-k)!} \quad (\text{A.49})$$

En symétrisant n et m :

$$H_n(z)H_m(z) = \sum_{k=0}^{\min(m,n)} H_{|n-m|+2k}(z)\frac{2^{\min(m,n)-k}n!m!}{(|n-m|+k)!k!(\min(m,n)-k)!} \quad (\text{A.50})$$

A.3.2 Produits de modes d'Hermite-Gauss de même *waist*

$$E_{m,n} \cdot E_{p,q} = \frac{1}{w(\zeta)^{1+\frac{m+n}{2}}} H_m\left(\frac{x}{w(\zeta)}\right) H_n\left(\frac{y}{w(\zeta)}\right) e^{i\kappa z - \frac{x^2+y^2}{w(\zeta)^2} - i\left(1+\frac{m+n}{2}\right)\arctan(\zeta)}$$

$$\frac{1}{w(\zeta)^{1+\frac{p+q}{2}}} H_p\left(\frac{x}{w(\zeta)}\right) H_q\left(\frac{y}{w(\zeta)}\right) e^{i\kappa z - \frac{x^2+y^2}{w(\zeta)^2} - i\left(1+\frac{p+q}{2}\right)\arctan(\zeta)} \quad (\text{A.51})$$

$$= \frac{1}{w(\zeta)^{2+\frac{m+n+p+q}{2}}} e^{i2\kappa z - 2\frac{x^2+y^2}{w(\zeta)^2} - i\left(2+\frac{m+n+p+q}{2}\right)\arctan(\zeta)} \quad (\text{A.52})$$

$$H_m\left(\frac{x}{w(\zeta)}\right) H_p\left(\frac{x}{w(\zeta)}\right) H_n\left(\frac{y}{w(\zeta)}\right) H_q\left(\frac{y}{w(\zeta)}\right)$$

$$= \frac{1}{w(\zeta)^{2+\frac{m+n+p+q}{2}}} e^{i2\kappa z - \frac{2r^2}{w(\zeta)^2} - i\left(2+\frac{m+n+p+q}{2}\right)\arctan(\zeta)} \quad (\text{A.53})$$

$$\sum_{k=0}^{\min(m,p)} H_{|p-m|+2k}\left(\frac{x}{w(\zeta)}\right) \frac{2^{\min(m,p)-k}p!m!}{(|p-m|+k)!k!(\min(m,p)-k)!}$$

$$\sum_{j=0}^{\min(n,q)} H_{|q-n|+2j}\left(\frac{y}{w(\zeta)}\right) \frac{2^{\min(n,q)-j}q!n!}{(|q-n|+j)!j!(\min(n,q)-j)!} \quad (\text{A.54})$$

A.3.3 Produit des polynômes de Laguerre

Le produit de deux fonctions génératrices de modes de Laguerre-Gauss s'écrit :

$$G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t).G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \\ = \sum_{n,m=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}(x, y|\alpha = \pi/4) \frac{s^n t^m}{n!m!} \cdot \sum_{N,M=0}^{\infty} \mathcal{G}_{M,N}(x, y|\alpha = \pi/4) \frac{S^N T^M}{N!M!} \quad (\text{A.55})$$

$$= \sum_{n,m=0}^{\infty} \sum_{N,M=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}(x, y|\alpha = \pi/4) \cdot \mathcal{G}_{M,N}(x, y|\alpha = \pi/4) \frac{s^n S^N t^m T^M}{n!m!N!M!} \quad (\text{A.56})$$

D'un autre côté :

$$G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t).G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \\ = e^{-(x^2+y^2)-2st+2(x+iy)s+2(x-iy)t} \cdot e^{-(x^2+y^2)-2ST+2(x+iy)S+2(x-iy)T} \quad (\text{A.57})$$

$$= e^{-2(x^2+y^2)-2(s+S)(t+T)+2(x+iy)(s+S)+2(x-iy)(t+T)} \cdot e^{+2sT+2St} \quad (\text{A.58})$$

$$= e^{-(x^2+y^2)} \cdot G(x, y, \alpha = \pi/4, s + S, t + T) \cdot e^{2sT+2St} \quad (\text{A.59})$$

$$= e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{P,Q=0}^{\infty} \mathcal{G}_{P,Q}(x, y|\alpha = \pi/4) \frac{(s + S)^Q (t + T)^P}{Q!P!} \cdot \sum_{p,q=0}^{\infty} \frac{(2sT)^q (2St)^p}{q!p!} \quad (\text{A.60})$$

on développe les binômes :

$$G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t).G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) = e^{-(x^2+y^2)}. \quad (\text{A.61})$$

$$\sum_{P,Q=0}^{\infty} \mathcal{G}_{P,Q}(x, y|\alpha = \pi/4) \sum_{j=0}^Q \sum_{k=0}^P \frac{C_Q^j C_P^k s^{Q-j} S^j t^{P-k} T^k}{Q!P!} \cdot \sum_{p,q=0}^{\infty} \frac{(2sT)^q (2St)^p}{q!p!} = e^{-(x^2+y^2)}. \quad (\text{A.62})$$

$$\sum_{p,q=0}^{\infty} \sum_{P,Q=0}^{\infty} \sum_{j=0}^Q \sum_{k=0}^P 2^q 2^p \mathcal{G}_{P,Q}(x, y|\alpha = \pi/4) \frac{1}{j!(Q-j)!k!(P-k)!q!p!} \cdot s^{Q-j+q} S^{j+p} t^{P-k+p} T^{k+q} = e^{-(x^2+y^2)}. \quad (\text{A.63})$$

$$\sum_P \sum_{Q=0}^{\infty} \left(\sum_{N=0}^Q \sum_{j=0}^N + \sum_{N=Q+1}^{\infty} \sum_{j=0}^Q \right) \left(\sum_{M=0}^P \sum_{k=0}^M + \sum_{M=P+1}^{\infty} \sum_{k=0}^P \right) 2^{M+N-k-j} \mathcal{G}_{P,Q}(x, y|\alpha = \pi/4) \frac{1}{j!(Q-j)!(N-j)!k!(P-k)!(M-k)!} \cdot s^{Q+M-k-j} S^N t^{P+N-k-j} T^M = e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} S^N T^M. \quad (\text{A.64})$$

$$\sum_{Q=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\min(N,Q)} \sum_{P=0}^{\infty} \sum_{k=0}^{\min(M,P)} 2^{M+N} \cdot 2^{-k-j} \mathcal{G}_{P,Q}(x, y|\alpha = \pi/4) \frac{1}{j!(Q-j)!(N-j)!k!(P-k)!(M-k)!} \cdot s^{Q+M-k-j} t^{P+N-k-j}$$

On remplace la somme sur j et k par une somme sur j et $\mu = j + k$:

$$G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t).G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) = e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} S^N T^M. \quad (\text{A.65})$$

$$\sum_{Q=0}^{\infty} \sum_{P=0}^{\infty} \sum_{\mu=0}^{\min(M,P)+\min(N,Q)} \sum_{j=\max(0,\mu-\min(M,P))}^{\min(\min(N,Q),\mu)} 2^{M+N} \cdot 2^{-\mu} \mathcal{G}_{P,Q}(x, y|\alpha = \pi/4) \cdot s^{Q+M-\mu} t^{P+N-\mu} \frac{1}{j!(Q-j)!(N-j)!(\mu-j)!(P-\mu+j)!(M-\mu+j)!}$$

On remplace la somme sur P et μ par une somme sur $m = P + N - \mu$ et μ :

$$G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t).G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) = e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} S^N T^M \cdot 2^{M+N}. \quad (\text{A.66})$$

$$\sum_{Q=0}^{\infty} \sum_{m=N-\min(N,Q)}^{\infty} \sum_{\mu=\max(0, N-m)}^{M+\min(N,Q)} 2^{-\mu} \mathcal{G}_{m-N+\mu, Q}(x, y | \alpha = \pi/4) \cdot s^{Q+M-\mu} t^m \sum_{j=\max(0, \mu-\min(M, m-N+\mu))}^{\min(N, Q, \mu)} \frac{1}{j!(Q-j)!(N-j)!(\mu-j)!(m-N+j)!(M-\mu+j)!}$$

$$= e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} S^N T^M \cdot 2^{M+N}. \quad (\text{A.67})$$

$$\sum_{m=0}^{\infty} \sum_{Q=N-\min(N, m)}^{\infty} \sum_{\mu=\max(0, N-m)}^{M+\min(N, Q)} 2^{-\mu} \mathcal{G}_{m-N+\mu, Q}(x, y | \alpha = \pi/4) \cdot s^{Q+M-\mu} t^m \sum_{j=\max(0, \mu-\min(M, m-N+\mu))}^{\min(N, Q, \mu)} \frac{1}{j!(Q-j)!(N-j)!(\mu-j)!(m-N+j)!(M-\mu+j)!}$$

On remplace la somme sur Q et μ par une somme sur $n = Q + M - \mu$ et μ :

$$G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t).G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) = e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} S^N T^M \cdot 2^{M+N}. \quad (\text{A.68})$$

$$\sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{\mu=\max(0, N-m)+\max(0, M-n)}^{M+N} 2^{-\mu} \mathcal{G}_{m-N+\mu, n-M+\mu}(x, y | \alpha = \pi/4) \cdot s^n t^m \sum_{j=\max(0, \mu-\min(M, m-N+\mu))}^{\min(N, n-M+\mu, \mu)} \frac{1}{j!(n-M+\mu-j)!(N-j)!(\mu-j)!(m-N+j)!(M-\mu+j)!}$$

$$= e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{s^n t^m S^N T^M}{n!m!N!M!} \sum_{\mu=\max(0, N-m)+\max(0, M-n)}^{M+N} 2^{M+N-\mu} \mathcal{G}_{m-N+\mu, n-M+\mu}(x, y | \alpha = \pi/4) \sum_{j=\max(0, \min(\mu-M, N-m))}^{\min(N, \mu, \mu-M+n)} \frac{n!m!N!M!}{j!(n-M+\mu-j)!(N-j)!(\mu-j)!(m-N+j)!(M-\mu+j)!}$$

$$(\text{A.69})$$

On remplace la somme sur μ par une somme sur $h = \mu + m - N$:

$$\begin{aligned}
& G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t).G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \\
= & e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{s^n t^m S^N T^M}{n!m!N!M!} \\
& \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} 2^{M+m-h} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(x, y | \alpha = \pi/4) \\
& \sum_{j=\max(0, \min(h-m+N-M, N-m))}^{\min(N, h-m+N, h+n-m+N-M)} \frac{n!m!N!M!}{j!(h-j+n-m+N-M)!(N-j)!(m-N+j)!(h-j-m+N)!(M-h+j+m-N)!}
\end{aligned} \tag{A.70}$$

On remplace la somme sur j par une somme sur $k = j + m - N$:

$$\begin{aligned}
& G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t).G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \\
= & e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{s^n t^m S^N T^M}{n!m!N!M!} \\
& \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} 2^{M+m-h} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(x, y | \alpha = \pi/4) m!M! \\
& \sum_{k=\max(m-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m, h, h+n-M)} \frac{N!}{(N-m+k)!(m-k)!} \frac{n!}{(n-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{1}{(h-k)!k!}
\end{aligned} \tag{A.71}$$

En comparant avec (A.56), on trouve que

$$\begin{aligned}
& \sum_{n, m=0}^{\infty} \sum_{N, M=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m, n}(x, y | \alpha = \pi/4) \cdot \mathcal{G}_{M, N}(x, y | \alpha = \pi/4) \frac{s^n S^N t^m T^M}{n!m!N!M!} \\
= & e^{-(x^2+y^2)} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{s^n t^m S^N T^M}{n!m!N!M!} \\
& \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} 2^{M+m-h} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(x, y | \alpha = \pi/4) m!M! \\
& \sum_{k=\max(m-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m, h, h+n-M)} \frac{N!}{(N-m+k)!(m-k)!} \frac{n!}{(n-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{1}{(h-k)!k!}
\end{aligned} \tag{A.72}$$

pour tout s, t, S et T . Donc :

$$\begin{aligned}
& \mathcal{G}_{m,n}(x, y|\alpha = \pi/4) \cdot \mathcal{G}_{M,N}(x, y|\alpha = \pi/4) \\
= & e^{-(x^2+y^2)} \tag{A.73} \\
& \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} 2^{M+m-h} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(x, y|\alpha = \pi/4) m! M! \\
& \sum_{k=\max(m-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m, h, h+n-M)} \frac{N!}{(N-m+k)!(m-k)!} \frac{n!}{(n-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{1}{(h-k)!k!}
\end{aligned}$$

En considérant, sans perte de généralité, les cas $n \geq m$ et $N \geq M$ et en utilisant (A.21) :

$$\mathcal{G}_{m,n}(r, \phi|\pi/4) = (-1)^m 2^n m! e^{-r^2} (re^{i\phi})^{n-m} L_m^{n-m} (2r^2) \tag{A.74}$$

on trouve pour le produit des modes :

$$\begin{aligned}
& \mathcal{G}_{m,n}(r, \phi|\alpha = \pi/4) \cdot \mathcal{G}_{M,N}(r, \phi|\alpha = \pi/4) \\
= & (-1)^m 2^n m! e^{-r^2} (re^{i\phi})^{n-m} L_m^{n-m} (2r^2) \\
& (-1)^M 2^N M! e^{-r^2} (re^{i\phi})^{N-M} L_M^{N-M} (2r^2) \tag{A.75}
\end{aligned}$$

$$= (-1)^{m+M} 2^{n+N} m! M! e^{-2r^2} (re^{i\phi})^{n-m+N-M} L_m^{n-m} (2r^2) L_M^{N-M} (2r^2) \tag{A.76}$$

D'un autre côté, avec (A.73) :

$$\begin{aligned}
& \mathcal{G}_{m,n}(r, \phi|\alpha = \pi/4) \cdot \mathcal{G}_{M,N}(r, \phi|\alpha = \pi/4) \\
= & e^{-r^2} \tag{A.77} \\
& \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(r, \phi|\alpha = \pi/4) \cdot 2^{h+m+M} m! M! \\
& \sum_{k=\max(m-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m, h, h+n-M)} \frac{N!}{(N-m+k)!(m-k)!} \frac{n!}{(n-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{1}{(h-k)!k!} \\
= & 2^{n+N} m! M! e^{-2r^2} (re^{i\phi})^{n-m+N-M} \tag{A.78} \\
& \sum_{h=\max(0, m-N)+\max(0, M-n)}^{m+M} (-1)^h L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\
& \sum_{k=\max(m-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m, h, h+n-M)} \frac{N!}{(N-m+k)!(m-k)!} \frac{n!}{(n-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{h!}{(h-k)!k!}
\end{aligned}$$

On en déduit l'identité :

$$\begin{aligned}
 & L_m^{n-m} (2r^2) L_M^{N-M} (2r^2) & (A.79) \\
 = & \sum_{h=\max(0,m-N)+\max(0,M-n)}^{m+M} (-1)^{h-m-M} L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\
 & \sum_{k=\max(m-N,\min(h-M,0))}^{\min(m,h,h+n-M)} \frac{N!}{(N-m+k)!(m-k)!} \frac{n!}{(n-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{h!}{(h-k)!k!}
 \end{aligned}$$

qu'on peut aussi écrire :

$$\begin{aligned}
 & L_m^{n-m} (2r^2) L_M^{N-M} (2r^2) & (A.80) \\
 = & \sum_{h=\max(0,m-N)+\max(0,M-n)}^{m+M} (-1)^{h-m-M} L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\
 & \sum_{k=\max(m-N,\min(h-M,0))}^{\min(m,h,h+n-M)} \binom{N}{m-k} \binom{n}{M-h+k} \binom{h}{k}
 \end{aligned}$$

Avec les règles sur les coefficients binomiaux, les bornes des sommes se simplifient :

$$\begin{aligned}
 & L_m^{n-m} (2r^2) L_M^{N-M} (2r^2) & (A.81) \\
 = & \sum_{h=0}^{m+M} (-1)^{h-m-M} L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\
 & \sum_{k=0}^h \binom{N}{m-k} \binom{n}{M-h+k} \binom{h}{k}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & L_m^l (2r^2) L_M^L (2r^2) & (A.82) \\
 = & \sum_{h=0}^{m+M} (-1)^{h-m-M} L_h^{l+L} (2r^2) \\
 & \sum_{k=0}^h \binom{L+M}{m-k} \binom{m+l}{M-h+k} \binom{h}{k}
 \end{aligned}$$

Cette relation est générale, à ceci près que, comme $2r^2 \geq 0$, on a prouvé qu'elle est valable pour tout argument positif.

A.3.4 Produits de polynômes de Laguerre-Gauss pour des *waists* différents

On reprend la fonction génératrice de modes de Laguerre-Gauss :

$$G(x, y, \alpha = \pi/4, s, t) = \sum_{n,m=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}(x, y | \alpha = \pi/4) \frac{s^n t^m}{n!m!} \quad (A.83)$$

$$= e^{-(x^2+y^2)-2st+2(x+iy)s+2(x-iy)t} \quad (A.84)$$

en effectuant les changements de variable (avec $w > 0$) :

$$\begin{aligned} x &\rightarrow \frac{x}{w} & s &\rightarrow \frac{s}{w} \\ y &\rightarrow \frac{y}{w} & t &\rightarrow \frac{t}{w} \end{aligned} \quad (\text{A.85})$$

On obtient :

$$G\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w}, \alpha = \pi/4, \frac{s}{w}, \frac{t}{w}\right) = \sum_{n,m=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w} \mid \alpha = \pi/4\right) \frac{s^n t^m}{n!m!} \frac{1}{w^{n+m}} \quad (\text{A.86})$$

$$= e^{-\frac{(x^2+y^2)-2st+2(x+iy)s+2(x-iy)t}{w^2}} \quad (\text{A.87})$$

On va considérer que w est le rapport des *waists* des deux faisceaux. La formule (A.56) devient :

$$\begin{aligned} &G\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w}, \alpha = \pi/4, \frac{s}{w}, \frac{t}{w}\right) \cdot G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \quad (\text{A.88}) \\ &= \sum_{n,m=0}^{\infty} \sum_{N,M=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m,n}\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w} \mid \alpha = \pi/4\right) \cdot \mathcal{G}_{M,N}(x, y \mid \alpha = \pi/4) \frac{s^n S^N t^m T^M}{n!m!N!M!} \frac{1}{w^{n+m}} \end{aligned}$$

D'un autre côté :

$$\begin{aligned} &G\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w}, \alpha = \pi/4, \frac{s}{w}, \frac{t}{w}\right) \cdot G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \\ &= e^{-\frac{(x^2+y^2)-2st+2(x+iy)s+2(x-iy)t}{w^2}} \cdot e^{-(x^2+y^2)-2ST+2(x+iy)S+2(x-iy)T} \quad (\text{A.89}) \end{aligned}$$

$$= e^{-(x^2+y^2)\left(\frac{1}{w^2}+1\right)-2\left(\frac{st}{w^2}+ST\right)+2(x+iy)\left(\frac{s}{w^2}+S\right)+2(x-iy)\left(\frac{t}{w^2}+T\right)} \quad (\text{A.90})$$

$$\begin{aligned} &= e^{-(x^2+y^2)\frac{1}{w^2}-2\left(\frac{st}{w^2}+ST\right)+2\left(\frac{st}{w^4}+\frac{sT}{w^2}+\frac{St}{w^2}+ST\right)} \\ &e^{-(x^2+y^2)} e^{-2\left(\frac{s}{w^2}+S\right)\left(\frac{t}{w^2}+T\right)+2(x+iy)\left(\frac{s}{w^2}+S\right)+2(x-iy)\left(\frac{t}{w^2}+T\right)} \quad (\text{A.91}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} &= e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \cdot G(x, y, \alpha = \pi/4, \frac{s}{w^2} + S, \frac{t}{w^2} + T). \\ &e^{-2st\frac{w^2-1}{w^4}} e^{2\frac{sT+St}{w^2}} \quad (\text{A.92}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} &= e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \cdot \sum_{P,Q=0}^{\infty} \mathcal{G}_{P,Q}(x, y \mid \alpha = \pi/4) \frac{\left(\frac{s}{w^2} + S\right)^Q \left(\frac{t}{w^2} + T\right)^P}{Q!P!}. \\ &\sum_{p,q=0}^{\infty} \frac{(2sT)^q (2St)^p}{q!p!} \frac{1}{w^{2(p+q)}} \sum_{J=0}^{\infty} \frac{(2st)^J}{J!} \left(\frac{1-w^2}{w^4}\right)^J \quad (\text{A.93}) \end{aligned}$$

On va comparer ces deux expressions. Les premières étapes sont les mêmes que ci-dessus.

On commence par développer les binômes :

$$G\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w}, \alpha = \pi/4, \frac{s}{w}, \frac{t}{w}\right) \cdot G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T)$$

$$= e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \cdot \sum_{P,Q=0}^{\infty} \mathcal{G}_{P,Q}(x, y | \alpha = \pi/4) \sum_{j=0}^Q \sum_{k=0}^P \frac{C_Q^j C_P^k s^{Q-j} S^j t^{P-k} T^k}{Q!P!} \frac{1}{w^{2(Q-j+P-k)}}. \quad (\text{A.94})$$

$$\sum_{p,q=0}^{\infty} \frac{(2sT)^q (2St)^p}{q!p!} \frac{1}{w^{2(p+q)}} \sum_{J=0}^{\infty} \frac{(2st)^J}{J!} \left(\frac{1-w^2}{w^4}\right)^J$$

$$= e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \sum_{p,q=0}^{\infty} \sum_{P,Q=0}^{\infty} \sum_{j=0}^Q \sum_{k=0}^P \sum_{J=0}^{\infty} \quad (\text{A.95})$$

$$2^{p+q+J} \frac{1}{w^{2(Q-j+P-k+p+q)}} \left(\frac{1-w^2}{w^4}\right)^J \mathcal{G}_{P,Q}(x, y | \alpha = \pi/4).$$

$$\frac{1}{j!(Q-j)!k!(P-k)!q!p!J!} s^{Q-j+q+J} S^{j+p} t^{P-k+p+J} T^{k+q}$$

$$= e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} S^N T^M \cdot \sum_{J=0}^{\infty} \quad (\text{A.96})$$

$$\sum_{Q=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\min(N,Q)} \sum_{P=0}^{\infty} \sum_{k=0}^{\min(M,P)} 2^{N-j+M-k+J} \frac{1}{w^{2(Q+P+N+M-2j-2k)}} \left(\frac{1-w^2}{w^4}\right)^J$$

$$\mathcal{G}_{P,Q}(x, y | \alpha = \pi/4) \frac{1}{j!(Q-j)!(N-j)!k!(P-k)!(M-k)!J!} s^{Q+M-k-j+J} t^{P+N-k-j+J}$$

$$= e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} S^N T^M. \quad (\text{A.97})$$

$$\sum_{Q=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\min(N,Q)} \sum_{P=0}^{\infty} \sum_{k=0}^{\min(M,P)} 2^{N+M-j-k}$$

$$\mathcal{G}_{P,Q}(x, y | \alpha = \pi/4) \frac{1}{j!(Q-j)!(N-j)!k!(P-k)!(M-k)!} s^{Q+M-k-j} t^{P+N-k-j}$$

$$\frac{1}{w^{2(Q+P+N+M-2j-2k)}} \sum_{J=0}^{\infty} \frac{2^J s^J t^J}{J!} \left(\frac{1-w^2}{w^4}\right)^J$$

En utilisant les calculs qui suivent la formule (A.64) :

$$\begin{aligned}
& G\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w}, \alpha = \pi/4, \frac{s}{w}, \frac{t}{w}\right) \cdot G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \\
= & e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} \sum_{m'=0}^{\infty} \sum_{n'=0}^{\infty} s^{n'} t^{m'} S^N T^M \\
& \sum_{h=\max(0, m'-N)+\max(0, M-n')}^{m'+M} 2^{M+m'-h} \mathcal{G}_{h, h+n'-m'+N-M}(x, y | \alpha = \pi/4) \\
& \sum_{k=\max(m'-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m', h, h+n'-M)} \\
& \frac{1}{(N-m'+k)!(m'-k)!} \frac{1}{(n'-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{1}{(h-k)!k!} \\
& \frac{1}{w^{2(n'+m')}} \sum_{J=0}^{\infty} \frac{2^J s^J t^J}{J!} \left(\frac{1-w^2}{w^4}\right)^J
\end{aligned} \tag{A.98}$$

On passe d'une somme sur n' et J à une somme sur $n = n' + J$ et J :

$$\begin{aligned}
& G\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w}, \alpha = \pi/4, \frac{s}{w}, \frac{t}{w}\right) \cdot G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \\
= & e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} \sum_{m'=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{J=0}^n s^{n'} t^{m'} S^N T^M \\
& \sum_{h=\max(0, m'-N)+\max(0, M-n+J)}^{m'+M} 2^{M+m'-h} \mathcal{G}_{h, h+n-J-m'+N-M}(x, y | \alpha = \pi/4) \\
& \sum_{k=\max(m'-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m', h, h+n-J-M)} \\
& \frac{1}{(N-m'+k)!(m'-k)!} \frac{1}{(n-J-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{1}{(h-k)!k!} \\
& \frac{1}{w^{2(n-J+m')}} \frac{2^J t^J}{J!} \left(\frac{1-w^2}{w^4}\right)^J
\end{aligned} \tag{A.99}$$

On passe d'une somme sur m' et J à une somme sur $m = m' + J$ et J :

$$\begin{aligned}
 & G\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w}, \alpha = \pi/4, \frac{s}{w}, \frac{t}{w}\right) \cdot G(x, y, \alpha = \pi/4, S, T) \\
 = & e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{J=0}^m s^n t^m S^N T^M
 \end{aligned} \tag{A.100}$$

$$\begin{aligned}
 & \sum_{h=\max(0, m-J-N)+\max(0, M-n+J)}^{m-J+M} 2^{M+m-J-h} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(x, y | \alpha = \pi/4) \\
 & \sum_{k=\max(m-J-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m-J, h, h+n-J-M)} \\
 & \frac{1}{(N-m+J+k)!(m-J-k)!} \frac{1}{(n-J-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{1}{(h-k)!k!} \\
 & \frac{1}{w^{2(n+m-2J)}} \frac{2^J}{J!} \left(\frac{1-w^2}{w^4}\right)^J
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 = & e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{J=0}^m s^n t^m S^N T^M
 \end{aligned} \tag{A.101}$$

$$\begin{aligned}
 & \sum_{h=\max(0, m-J-N)+\max(0, M-n+J)}^{m-J+M} 2^{M+m-h} \frac{(1-w^2)^J}{w^{2(n+m)}} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(x, y | \alpha = \pi/4) \\
 & \sum_{k=\max(m-J-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m-J, h, h+n-J-M)} \\
 & \frac{1}{(N-m+J+k)!(m-J-k)!(n-J-M+h-k)!(M-h+k)!(h-k)!k!J!}
 \end{aligned}$$

En comparant avec (A.88), on trouve une égalité entre les deux expressions :

$$\begin{aligned}
 & \sum_{n, m=0}^{\infty} \sum_{N, M=0}^{\infty} \mathcal{G}_{m, n}\left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w} | \alpha = \pi/4\right) \cdot \mathcal{G}_{M, N}(x, y | \alpha = \pi/4) \frac{s^n S^N t^m T^M}{n!m!N!M!} \frac{1}{w^{n+m}} \\
 = & e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \cdot \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{M=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{J=0}^m \frac{s^n t^m S^N T^M}{n!m!N!M!} \\
 & \sum_{h=\max(0, m-J-N)+\max(0, M-n+J)}^{m-J+M} 2^{M+m-h} \frac{(1-w^2)^J}{w^{2(n+m)}} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(x, y | \alpha = \pi/4) \\
 & \sum_{k=\max(m-J-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m-J, h, h+n-J-M)} \\
 & \frac{n!m!N!M!}{(N-m+J+k)!(m-J-k)!(n-J-M+h-k)!(M-h+k)!(h-k)!k!J!}
 \end{aligned} \tag{A.102}$$

pour tout s, t, S et T . Donc :

$$\begin{aligned}
& \mathcal{G}_{m,n} \left(\frac{x}{w}, \frac{y}{w} \middle| \alpha = \pi/4 \right) \cdot \mathcal{G}_{M,N} (x, y \middle| \alpha = \pi/4) \\
= & e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2}} \cdot \sum_{J=0}^m \sum_{h=\max(0, m-J-N)+\max(0, M-n+J)}^{m-J+M} \sum_{k=\max(m-J-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m-J, h, h+n-J-M)} 2^{M+m-h} \frac{(1-w^2)^J}{w^{(n+m)}} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M} (x, y \middle| \alpha = \pi/4) \\
& \frac{n!m!N!M!}{(N-m+J+k)!(m-J-k)!(n-J-M+h-k)!(M-h+k)!(h-k)!k!J!}
\end{aligned} \tag{A.103}$$

En considérant, sans perte de généralité, les cas $n \geq m$ et $N \geq M$ et en utilisant (A.21) :

$$\mathcal{G}_{m,n} \left(\frac{r}{w}, \phi \middle| \pi/4 \right) = (-1)^m 2^n m! e^{-\frac{r^2}{w^2}} \left(\frac{r}{w} e^{i\phi} \right)^{n-m} L_m^{n-m} \left(\frac{2r^2}{w^2} \right) \tag{A.104}$$

on trouve pour le produit des modes :

$$\begin{aligned}
& \mathcal{G}_{m,n} \left(\frac{r}{w}, \phi \middle| \alpha = \pi/4 \right) \cdot \mathcal{G}_{M,N} (r, \phi \middle| \alpha = \pi/4) \\
= & (-1)^m 2^n m! e^{-\frac{r^2}{w^2}} \left(\frac{r}{w} e^{i\phi} \right)^{n-m} L_m^{n-m} \left(\frac{2r^2}{w^2} \right) \\
& (-1)^M 2^N M! e^{-r^2} (r e^{i\phi})^{N-M} L_M^{N-M} (2r^2)
\end{aligned} \tag{A.105}$$

$$\begin{aligned}
= & (-1)^{m+M} 2^{n+N} m!M! e^{-r^2 \frac{w^2+1}{w^2}} \frac{(r e^{i\phi})^{n-m+N-M}}{w^{n-m}} \\
& L_m^{n-m} \left(\frac{2r^2}{w^2} \right) L_M^{N-M} (2r^2)
\end{aligned} \tag{A.106}$$

D'un autre côté, avec (A.103) :

$$\begin{aligned} & \mathcal{G}_{m,n} \left(\frac{r}{w}, \phi | \alpha = \pi/4 \right) \cdot \mathcal{G}_{M,N}(r, \phi, y | \alpha = \pi/4) \\ = & e^{-\frac{r^2}{w^2}} \cdot \sum_{J=0}^m \end{aligned} \quad (\text{A.107})$$

$$\begin{aligned} & \sum_{h=\max(0, m-J-N)+\max(0, M-n+J)}^{m-J+M} 2^{M+m-h} \frac{(1-w^2)^J}{w^{(n+m)}} \mathcal{G}_{h, h+n-m+N-M}(r, \phi | \alpha = \pi/4) \\ & \sum_{k=\max(m-J-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m-J, h, h+n-J-M)} \\ & \frac{n!m!N!M!}{(N-m+J+k)!(m-J-k)!(n-J-M+h-k)!(M-h+k)!(h-k)!k!J!} \\ = & e^{-\frac{r^2}{w^2}} \cdot \sum_{J=0}^m \end{aligned} \quad (\text{A.108})$$

$$\begin{aligned} & \sum_{h=\max(0, m-J-N)+\max(0, M-n+J)}^{m-J+M} 2^{M+m-h} \frac{(1-w^2)^J}{w^{(n+m)}} (-1)^h 2^{h+n-m+N-M} \\ & e^{-r^2} (re^{i\phi})^{n-m+N-M} L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\ & \sum_{k=\max(m-J-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m-J, h, h+n-J-M)} \\ & \frac{n!m!N!M!h!}{(N-m+J+k)!(m-J-k)!(n-J-M+h-k)!(M-h+k)!(h-k)!k!J!} \end{aligned}$$

On en déduit l'identité :

$$\begin{aligned} & (-1)^{m+M} 2^{n+N} m!M! e^{-r^2 \frac{w^2+1}{w^2}} \frac{(re^{i\phi})^{n-m+N-M}}{w^{n-m}} L_m^{n-m} \left(\frac{2r^2}{w^2} \right) L_M^{N-M} (2r^2) \\ = & e^{-\frac{r^2}{w^2}} \cdot \sum_{J=0}^m \end{aligned} \quad (\text{A.109})$$

$$\begin{aligned} & \sum_{h=\max(0, m-J-N)+\max(0, M-n+J)}^{m-J+M} 2^{M+m-h} \frac{(1-w^2)^J}{w^{n+m}} (-1)^h 2^{h+n-m+N-M} \\ & e^{-r^2} (re^{i\phi})^{n-m+N-M} L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\ & \sum_{k=\max(m-J-N, \min(h-M, 0))}^{\min(m-J, h, h+n-J-M)} \\ & \frac{n!m!N!M!h!}{(N-m+J+k)!(m-J-k)!(n-J-M+h-k)!(M-h+k)!(h-k)!k!J!} \end{aligned}$$

qu'on simplifie :

$$\begin{aligned}
& L_m^{n-m} \left(\frac{2r^2}{w^2} \right) L_M^{N-M} (2r^2) \\
= & \sum_{J=0}^m \sum_{h=\max(0,m-J-N)+\max(0,M-n+J)}^{m+M-J} \\
& \frac{(1-w^2)^J}{w^{2m}} (-1)^{h-m-M} L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\
& \sum_{k=\max(m-J-N,\min(h-M,0))}^{\min(m-J,h,h+n-J-M)} \\
& \frac{n!N!h!}{(N-m+J+k)!(m-J-k)!(n-J-M+h-k)!(M-h+k)!(h-k)!k!J!}
\end{aligned} \tag{A.110}$$

Et qu'on peut aussi écrire :

$$\begin{aligned}
& L_m^{n-m} \left(\frac{2r^2}{w^2} \right) L_M^{N-M} (2r^2) \\
= & \sum_{J=0}^m \sum_{h=\max(0,m-J-N)+\max(0,M-n+J)}^{m+M-J} \\
& \frac{(1-w^2)^J}{w^{2m}} (-1)^{h-m-M} L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\
& \sum_{k=\max(m-J-N,\min(h-M,0))}^{\min(m-J,h,h+n-J-M)} \\
& \frac{N!}{(N-m+J+k)!(m-J-k)!} \frac{(n-J)!}{(n-J-M+h-k)!(M-h+k)!} \frac{h!}{(h-k)!k!} \frac{n!}{(n-J)!J!} \\
= & \sum_{J=0}^m \sum_{h=\max(0,m-J-N)+\max(0,M-n+J)}^{m+M-J} \\
& \frac{(1-w^2)^J}{w^{2m}} (-1)^{h-m-M} L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\
& \sum_{k=\max(m-J-N,\min(h-M,0))}^{\min(m-J,h,h+n-J-M)} \binom{N}{m-k-J} \binom{n-J}{M-h+k} \binom{h}{k} \binom{n}{J} \\
= & \sum_{J=0}^m \sum_{h=0}^{m+M-J} \\
& \frac{(1-w^2)^J}{w^{2m}} (-1)^{h-m-M} L_h^{n-m+N-M} (2r^2) \\
& \sum_{k=0}^h \binom{N}{m-k-J} \binom{n-J}{M-h+k} \binom{h}{k} \binom{n}{J}
\end{aligned} \tag{A.111}$$

$$\tag{A.112}$$

$$\tag{A.113}$$

ou bien

$$L_m^l \left(\frac{2r^2}{w^2} \right) L_M^L (2r^2) = \sum_{J=0}^m \binom{l+m}{J} \frac{(1-w^2)^J}{w^{2m}} \sum_{h=0}^{m+M-J} (-1)^{h-m-M} L_h^{l+L} (2r^2) \sum_{k=0}^h \binom{L+M}{m-k-J} \binom{l+m-J}{M-h+k} \binom{h}{k} \quad (\text{A.114})$$

Cette relation est générale et valable pour tout argument positif, puisqu'on l'a prouvée avec $2r^2 \geq 0$.

On peut l'utiliser dans le cas où un des faisceaux est gaussiens, où $M = 0$:

$$L_m^l \left(\frac{2r^2}{w^2} \right) L_0^L (2r^2) = \sum_{J=0}^m \binom{l+m}{J} \frac{(1-w^2)^J}{w^{2m}} \sum_{h=0}^{m-J} (-1)^{h-m} L_h^{l+L} (2r^2) \sum_{k=0}^h \binom{L}{m-k-J} \binom{l+m-J}{-h+k} \binom{h}{k} \quad (\text{A.115})$$

L'avant-dernier coefficient binomial impose que $h \geq k$; combiné avec les bornes de sommation, cela donne $k = h$ et

$$L_m^l \left(\frac{2r^2}{w^2} \right) L_0^L (2r^2) = \sum_{J=0}^m \binom{l+m}{J} \frac{(1-w^2)^J}{w^{2m}} \sum_{h=0}^{m-J} (-1)^{h-m} L_h^{l+L} (2r^2) \binom{L}{m-h-J} \quad (\text{A.116})$$

On sait que $L_0^L (2r^2) = 1$. En outre, cette relation est valable pour toute valeur de L et en particulier $L = 0$. On a donc

$$L_m^l \left(\frac{2r^2}{w^2} \right) = \sum_{J=0}^m \binom{l+m}{J} \frac{(w^2-1)^J}{w^{2m}} L_{m-J}^l (2r^2) \quad (\text{A.117})$$

A.3.5 Produits de modes de Laguerre-Gauss de *waists* différents

Un signal de mélange d'onde correspond à la polarisation du troisième ordre créée par trois champs. À partir des résultats précédents, on peut calculer le produit de ces trois modes de Laguerre-Gauss. Un mode s'écrit :

$$u_{\ell p}^{LG}(r, \phi, z) = \frac{C_{\ell p}^{LG}}{w(z)} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w(z)} \right)^{|\ell|} e^{-\frac{r^2}{w^2(z)}} L_p^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{w^2(z)} \right) e^{i\kappa \frac{r^2}{2R(z)}} e^{i\ell\phi} e^{-i\psi_{p,\ell}(z)} \quad (\text{A.118})$$

En $z = 0$, on a :

$$u_{\ell_p}^{LG}(r, \phi, 0) = \frac{C_{\ell_p}^{LG}}{w(0)} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w(0)} \right)^{|\ell|} e^{-\frac{r^2}{w^2(0)}} L_p^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{w^2(0)} \right) e^{i\ell\phi} \quad (\text{A.119})$$

On considère trois champs dont un est pris en complexe conjugué avec même *waist* qu'on pose égal à l'unité $w^2(0)$

$$u_{\ell_i p_i}^{LG}(r, \phi, 0) = C_{\ell_i p_i}^{LG} (\sqrt{2}r)^{|\ell_i|} e^{-r^2} L_{p_i}^{|\ell_i|} (2r^2) e^{i\ell_i\phi} \quad (\text{A.120})$$

Leur produit s'écrit :

$$\begin{aligned} P^{(3)}(r, \phi, 0) & \quad (\text{A.121}) \\ &= C_{\ell_1 p_1}^{LG} C_{\ell_2 p_2}^{LG} C_{\ell_3 p_3}^{LG} (\sqrt{2}r)^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} e^{-3r^2} e^{i(-\ell_1+\ell_2+\ell_3)\phi} L_{p_1}^{|\ell_1|} (2r^2) L_{p_2}^{|\ell_2|} (2r^2) L_{p_3}^{|\ell_3|} (2r^2) \end{aligned}$$

en utilisant (A.114) :

$$\begin{aligned} P^{(3)}(r, \phi, 0) & \quad (\text{A.122}) \\ &= C_{\ell_1 p_1}^{LG} C_{\ell_2 p_2}^{LG} C_{\ell_3 p_3}^{LG} (\sqrt{2}r)^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} e^{-3r^2} e^{i(-\ell_1+\ell_2+\ell_3)\phi} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \sum_{h=0}^{p_1+p_2} (-1)^{h-p_1-p_2} \sum_{k=0}^h \binom{|\ell_2|+p_2}{p_1-k} \binom{|\ell_1|+p_1}{p_2-h+k} \binom{h}{k} L_h^{|\ell_1|+|\ell_2|} (2r^2) L_{p_3}^{|\ell_3|} (2r^2) \\ &= C_{\ell_1 p_1}^{LG} C_{\ell_2 p_2}^{LG} C_{\ell_3 p_3}^{LG} (\sqrt{2}r)^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} e^{-3r^2} e^{i(-\ell_1+\ell_2+\ell_3)\phi} \quad (\text{A.123}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \sum_{h=0}^{p_1+p_2} (-1)^{h-p_1-p_2} \sum_{k=0}^h \binom{|\ell_2|+p_2}{p_1-k} \binom{|\ell_1|+p_1}{p_2-h+k} \binom{h}{k} \\ & \sum_{h'=0}^{h+p_3} (-1)^{h'-h-p_3} L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (2r^2) \\ & \sum_{k'=0}^{h'} \binom{|\ell_3|+p_3}{h-k'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+h}{p_3-h'+k'} \binom{h'}{k'} \\ &= C_{\ell_1 p_1}^{LG} C_{\ell_2 p_2}^{LG} C_{\ell_3 p_3}^{LG} (\sqrt{2}r)^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} e^{-3r^2} e^{i(-\ell_1+\ell_2+\ell_3)\phi} \quad (\text{A.124}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & \sum_{h=0}^{p_1+p_2} \sum_{h'=0}^{h+p_3} (-1)^{h'-p_1-p_2-p_3} L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (2r^2) \\ & \sum_{k=0}^h \binom{|\ell_2|+p_2}{p_1-k} \binom{|\ell_1|+p_1}{p_2-h+k} \binom{h}{k} \sum_{k'=0}^{h'} \binom{|\ell_3|+p_3}{h-k'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+h}{p_3-h'+k'} \binom{h'}{k'} \end{aligned}$$

On projette sur un mode de Laguerre-Gauss de *waist* $1/\sqrt{3}$:

$$u_{\ell_s p_s}^{LG}(\sqrt{3}r, \phi, 0) = 3^{1/4} C_{\ell_s p_s}^{LG} (\sqrt{6}r)^{|\ell_s|} e^{-3r^2} L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) e^{i\ell_s\phi} \quad (\text{A.125})$$

qu'on prend en complexe conjugué en le multipliant avec $P^{(3)}$:

$$\begin{aligned}
 & \int_0^\infty r dr \int_0^{2\pi} d\phi P^{(3)}(r, \phi, 0) \cdot u_{\ell_s p_s}^{LG*}(\sqrt{3}r, \phi, 0) \\
 = & \left(\sqrt{3}\right)^{|\ell_s|+1/2} \left(\sqrt{2}\right)^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|} C_{\ell_1 p_1}^{LG} C_{\ell_2 p_2}^{LG} C_{\ell_3 p_3}^{LG} C_{\ell_s p_s}^{LG} \int_0^{2\pi} d\phi e^{i(-\ell_1+\ell_2+\ell_3-\ell_s)\phi} \quad (\text{A.126}) \\
 & \sum_{h=0}^{p_1+p_2} \sum_{h'=0}^{h+p_3} (-1)^{h'-p_1-p_2-p_3} \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (2r^2) L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) \\
 & \sum_{k=0}^h \binom{|\ell_2|+p_2}{p_1-k} \binom{|\ell_1|+p_1}{p_2-h+k} \binom{h}{k} \sum_{k'=0}^{h'} \binom{|\ell_3|+p_3}{h-k'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+h}{p_3-h'+k'} \binom{h'}{k'}
 \end{aligned}$$

On utilise (A.117) avec $w^2 = 3$ pour :

$$\int_0^{2\pi} d\phi e^{i(-\ell_1+\ell_2+\ell_3-\ell_s)\phi} = \delta(\ell_s + \ell_1 - \ell_2 - \ell_3) \quad (\text{A.127})$$

L'intégrale sur ϕ donne :

$$L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} \left(\frac{6r^2}{3}\right) = \sum_{J=0}^{h'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+h'}{J} \frac{2^J}{3^{h'}} L_{h'-J}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (6r^2)$$

L'intégrale sur r devient :

$$\begin{aligned}
 & \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (2r^2) L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) \\
 = & \sum_{J=0}^{h'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+h'}{J} \frac{2^J}{3^{h'}} \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_{h'-J}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (6r^2) L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) \quad (\text{A.128})
 \end{aligned}$$

On utilise (A.82) :

$$\begin{aligned}
 & L_{h'-J}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (6r^2) L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) \quad (\text{A.129}) \\
 = & \sum_{H=0}^{h'-J+p_s} (-1)^{H-h'+J-p_s} L_H^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|} (6r^2) \\
 & \sum_{K=0}^H \binom{|\ell_s|+p_s}{h'-J-K} \binom{h'-J+|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|}{p_s-H+K} \binom{H}{K}
 \end{aligned}$$

pour trouver

$$\begin{aligned}
& \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (2r^2) L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) \\
&= \sum_{J=0}^{h'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+h'}{J} \frac{2^J}{3^{h'}} \sum_{H=0}^{h'-J+p_s} (-1)^{H-h'+J-p_s} \quad (\text{A.130}) \\
& \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_H^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|} (6r^2) \\
& \sum_{K=0}^H \binom{|\ell_s|+p_s}{h'-J-K} \binom{h'-J+|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|}{p_s-H+K} \binom{H}{K}
\end{aligned}$$

On utilise les formules d'intégration des polynômes de Laguerre. On sait que :

$$\int_0^\infty x^{\alpha'-1} e^{-x} L_n^{(\alpha)}(x) dx = \binom{\alpha-\alpha'+n}{n} \Gamma(\alpha') \quad (\text{A.131})$$

$$= \frac{(\alpha-\alpha'+n)! (\alpha'-1)!}{n! (\alpha-\alpha')!} \quad (\text{A.132})$$

On pose $x = 6r^2$, $dx = 12r dr$, $\alpha' = \frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} + 1$, $\alpha = |\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|$, $n = H$

$$\begin{aligned}
& 2 \times 6^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_H^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|} (6r^2) \\
&= \frac{(|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s| - \frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} - 1 + H)! (\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2})!}{H! (|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s| - \frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} - 1)!} \quad (\text{A.133}) \\
& \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_H^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|} (6r^2) \\
&= \frac{1}{2 \times 6^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1}} \frac{(\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} - 1 + H)! (\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2})!}{H! (\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} - 1)!} \\
&= \frac{1}{2 \times 6^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1}} \binom{\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} - 1 + H}{H} \left(\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} \right)!
\end{aligned}$$

Donc, en remontant dans les formules

$$\begin{aligned}
& \int_0^\infty dr r^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} e^{-6r^2} L_{h'}^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|} (2r^2) L_{p_s}^{|\ell_s|} (6r^2) \\
&= \sum_{J=0}^{h'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+h'}{J} \frac{2^J}{3^{h'}} \sum_{H=0}^{h'-J+p_s} (-1)^{H-h'+J-p_s} \quad (\text{A.134}) \\
& \frac{1}{2 \times 6^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1}} \binom{\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} - 1 + H}{H} \left(\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} \right)! \\
& \sum_{K=0}^H \binom{|\ell_s|+p_s}{h'-J-K} \binom{h'-J+|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|}{p_s-H+K} \binom{H}{K}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & \int_0^\infty r dr \int_0^{2\pi} d\phi P^{(3)}(r, \phi, 0) \cdot \left(u_{\ell_s p_s}^{LG}(\sqrt{3}r, \phi, 0) \right)^* \\
 = & \left(\sqrt{3} \right)^{|\ell_s|+1/2} \left(\sqrt{2} \right)^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|} C_{\ell_1 p_1}^{LG} C_{\ell_2 p_2}^{LG} C_{\ell_3 p_3}^{LG} C_{\ell_s p_s}^{LG} \delta(\ell_s + \ell_1 - \ell_2 - \ell_3) \quad (\text{A.135})
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & \sum_{h=0}^{p_1+p_2} \sum_{h'=0}^{h+p_3} (-1)^{h'-p_1-p_2-p_3} \sum_{J=0}^{h'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+h'}{J} \frac{2^J}{3^{h'}} \sum_{H=0}^{h'-J+p_s} (-1)^{H-h'+J-p_s} \quad (\text{A.136}) \\
 & \frac{1}{2 \times 6^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1}} \binom{\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} - 1 + H}{H} \left(\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} \right)! \\
 & \sum_{K=0}^H \binom{|\ell_s|+p_s}{h'-J-K} \binom{h'-J+|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|}{p_s-H+K} \binom{H}{K} \\
 & \sum_{k=0}^h \binom{|\ell_2|+p_2}{p_1-k} \binom{|\ell_1|+p_1}{p_2-h+k} \binom{h}{k} \sum_{k'=0}^{h'} \binom{|\ell_3|+p_3}{h-k'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+h}{p_3-h'+k'} \binom{h'}{k'} \\
 = & \frac{(\sqrt{3})^{|\ell_s|+1/2} (\sqrt{2})^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}}{3^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+1} \times 2^{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|+2}} \left(\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} \right)! \\
 & C_{\ell_1 p_1}^{LG} C_{\ell_2 p_2}^{LG} C_{\ell_3 p_3}^{LG} C_{\ell_s p_s}^{LG} \delta(\ell_s + \ell_1 - \ell_2 - \ell_3) \quad (\text{A.137})
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & \sum_{h=0}^{p_1+p_2} \sum_{h'=0}^{h+p_3} (-1)^{h'-p_1-p_2-p_3} \\
 & \sum_{k=0}^h \binom{|\ell_2|+p_2}{p_1-k} \binom{|\ell_1|+p_1}{p_2-h+k} \binom{h}{k} \sum_{k'=0}^{h'} \binom{|\ell_3|+p_3}{h-k'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+h}{p_3-h'+k'} \binom{h'}{k'} \\
 & \sum_{J=0}^{h'} \binom{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+h'}{J} \frac{2^J}{3^{h'}} \quad (\text{A.138}) \\
 & \sum_{H=0}^{h'-J+p_s} (-1)^{H-h'+J-p_s} \binom{\frac{|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|+|\ell_s|}{2} - 1 + H}{H} \\
 & \sum_{K=0}^H \binom{|\ell_s|+p_s}{h'-J-K} \binom{h'-J+|\ell_1|+|\ell_2|+|\ell_3|}{p_s-H+K} \binom{H}{K}
 \end{aligned}$$

Annexe B

Illumination structurée : mise en forme spatiale du faisceau d'excitation

B.1 *Spatial light modulator* (SLM)

La mise en forme spatiale du faisceau d'excitation, que l'on appellera par la suite faisceau pompe, est effectuée grâce à un SLM (*Spatial Light Modulator*). Le SLM utilisé ici est basé sur la technologie LCOS (*Liquid Crystal On Silicon*) dans laquelle un cristal liquide en phase nématique est contrôlé par une tension précise et directe permettant de modifier le front d'onde d'un faisceau lumineux [7].

En effet, le cristal liquide en phase nématique du composant LCOS n'est pas isotrope. Cette anisotropie va faire du cristal liquide un milieu biréfringent uniaxe. Il est alors possible d'utiliser cette biréfringence pour moduler la phase d'un faisceau lumineux.

Nous pouvons alors imprimer sur le SLM un réseau de pas choisi et même de faire tourner ce réseau à des angles précis, grâce à un programme informatique simple. Le SLM permet donc de contrôler facilement le motif d'illumination. Le SLM utilisé dans notre expérience s'utilise en réflexion. L'angle de réflexion ne doit pas dépasser 10° pour une utilisation optimale du SLM.

B.2 Le montage « 4f »

Afin que la pompe possède un profil sinusoïdale au niveau de l'échantillon, nous imprimons un réseau de pas Λ sur le SLM grâce à son interfaçage avec l'ordinateur. Le SLM se comporte alors comme un réseau de diffraction en réflexion et diffracte le faisceau pompe en plusieurs ordres. Nous ne conservons alors que les ordres $(+1)$ et (-1) de fréquence spatiale $1/\Lambda$ et $-1/\Lambda$, respectivement, pour imprimer un profil

sinusoïdal à l'intensité de la pompe au niveau de l'échantillon grâce à un montage « 4f ».

Le principe du montage « 4f » est présenté figure B.1 (voir au dos). Le réseau en réflexion que constitue le SLM est placé dans le plan focale objet d'une lentille convexe L_1 de focale $f_1 = 800mm$. La figure de diffraction résultante s'observe dans le plan focale de L_1 , c'est à dire dans le plan de Fourier du réseau. Nous sélectionnons dans ce plan les ordres (+1) et (-1) de diffraction. Une lentille convexe L_2 placée à une distance f_2 du diaphragme permet d'imager le réseau au niveau de son plan focale image en faisant interférer les ordres (+1) et (-1). Dans la configuration de notre montage expérimentale, la lentille L_2 est un objectif de microscope. La distance séparant le diaphragme du plan de l'oculaire est alors sa focale qui est de $9mm$ et la distance entre le plan de sortie de l'objectif et l'échantillon correspond à la distance de travail (*working distance*) de $2mm$.

L'ouverture numérique des objectifs de microscope utilisés étant de $O.N. = 0.75$, le plus petit pas qu'il est possible d'imager sur l'échantillon est égale à $\frac{\lambda}{2O.N.} < \frac{\lambda}{1.5}$ obtenu dans le cas où les ordres (+1) et (-1) arrive sur les bords de l'objectif de microscope. Les franges de l'illumination structurée de la pompe peuvent être au minimum séparées de $a \approx 330nm$.

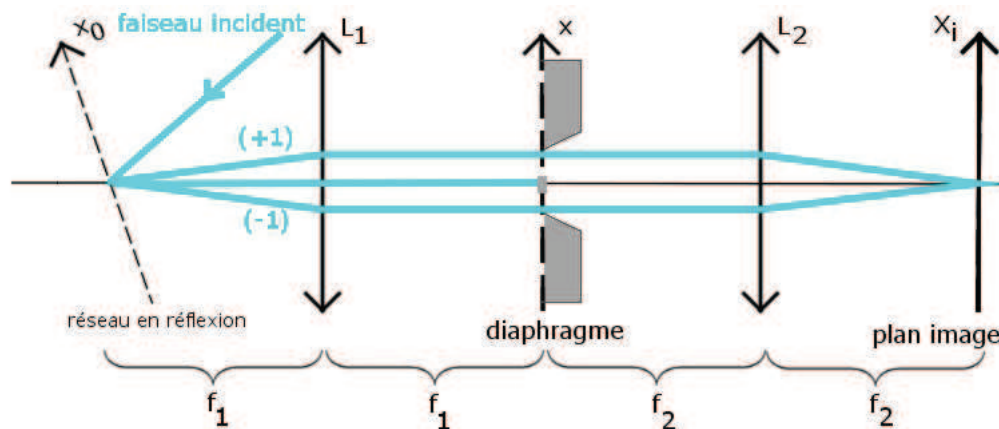


FIGURE B.1 – Schéma de principe d'un montage « 4f ». L_1 et L_2 sont deux lentilles convexes de distances focales f_1 et f_2 , respectivement.

Le réseau en réflexion se situe dans le plan focale objet de la lentille L_1 . Le réseau diffracte le faisceau incident (qui est colimaté) en plusieurs ordres. La figure de diffraction résultante s'observe dans le plan focale image de la lentille L_1 , c'est à dire dans le plan de Fourier du réseau. C'est dans ce plan que l'on peut sélectionner les ordres (+1) et (-1) de diffraction. Une lentille L_2 placée à une distance f_2 du diaphragme permet d'imager le réseau au niveau de son plan focale image en faisant interférer les ordres (+1) et (-1).

Bibliographie

- [1] L. Allen, M. W. Beijersbergen, R. J. C. Spreeuw, and J. P. Woerdman. Orbital angular momentum of light and the transformation of laguerre-gaussian laser modes. *Physical Review A*, 45(11) :8185–8189, 1992.
- [2] S. M. Barnett and L. Allen. Optical angular momentum and nonparaxial light beams. *Optics Communication*, 110 :670–678, 1994.
- [3] M. W. Beijersbergen, R. P. C. Coerwinkel, and J. P. Woerdman. Helical-wavefront laser beams produced with a spiral phaseplate. *Optics Communications*, 112(5-6) :321–327, 1994.
- [4] R. A. Beth. Mechanical detection and measurement of angular momentum of light. *Physical Review*, 50 :115–125, 1936.
- [5] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, and U. Woggon. Ultralong dephasing time in InGaAs quantum dots. *Physical Review Letters*, 87(15) :157401, 2001.
- [6] S. Bretschneider, C. Eggeling, and S.W. Hell. Breaking the diffraction barrier in fluorescence microscopy by optical shelving. *Physical Review Letters*, 98 :218103, 2007.
- [7] V. Carrat. *Correction dynamique d'un SLM our une holographie de haute fidélité. Réalisation d'un MOT-2D pour l'application de mode de Laguerre-Gauss*. PhD thesis, Université Paris Sud, 2012.
- [8] G. Cerullo and S. De Silvestri. Ultrafast optical parametric amplifiers. *Review of Scientific Instruments*, 74(1) :1–18, 2003.
- [9] C. Y. P. Chao and S. L. Chuang. Analytical and numerical solutions for a two-dimensional exciton in momentum space. *Physical Review B*, 43(8) :6530–6543, 1991.
- [10] J.-I. Chikawa and T. Nakayama. Dislocation structure and growth mechanism of cadmium sulfide crystals. *Journal of Applied Physics*, 35 :2493, 1964.
- [11] Philippe Christol. *Les excitons dans les nanostructures semiconductrices : modélisation dans un espace de dimension fractionnaire*. PhD thesis, Université de Strasbourg, 1994.

-
- [12] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Mécanique quantique (tome 1 and 2)*. Hermann, Paris, 1988.
- [13] J. H. Collet and H. Kalt. Relaxation of excitons in coherently strained CdTe/ZnTe quantum wells. *Physical review B*, 43(8) :6843–6846, 1991.
- [14] J. Courtial, K. Dholakia, L. Allen, and M. J. Padgett. Second-harmonic generation and the conservation of orbital angular momentum with high-order laguerre-gaussian modes. *Physical Review A*, 56(5) :4193–4196, 1997.
- [15] A. Debernardi, N. M. Pyka, A. Göbel, T. Ruf, R. Lauck, and M. Cardona. Lattice dynamics of wurtzite CdS : Neutron scattering and *ab-initio* calculations. *Solid State Communication*, 103(5) :297–301, 1997.
- [16] D.P.Caetano, M.P.Almeida, P.H.Souto Ribeiro, J.A.O.Huguenin, B.Coutinho dos Santos, and A.Z.Khoury. Conservation of orbital angular momentum in stimulated down-conversion. *Physical Review A*, 66(4) :041801, 2002.
- [17] K. H. Drexhage. Influence of a dielectric interface on fluorescence decay time. *Journal of Luminescence*, 1-2 :693–701, 1970.
- [18] E.J.Galvez. *Gaussian beams*. Colgate University, 2009.
- [19] J. Frenkel. On the transformation of light into heat in solids. *Physical Review*, 37(1) :17–44, 1931.
- [20] J.A. Gaj, W. Grieshaber, C. Bodin-Deshays, G. Feuillet, Y. Merle d’Aubigné, and A. Wasiela. Magneto-optical study of interface mixing in CdTe-(Cd,Mn)Te system. *Physical Review B*, 50(5512), 1994.
- [21] P. Gilliot, D. Brinkmann, J. Kudrna, O. Crégut, and R. Lévy. Quantum beats between trion and exciton transitions in modulation-doped CdTe quantum wells. *Physical Review B*, 60(8) :5797–5801, 1999.
- [22] J. Goodman. *Introduction to Fourier Optics*. Stanford University, 1996.
- [23] I. S. Gradshteyn and I. M. Ryzhik. *Table of integrals series and products*. Academic Press New-York and London, 1965.
- [24] M. G. L Gustafsson. Surpassing the lateral resolution limit by a factor of two using structured illumination microscopy. *Journal of Microscopy*, 198 :82–87, 2000.
- [25] M. G. L. Gustafsson. Nonlinear structured illumination microscopy : wide field fluorescence imaging with theoretically unlimited resolution. *PNAS*, 102(37) :13081–1386, 2005.
- [26] E. Gutsche and J. Voigt. Exciton-phonon interaction in CdS, 1967.
- [27] H. He, M. E. J .Friese, N. R. Heckenberg, and H. Rubinsztein-Dunlop. Direct observation of transfer of angular momentum to absorptive particles from a laser beam with a phase singularity. *Physical Review Letters*, 75(5) :826–829, 1995.

- [28] N. R. Heckenberg, R. McDuff, C. P. Smith, H. Rubinsztein-Dunlop, and M. J. Wegener. Laser beams with phase singularities. *Optical and Quantum Electronics*, 24 :S591–S962, 1992.
- [29] H. Heinzelmann and D. W. Pohl. Scanning near-field optical microscopy. *Applied physics A*, 59 :89–101, 1994.
- [30] S. W. Hell. Toward fluorescence nanoscopy. *Nature Biotechnology*, 21(11) :1347–1355, 2003.
- [31] S. W. Hell. Strategy for far-field optical imaging and writing without diffraction limit. *Physical Letter A*, 326(1-2) :140–145, 2004.
- [32] S. W. Hell. *Far-Field Optical Nanoscopy*. Springer Berlin Heidelberg, 2010.
- [33] S. W. Hell and J. Wichmann. Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission : stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy. *Optics Letters*, 19(11) :780–782, 1994.
- [34] F. Henneberger, J. Puls, H. Rossmann, Ch. Spiegelberg, M. Kretzschmar, and I. Haddad. Optical nonlinearity and bistability of wide-gap II-VI compounds. *Physica Scripta*, T13 :195–204, 1986.
- [35] J. J. Hopfield and D. G. Thomas. Fine structure and magneto-optic effects in the exciton spectrum of cadmium sulfide. *Physical Review*, 122 :35, 1961.
- [36] S. Huard and C. Imbert. Mesure de l'impulsion échangée au cours de l'interaction onde evanescente-atome. *Optics communications*, 24(2) :185–189, 1978.
- [37] D. Kailiang, W. Beizham, and L. Baida. Propagation of Hermite-Gaussian and Laguerre-Gaussian beams beyond the paraxial approximation. *Journal of the Optical society of America A*, 22(9) :1976–1980, 2005.
- [38] S. Keller, B. P. Keller, D. Kapolnek, A. C. Abare, H. Masuni, L. A. Coldren, U. K. Mishra, and S. P. Den Baars. Growth and characterization of bulk InGaN films and quantum wells. *Applied Physics Letters*, 68 :3147–3149, 1996.
- [39] K. Kheng, K. Saminadayar, and N. Magnea. Effect of confined electrons on the center-of-mass quantization states of exciton in wide modulation-doped CdTe/CdZnTe quantum wells. *Journal of Crystal Growth*, 184/185 :849–852, 1998.
- [40] V. I. Klimov. *Semiconductor and Metal Nanocrystals : Synthesis, Electronic and Optical Properties*. Marcel Dekker, New York, 2003.
- [41] R. S. Knox. *Theory of exciton*. Academic Press Inc, 1963.
- [42] Landolt-Börnstein. *Numerical Data and Functional Relationship in science and Technologie, groupe 3, volume b*. Springer Verlag, Berlin, 1982.
- [43] J. Leach, E. Yao, and M. J. Padgett. Observation of the vortex structure of a non-integer vortex beam. *New Journal of Physics*, 6(71), 2004.

- [44] J.-B. Lecourt. *Etude et réalisation de lasers à fibre auto-impulsionnels à base d'absorbants saturables*. PhD thesis, Faculté des sciences et techniques de l'université de Rouen, 2006.
- [45] R. Levy, M. J. M. Gomes, B. Kippelen, and B. Hönerlage. Coherent signal generation in CuCl by light-induced grating and induced biexciton decay. *Physica Status Solidi (b)*, 158(1) :391–396, 1990.
- [46] A. Mecozzi, J. Mork, and M. Hoffman. Transient four-wave mixing with a collinear pump and probe. *Optics Letters*, 21(14) :1017–1019, 1996.
- [47] D. Moretti, D. Felinto, and J. W. R. Tabosa. Collapses and revivals of stored orbital angular momentum of light in a cold-atom ensemble. *Physical Review A*, 79(2) :023825, 2009.
- [48] J. Nillon, O. Crégut, C. Bressler, and S. Haacke. Two MHz tunable non collinear optical parametric amplifiers with pulse durations down to 6 fs. *Optics Express*, 22(12) :14964–14974, 2014.
- [49] J. Oberlé. *Non-linéarités optiques du sulfure de cadmium à la température ambiante : caractérisation et applications*. PhD thesis, Université Louis Pasteur de Strasbourg, 1992.
- [50] A. T. O'Neil, I. MacVicar, and M. J. Padgett. Intrinsic and extrinsic nature of the orbital angular momentum of a light beam. *Physical Review Letters*, 88(5), 2002.
- [51] M. Orrit and J. Bernard. Single pentacene molecules detected by fluorescence excitation in a p-terphenyl crystal. *Physical Review Letters*, 65 :2716, 1990.
- [52] M. Padgett, J. Courtial, and L. Allen. Light's orbital angular momentum. *Physics Today*, 57(5) :35, 2004.
- [53] F. Pampaloni and J. Enderlein. Gaussian, hermite gaussian, laguerre-gaussian beams : A primer. *Preprint physics*, page /0410021, 2004.
- [54] Ph. Riblet, Ch. Spiegelberg, P. Faller, P. Gilliot, J. Puls, F. Henneberger, and B. Hönerlage. Determination of anisotropic ambipolar diffusion coefficient of CdS at room temperature. *Optical Materials*, 3 :139–144, 1994.
- [55] E. Riedle, M. Beutter, S. Lochbrunner, J. Piel, S. Schneckl, S. Spörlein, and W. Zinth. Generation of 50 fs pulses tunable through all of the visible and the nir. *Applied Physics B*, 71 :457–465, 2000.
- [56] E. Rittweger, H. K. Young, S. E. Irvine, C. Eggeling, and S. W. Hell. Sted microscopy reveals crystal colour centres with nanometric resolution. *Nature Photonics*, 3(3) :144–147, 2009.
- [57] J. Salvi and D. Van Labeke. La microscopie optique en champ proche. principe.

- [58] E. Santamat. Photon orbital angular momentum : problems and perspectives. *Fortschritte der Physik*, 52(11-12) :1141–1153, 2004.
- [59] Y. R. Shen. *The principles of nonlinear optics*. Wiley, 1984.
- [60] M. Shinada and S. Sugano. Interband optical transitions in extremely anisotropic semiconductors. i. bound und unbound exciton absorption. *Journal o the Physical Society of Japan*, 21 :1936–1946, 1966.
- [61] N.B. Simpson, K. Dholakia, L. Allen, and M. J. Padgett. Mechanical equivalence of spin and orbital angular momentum of light : an optical spanner. *Optics Letters*, 22(1) :52–54, 1997.
- [62] A. Sommerfeld. Die greenschen funktionen der schwingungsgleichung. *Jahresber. Deutscher Math. Verein*, 21 :309–353, 1912.
- [63] F. Spiegelberg, E. Gutsche, and J. Voigt. Exciton-phonon interaction in CdS. *Physica Status Solidi (b)*, 77 :233, 1976.
- [64] P. Tamarat, A. Maali, B. Lounis, and M. Orrit. Ten years of single-molecules spectroscopy. *Journal of Physical Chemistry A*, 104 :1, 2000.
- [65] J. M. Vigoureux. De l’onde évanescente de fresnel au champ proche optique. *Annales de la fondation Louis de Broglie*, 28(3-4) :525–548, 2003.
- [66] P. Wang, M. N. Slipchenko, J. Mitchell, C. Yang, E. O. Potma, X. Xu, and J.-X. Cheng. Far-fild imaging of non-florescent species with subdiffraction resolution. *nature photonics*, 7 :449–453, 2013.
- [67] G. H. Wennier. The structure of electronic excitation levels in insulating crystals. *Physical Review*, 52(3) :191–197, 2014.
- [68] T. Wilson and C. Sheppard. *Theory and pratice of scanning optical microscopy*. Academic Press, 1984.

Publications et conférences

Publications

Four-wave mixing in quantum wells using femtosecond pulses with Laguerre-Gauss mode, *D. Persuy, M. Ziegler, O. Crégut, K. Kheng, M. Gallart, B. Hönerlage, P. Gilliot*, en cours de publication dans **Physical review B**

Présentation à des conférences

Kalsruhe days of Optics and Photonics le 5 novembre 2013 (poster). École d'hiver CNRS-EWHA (7^{ième} édition) le 27 janvier 2014 (poster). Séminaire franco-indien *Women in Science* à Bangalore le 4 février (poster). Congrès national de la Société Française de Physique (SFP) à Strasbourg le 26 août 2015 (oral). Conférence internationale II-VI (17^{ième} édition) à Paris le 17 septembre 2015 (poster).

Déborah PERSUY

Nanoscopie résolue en temps : étude de la réponse spatiale et temporelle pour l'imagerie ultra-rapide

Résumé

Nous nous intéressons au développement ainsi qu'à la modélisation théorique de techniques de spectroscopie optique de champ lointain capable de coupler résolutions spatiale et temporelle grâce à l'utilisation de faisceaux d'excitation mis en forme spatialement. Nous établissons, théoriquement et expérimentalement, que dans une expérience de mélange à quatre ondes réalisée avec des faisceaux de Laguerre-Gauss, la charge totale du moment angulaire est conservée. Nous montrons comment cette propriété peut être mise à profit pour travailler en géométrie colinéaire dans le but d'améliorer la résolution spatiale de ces expériences. Dans une deuxième partie, nous présentons une technique de spectroscopie « pompe-sonde » résolue spatialement que nous avons conçue et développée : l'imagerie temporelle est obtenue *via* la détection interférométrique des variations d'indice d'un matériau vues par une sonde large et étendue et consécutives à l'excitation par une impulsion pompe focalisée à la limite de diffraction. Nos modélisations démontrent qu'un tel montage associé à l'emploi d'une impulsion pompe modulée spatialement doit permettre, grâce au battement entre les fréquences spatiales des inhomogénéités de l'échantillon et la modulation spatiale de l'excitation, de dépasser la limite de Rayleigh.

Mots-clés : spectroscopie ultra-rapide, imagerie, hyper-résolution, non-linéarités optiques.

Abstract

This work focuses on developing and modelling far-field spectroscopic methods that couple spatial and time resolutions by using beam-shaping. In a first part, we demonstrate, theoretically and experimentally, that generating a signal in a four-wave mixing experiment performed with Laguerre-Gauss beams, implies the conservation of the total charge of the orbital momentum. We show that this specificity can be used to perform experiments with collinear beams in order to improve spatial resolution. In a second part, we present a time- and spatially-resolved pump-probe technique of our own design : time-resolved imaging is obtained by the interferometric detection of variations in the refraction index of a material, undergone by a wide probe and induced by a diffraction-limited pump-pulse. Improving such an experiment set-up with a spatially-modulated pump-pulse should enable, thanks to the beating between spatial frequencies of sample inhomogeneities and the excitation spatial-modulation, to increase spatial resolution beyond the Rayleigh criterion.

Keywords : ultra-fast spectroscopy, imaging, microscopy, optical non-linearities