ECOLE DOCTORALE DE PHYSIQUE DE LA REGION PARISIENNE COURS D'ECOLE DOCTORALE

Lasers femtosecondes : principes et applications en physique, chimie et biologie

Manuel Joffre

Laboratoire d'Optique et Biosciences INSERM U696 – CNRS UMR 7645 Ecole Polytechnique 91128 Palaiseau cedex

http://www.lob.polytechnique.fr

mai - juin 2006

Ordres de grandeur

Une femtoseconde : 10^{-15} s

A la vitesse de la lumière :

En 1 s : 300 000 km / En 100 fs : 30 μm

A la vitesse du son :



En 1 s : 300 m / En 100 fs : 0.3 Å

Les 3 qualités des impulsions femtosecondes

1) Durée ultra-courte

→ Etude de phénomènes ultra-rapides

2)
$$\frac{\text{Energie}}{\text{Durée}}$$
 = Puissance crête élevée \rightarrow Physique des hautes intensités

3) Effets non-linéaires importants → Générat

→ Génération de nouvelles longueurs d'onde

PLAN

- L'optique linéaire et non-linéaire des impulsions brèves
- Méthodes de caractérisation
- Sources femtosecondes : du visible à l'ensemble du spectre électromagnétique
- Spectroscopie femtoseconde
- Façonnage d'impulsions et contrôle cohérent
- Techniques d'imagerie à base d'impulsions femtosecondes

L'optique linéaire et non-linéaire des impulsions brèves

- 1. Représentation d'une impulsion brève. Phase spectrale.
- 2. Analogie spatio-temporelle
- 3. Représentations temps fréquence
- 4. Propagation linéaire
- 5. Propagation non-linéaire

Transformation de Fourier

$$f(\omega) = \mathcal{F}f(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\omega t} f(t)dt$$

$$f(t) = \mathcal{F}^{-1}f(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i\omega t}f(\omega)\frac{d\omega}{2\pi}$$

$$\int f_1^*(t)f_2(t)dt = \int f_1^*(\omega)f_2(\omega)\frac{d\omega}{2\pi}$$

$$\frac{\mathcal{F}f(t) \otimes g(t) = f(\omega)g(\omega)}{\mathcal{F} \exp(-i\omega_0 t) = 2\pi\delta(\omega - \omega_0)} \frac{\mathcal{F}^{-1}\frac{1}{2\pi}f(\omega) \otimes g(\omega) = f(t)g(t)}{\mathcal{F}^{-1}\frac{d}{dt} = -i\omega f(\omega)}$$

$$\frac{\mathcal{F}^{-1}\frac{df(\omega)}{d\omega} = itf(t)}{\mathcal{F}^{-1}\frac{df(\omega)}{d\omega} = itf(t)} = \frac{i}{\omega - \omega_0 + i\Gamma}$$

$$\Delta t\Delta\omega \ge \frac{1}{2}$$

Profils temporel et spectral d'une impulsion brève



$$E(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} E(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi}$$
$$E(t) \text{ réel} \Rightarrow E(-\omega) = E(\omega)^*$$
$$E(\omega) = \frac{\varepsilon(\omega) + \varepsilon^*(-\omega)}{2}$$
$$E(t) = \frac{\varepsilon(t) + \varepsilon^*(t)}{2} = \operatorname{Re} \varepsilon(t)$$

 $\varepsilon(t)$: champ complexe

Valeurs moyennes temporelles et spectrales

On suppose
$$\varepsilon(t)$$
 normalisé : $\int |\varepsilon(t)|^2 dt = \int |\varepsilon(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} = 1$

• Centre de l'impulsion

$$\left\langle t\right\rangle = \int t \left| \mathcal{E}(t) \right|^2 dt$$

 $\Delta t = \sqrt{\left\langle t^2 \right\rangle - \left\langle t \right\rangle^2} = \sqrt{\left\langle \left(t - \left\langle t \right\rangle \right)^2 \right\rangle}$

• Durée de l'impulsion (RMS)

• Fréquence centrale

$$\omega_0 = \left\langle \omega \right\rangle = \int \omega \left| \varepsilon(\omega) \right|^2 \frac{d\omega}{2\pi}$$

• Largeur spectrale (RMS)

$$\Delta \omega = \sqrt{\left\langle \omega^2 \right\rangle - \left\langle \omega \right\rangle^2} = \sqrt{\left\langle \left(\omega - \omega_0\right)^2 \right\rangle}$$



Relation entre durée et phase spectrale

$$\varepsilon(\omega) = |\varepsilon(\omega)| \exp(i\varphi(\omega)) \qquad \qquad \varphi(\omega) : \text{ phase spectrale}$$

$$\langle t \rangle = \int t |\varepsilon(t)|^2 dt = \left\langle \frac{d\varphi}{d\omega} \right\rangle \qquad \qquad \tau_g(\omega) = \frac{d\varphi}{d\omega} : \text{ retard de groupe}$$

$$\Delta t^2 = \Delta t_{\varphi=0}^2 + \Delta \tau_g^2 \qquad \text{ avec} \qquad \Delta \tau_g^2 = \left\langle \left(\tau_g(\omega) - \left\langle \tau_g(\omega) \right\rangle\right)^2 \right\rangle = \left\langle \left(\frac{d\varphi}{d\omega} - \left\langle \frac{d\varphi}{d\omega} \right\rangle\right)^2 \right\rangle$$

- ✓ Pour $|\varepsilon(\omega)|$ fixé, l'impulsion la plus courte possible est obtenue lorsque $\tau_g(\omega)$ est indépendant de la fréquence ($\Delta \tau_g = 0$). Il s'agit alors d'une impulsion dite **limitée par transformée de Fourier**.
- ✓ A l'inverse, lorsque $\tau_g(\omega)$ varie avec la fréquence, on dit que l'impulsion présente une dérive de fréquence (ou *chirp*).

Phase spectrale quadratique : allongement et dérive de fréquence

$$\varphi(\omega) = \frac{1}{2} \varphi''(\omega_0) (\omega - \omega_0)^2$$

$$\tau_{g}(\omega) = \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega} = \varphi''(\omega_{0})(\omega - \omega_{0})$$

Les différentes composantes spectrales arrivent les unes après les autres : il y a un glissement de fréquence, ou dérive de fréquence (*chirp*).



Phase spectrale aléatoire : champ incohérent



Temps de cohérence : 10 fs

PROFIL TEMPOREL



Relation entre largeur spectrale et phase temporelle

 $\varepsilon(t) = |\varepsilon(t)| \exp(i\phi(t))$



 $\phi(t)$: phase temporelle



2. Analogie spatio-temporelle

$$E(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} E(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi}$$

$$\Delta \omega \cdot \Delta t \ge \frac{1}{2}$$

Impulsion limitée par transformée de Fourier

Mesure de la phase spectrale Phase spectrale quadratique Phase spectrale d'ordre trois ou plus

$$E(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} E(k_x) \exp(ik_x x) \frac{dk_x}{2\pi}$$

$$\Delta k_x \cdot \Delta x \ge \frac{1}{2}$$

Faisceau limité par la diffraction Analyseur de front d'onde Mauvaise mise au point Aberrations

Optique de Fourier



Introduction d'une lame de phase



Introduction d'une lame de phase



Phase spatiale aléatoire \rightarrow speckle

Introduction d'une lame de phase



3. Représentations temps - fréquence



Spectrogrammes et sonogrammes

• Spectrogramme (spectre d'une tranche temporelle)



T. Brixner, N.H. Damrauer, B. Kiefer, G. Gerber, J. Chem. Phys. **118**, 3692 (2003) K. Husimi, Proc. Phys. Math. Soc. Jpn. **22**, 264 (1940)

Spectrogrammes et sonogrammes

• Spectrogramme (spectre d'une tranche temporelle)

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

• Sonogramme (profil temporel d'une tranche spectrale)

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

- Spectrogramme = sonogramme
- Spectrogramme = représentation Q de Glauber en optique quantique

Représentation de Wigner

JUNE 1, 1932

PHYSICAL REVIEW

VOLUME 40

On the Quantum Correction For Thermodynamic Equilibrium

By E. WIGNER

Department of Physics, Princeton University (Received March 14, 1932)

$$P(x_1, \cdots, x_n; p_1, \cdots, p_n)$$

$$= \left(\frac{1}{h\pi}\right)^n \int_{-\infty}^{\infty} \cdots \int dy_1 \cdots dy_n \psi(x_1 + y_1 \cdots x_n + y_n)^*$$

$$\psi(x_1 - y_1 \cdots x_n - y_n) e^{2i(p_1y_1 + \cdots + p_ny_n)/h}$$

Représentation chronocyclique ou de Wigner-Ville

$$W(t,\omega) = \int \mathcal{E}^*\left(t - \frac{t'}{2}\right) \mathcal{E}\left(t + \frac{t'}{2}\right) \exp(i\omega t') dt' = \int \mathcal{E}^*\left(\omega - \frac{\omega'}{2}\right) \mathcal{E}\left(\omega + \frac{\omega'}{2}\right) \exp(-i\omega' t) \frac{d\omega'}{2\pi}$$



J. Paye, IEEE J. Quant. Electr. **28**, 2262 (1992) J. Ville, Câbles et transmission, **2A**, 61 (1948)

Propriétés de la fonction de Wigner

$$W(t,\omega) = \int \mathcal{E}^*\left(t - \frac{t'}{2}\right) \mathcal{E}\left(t + \frac{t'}{2}\right) \exp(i\omega t') dt' = \int \mathcal{E}^*\left(\omega - \frac{\omega'}{2}\right) \mathcal{E}\left(\omega + \frac{\omega'}{2}\right) \exp(-i\omega' t) \frac{d\omega'}{2\pi}$$

- Distributions marginales $\int W(t,\omega)dt = \left|\mathcal{E}(\omega)\right|^2$ $\int W(t,\omega)\frac{d\omega}{2\pi} = \left|\mathcal{E}(t)\right|^2$
- Effet d'une modulation temporelle $\mathcal{E}_2(t) = f(t)\mathcal{E}_1(t)$

soit
$$\mathcal{E}_2(\omega) = \frac{1}{2\pi} f(\omega) \otimes \mathcal{E}_1(\omega)$$

$$W_2(t,\omega) = \frac{1}{2\pi} W_f(t,\omega) \otimes_{\omega} W_1(t,\omega)$$

• Effet d'un filtrage spectral

 $\mathcal{E}_2(\omega) = g(\omega)\mathcal{E}_1(\omega)$

soit $\mathcal{E}_2(t) = g(t) \otimes \mathcal{E}_1(t)$

$$W_2(t,\omega) = W_g(t,\omega) \otimes_t W_1(t,\omega)$$

Spectrogramme = fonction de Wigner lissée $S(t, \omega) = \left| \int \mathcal{E}(t')g(t'-t)\exp(i\omega t')dt' \right|^2$

donc

$$S(t,\omega) = \frac{1}{2\pi} \int W_g(t'-t,\omega) \otimes_{\omega} W(t',\omega) dt' = W_g(-t,\omega) \otimes W(t,\omega)$$



Effet d'une phase spectrale quadratique

$$\mathcal{E}_{2}(\omega) = \mathcal{E}_{1}(\omega) \exp\left(i\frac{\varphi''}{2}(\omega-\omega_{0})\right)$$

soit un chirp linéaire $\Delta \tau_g(\omega) = \varphi''(\omega - \omega_0)$

$$\begin{split} W_{2}(t,\omega) &= \int \mathcal{E}_{1}^{*} \left(\omega - \frac{\omega'}{2} \right) \mathcal{E}_{1} \left(\omega + \frac{\omega'}{2} \right) \exp \left(i \frac{\varphi''}{2} \left(- \left(\omega - \frac{\omega'}{2} - \omega_{0} \right)^{2} + \left(\omega + \frac{\omega'}{2} - \omega_{0} \right)^{2} \right) \right) \exp(-i\omega' t) \frac{d\omega'}{2\pi} \\ &= \int \mathcal{E}_{1}^{*} \left(\omega - \frac{\omega'}{2} \right) \mathcal{E}_{1} \left(\omega + \frac{\omega'}{2} \right) \exp(i\varphi'' \omega' (\omega - \omega_{0})) \exp(-i\omega' t) \frac{d\omega'}{2\pi} \\ &= W_{1}(t - \varphi'' (\omega - \omega_{0}), \omega) \\ &= W_{1}(t - \Delta\tau(\omega), \omega) \end{split}$$

Effet d'une phase spectrale quadratique $\varphi^{(2)} = 200 \text{ fs}^2$



Effet d'une phase spectrale cubique

$$\varphi^{(3)} = 2000 \, \mathrm{fs}^3$$



Séquence de deux impulsions



4. Propagation linéaire d'une impulsion brève

Propagation linéaire d'une impulsion brève

Equation de propagation :

$$\frac{\partial^2 \boldsymbol{\mathcal{E}}(\boldsymbol{\omega}, z)}{\partial z^2} + k(\boldsymbol{\omega})^2 \boldsymbol{\mathcal{E}}(\boldsymbol{\omega}, z) = 0$$

où
$$k(\omega) = n(\omega)\frac{\omega}{c}$$
.
Solution : $\mathcal{E}(\omega, z) = \mathcal{E}(\omega, 0) \exp(ik(\omega)z)$
Soit : $\varphi(\omega, z) = \varphi(\omega, 0) + k(\omega)z$

Retard de groupe :
$$\tau(\omega, z) = \frac{\partial \varphi(\omega, z)}{\partial \omega} = \frac{\partial \varphi(\omega, 0)}{\partial \omega} + \frac{dk}{d\omega} z = \tau(\omega, z) + \frac{z}{V_g}$$

Vitesse de groupe
$$V_g$$
 $\frac{1}{V_g} = \frac{dk}{d\omega}$

Dispersion dans un milieu transparent



$$\tau_{g}(\omega, z) = \frac{\partial \varphi(\omega, z)}{\partial \omega} = \tau_{g}(\omega, 0) + k_{0}' z + (\omega - \omega_{0})^{2} k_{0}'' z + \dots$$

L'impulsion acquiert une phase spectrale quadratique en raison de la dispersion de vitesse de groupe. Elle présente donc un glissement de fréquence, ou "chirp".

Analogie avec la propagation d'un paquet d'ondes en mécanique quantique

 $\psi(x,t)$

$$i\hbar \frac{\partial \psi(x,t)}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \psi(x,t)}{\partial x^2}$$

$$i\hbar \frac{\partial \psi(k,t)}{\partial t} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \psi(k,t)$$

$$\psi(k,t) = \psi(k,0) \exp(i\varphi(k,t))$$

$$\varphi(k,t) = -\frac{\hbar k^2}{2m}t$$

 $\mathcal{E}(t,z)$

$$\mathcal{E}(\omega, z) = \mathcal{E}(\omega, 0) \exp(i\varphi(\omega, z))$$

$$\varphi(\omega, z) = \varphi(\omega, 0) + k_0 z + (\omega - \omega_0) k'_0 z + \frac{1}{2} (\omega - \omega_0)^2 k''_0 z + \dots$$

Analogie avec la diffraction d'un faisceau lumineux

u(x, y, z)

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

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

$$u(k_x, k_y, z) = u(k_x, k_y, 0) \exp(i\varphi(k_x, k_y, z))$$

$$\varphi(k_x, k_y, z) = -\frac{\left(k_x^2 + k_y^2\right)z}{2k}$$

 $\mathcal{E}(t,z)$

$$\mathcal{E}(\omega, z) = \mathcal{E}(\omega, 0) \exp(i\varphi(\omega, z))$$

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

Etalement d'une impulsion brève

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

$$\tau_g(\omega, z) = \frac{\partial \varphi(\omega, z)}{\partial \omega} = \tau_g(\omega, 0) + k_0' z + (\omega - \omega_0)^2 k_0'' z$$



Analogue à :

- l'étalement d'un paquet d'ondes
- la diffraction d'un faisceau lumineux

Propagation linéaire d'une impulsion brève



Evolution de la fonction de Wigner lors de la propagation

Propagation d'une impulsion gaussienne dans la silice fondue



"Mise au point" d'une impulsion courte



- Dans l'infrarouge, par exemple CaF2 dispersif négatif et Ge dispersif positif.
- Mais dans le visible, tous les matériaux transparents sont dispersifs positifs



Dispositifs à dispersion négative

- Lignes de prismes
- Lignes de réseaux
- Miroirs "chirpés"
- Dispositifs de façonnage d'impulsion (cf cours #5)

Un dispositif à ϕ " négatif : la ligne de prismes



Un dispositif à φ["] négatif : le compresseur à réseaux



Un dispositif à φ" positif : l'étireur à réseaux



Une "ligne 4-f" est équivalente à un système de deux réseaux espacés d'une distance L, où L peut être positif ou négatif. On peut donc obtenir un ϕ " positif ou négatif.

5. Propagation non-linéaire d'une impulsion brève

Equation de propagation (enveloppe lentement variable)

 $\mathcal{E}(z,t) = A(z,t) \exp(i(k_0 z - \omega_0 t))$ 1D. linéaire $A(z,\omega) = A(0,\omega) \exp(ik_0''\omega^2/2)$ $\frac{\partial A(z,\omega)}{\partial z} = \frac{ik_0''\omega^2}{2}A(z,\omega)$ $\frac{\partial A(z,t)}{\partial z} + \frac{ik_0''}{2} \frac{\partial^2 A(z,t)}{\partial t^2} = 0$ **Equation de Schrödinger** $\left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{i}{2k_0} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right) + \frac{ik_0''}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) A(x, y, z, t) = 0$ 3D, linéaire

3D, non-linéaire

Equation de Schrödinger non-linéaire

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} - \frac{i}{2k_0} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\right) + \frac{ik_0''}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) A(x, y, z, t) = i\gamma |A(x, y, z, t)|^2 A(x, y, z, t)$$

Propagation non-linéaire d'une impulsion brève: Génération de continuum spectral $\partial A(z,t)$ $(1 + (0 - t))^2$

 $\frac{\partial A(z,t)}{\partial z} = i\gamma |A(z,t)|^2 A(z,t) \implies A(z,t) = A(0,t) \exp(i\gamma |A(0,t)|^2 z)$



Photo C. Le Blanc (LOA)

Propagation non-linéaire dans l'air



Expérience : A. Bonvalet (LOB)

Propagation non-linéaire d'un filament de lumière blanche



Projet Téramobile http://hplasim2.univ-lyon1.fr/recherche/lidar/teramobile.html

Soliton

Equation de Schrödinger non-linéaire

Cas d'un milieu à dispersion négative :

Solution :
$$u(z,t) = \frac{\exp(iz/2)}{\cosh t}$$

Propagation sans déformation : compensation entre effet Kerr et dispersion de vitesse de groupe.



John Scott Russell (1834)

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{ik_0''}{2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\right)A(z,t) = i\gamma |A(z,t)|^2 A(z,t)$$
$$\frac{\partial u}{\partial z} = i\left(\frac{1}{2}\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} + |u|^2 u\right)$$



http://www.ma.hw.ac.uk/solitons/press.html

Conclusion

- A spectre donnée, la phase spectrale gouverne le profil temporel d'une impulsion courte. L'impulsion la plus courte (limitée par transformée de Fourier) est associée à une phase spectrale nulle.
- Les représentations temps-fréquence (spectrogramme, Wigner) donnent une image d'une impulsion analogue à la portée musicale pour un signal sonore.
- La propagation linéaire d'une impulsion ultra-courte est analogue à la diffraction d'un faisceau lumineux et à la propagation d'un paquet d'ondes en mécanique quantique.
- Etireurs et compresseurs jouent le rôle de lentilles divergentes et convergentes. Pour un contrôle plus fin de la forme de l'impulsion, il est nécessaire d'utiliser des dispositifs de façonnage (cf cours #5).
- La propagation non-linéaire d'une impulsion brève peut conduire à l'élargissement de son spectre. Dans certains cas, non-linéarité et dispersion se compensent : c'est le régime soliton.

