

**Spectroscopie non-linéaire femtoseconde cohérente à
deux dimensions spectrales [Coherent femtosecond
nonlinear spectroscopy with two spectral dimensions]**

Nadia Belabas, Manuel Joffre

► **To cite this version:**

Nadia Belabas, Manuel Joffre. Spectroscopie non-linéaire femtoseconde cohérente à deux dimensions spectrales [Coherent femtosecond nonlinear spectroscopy with two spectral dimensions]. Journal de Physique 4, EDP Sciences, 2002, 12 (5), pp.393-395. 10.1051/jp4:20020205 . hal-00836885

HAL Id: hal-00836885

<https://hal-polytechnique.archives-ouvertes.fr/hal-00836885>

Submitted on 19 May 2014

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

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

Spectroscopie non-linéaire femtoseconde cohérente à deux dimensions spectrales

N. Belabas et M. Joffre

Laboratoire d'Optique et Biologie, INSERM U 451, UMR 7645 du CNRS, École Polytechnique, ENSTA, 91128 Palaiseau cedex, France

Résumé. La spectroscopie non-linéaire femtoseconde cohérente multidimensionnelle est une technique optique analogue à la résonance magnétique nucléaire multidimensionnelle. Elle repose sur l'utilisation d'impulsions femtosecondes et est démontrée ici dans le cas d'un processus de génération d'infrarouge par différence de fréquence dans un cristal non-linéaire avec accord de phase. Dans le domaine de l'infrarouge moyen, elle permet notamment la spectroscopie vibrationnelle de molécules et l'étude de nanostructures semiconductrices.

1. PRINCIPE

Une mesure de spectroscopie non-linéaire femtoseconde cohérente consiste à faire l'acquisition du champ émis par le biais de la réponse non-linéaire d'un système excité en régime femtoseconde. Les temps caractéristiques d'évolution des systèmes en phase condensée étant de l'ordre de la centaine de femtosecondes, on peut ainsi étudier une nanostructure semiconductrice, un polymère ou bien une molécule d'intérêt biologique avant que son état quantique ne soit brouillé par des processus de relaxation.

Le champ émis par une non-linéarité d'ordre n est une fonction de l'excitation et de la réponse non-linéaire, notée $\Xi^{(n)}(\omega_{\text{émission}}; \pm\omega_2, \dots, \pm\omega_{n+1})$ dans le domaine spectral. Il est lié à des caractéristiques fondamentales du système : structure de bandes, dynamique des transferts de charges, couplages vibrationnels, etc. L'enjeu de la spectroscopie multidimensionnelle [1-3] est de mesurer ce champ en fonction de n variables indépendantes de façon à pouvoir identifier dans l'émission les multiples contributions qui y sont agrégées. On aboutit ainsi à une connaissance plus complète du système étudié sous la forme d'une carte de $\Xi^{(n)}$ à n dimensions.

La figure 1 donne une illustration de ce principe dans le cas étudié expérimentalement ci-dessous : on s'intéresse à un processus de différence de fréquence ($n=2$) et le signal expérimental $S(\tau, T)$ est mesuré en fonction de deux variables temporelles indépendantes qui sont liées aux deux variables spectrales de la carte de $\Xi^{(2)}(\omega_1; \omega_2, -\omega_3)$ par une double transformée de Fourier.

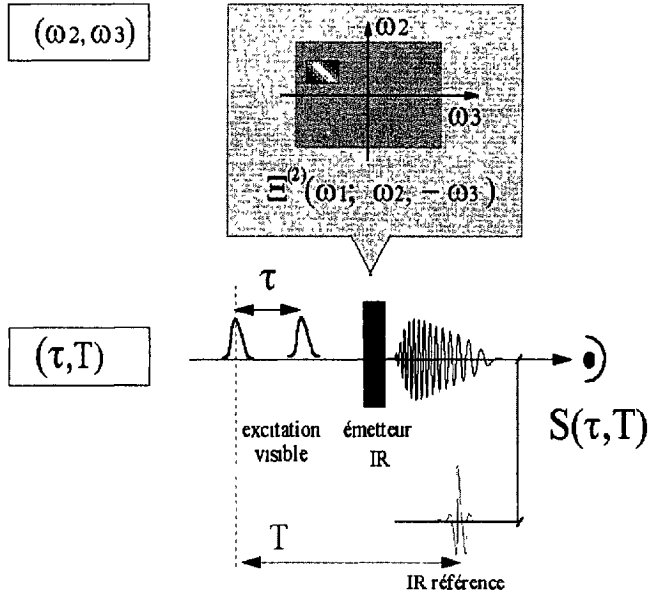


Figure 1. Principe de la spectroscopie non-linéaire à deux dimensions spectrales (ici, dans le cas d'une émission d'infrarouge IR par différence de fréquence $\omega_{\text{émission}} = \omega_1 = \omega_3 - \omega_2$)

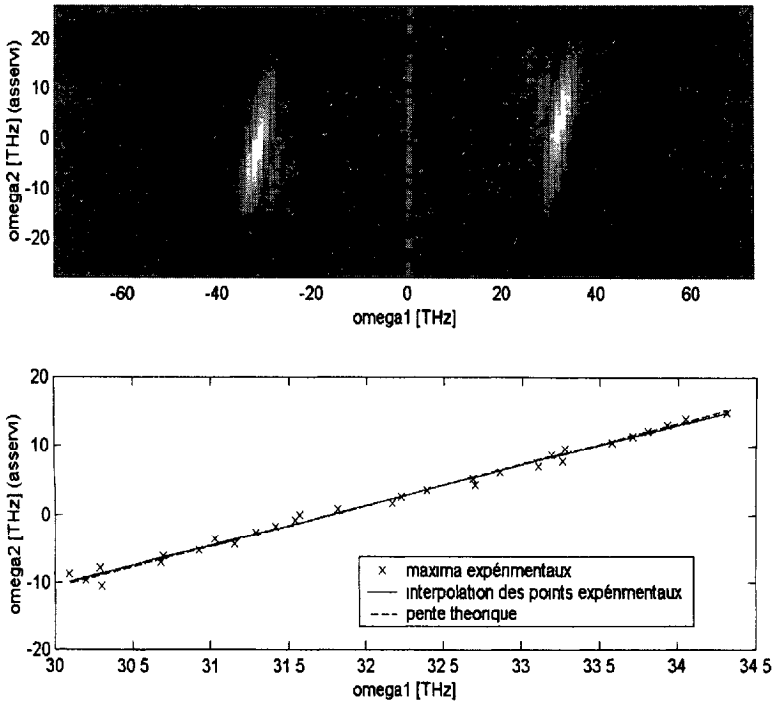


Figure 2. En haut - Double transformée de Fourier de $S(T, \tau)$ émis par un cristal d'AgGaS₂ (type I, $\phi = \theta = 45^\circ$) épais de 500 μm . En bas - Comparaison des maxima expérimentaux à la courbe d'accord de phase théorique (écart < 2.6%). Le repliement de la carte suivant ω_2 (variable conjuguée de τ) est dû à l'échantillonnage temporel choisi.

2. RESULTATS EXPERIMENTAUX

On travaille dans le domaine de l'infrarouge moyen (5-30 μm) qui est celui des transitions vibrationnelles des molécules. Pratiquement, on excite l'émetteur infrarouge à étudier avec une séquence (délai τ) de deux impulsions, dites visibles, issues d'un oscillateur Titane:Saphir produisant des impulsions d'une durée de 15 à 20 fs. Le champ émis est mesuré, en amplitude et en phase, par interférométrie temporelle (délai T) en utilisant une impulsion infrarouge large bande de référence [4]. Il faut noter que la validité de la mesure de la carte de carte de $\Xi^{(2)}$ obtenue par double transformée de Fourier du signal interférométrique $S(\tau, T)$ dépend de la parfaite calibration des deux axes temporels τ et T. Ceci demande, dans le domaine visible au moins, une parfaite maîtrise de l'interféromètre (verrouillage en phase des impulsions, mesure précise du délai τ).

Pour valider la technique et le montage expérimental, on a mesuré la réponse non-linéaire d'un cristal biréfringent (AgGaS_2) dont la réponse non-linéaire $\Xi^{(2)}(\omega_1; \omega_2, -\omega_3)$, dominée par la relation d'accord de phase, est connue. Les deux impulsions visibles excitatrices sont polarisées l'une suivant l'axe ordinaire et l'autre suivant l'axe extraordinaire du cristal. Le résultat fait apparaître la carte d'accord de phase du cristal non-linéaire, qui dépend du matériau utilisé, de l'épaisseur du cristal et du type du processus non-linéaire. Ce résultat en bon accord avec la théorie valide donc la technique d'optique non-linéaire à deux dimensions dans l'infrarouge.

Références

- [1] N L. Lepetit et M. Joffre, *Opt. Lett.* **21**, 564 (1996)
- [2] J. D. Hybl, A. W. Albrecht, S. M. Gallager-Faeder et D. M. Jonas, *Chem. Phys. Lett.* **297**, 307 (1998)
- [3] M. C. Asplund, M. T. Zanni et R. M. Hochstrasser, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **97**, 8219 (2000)
- [4] A. Bonvalet, J. Nagle, V. Berger, A. Migus, J.-L. Martin et M. Joffre, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4392-4395 (1996)