

UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD  
CENTRE D'ORSAY

# THÈSE

présentée pour obtenir  
Le TITRE de DOCTEUR EN SCIENCES

par  
Ivan LORGERÉ

Sujet  
CORRÉLATION DE CHAMP ET MÉLANGE À QUATRE ONDES

Soutenue le 17 juin 1994 devant la commission d'examen

Mr.	Jacques BAUDON	Rapporteur
Mme	Anne DÉBARRE	
Mr.	André DUCASSE	Rapporteur
Mr.	Michel DESAINTFUSCIEN	
Mr.	Jean-Louis LE GOUËT	
Mr.	Roland LEVY	



## MERCI

Catherine Bréchnignac m'a accueilli au laboratoire Aimé Cotton avec simplicité. J'ai été très touché de l'intérêt qu'elle a manifesté pour mon travail, de l'attention qu'elle a portée à mes projets futurs, et du soutien qu'elle m'a apporté pour leur réalisation. Je tiens à lui exprimer ici ma reconnaissance.

Avoir deux directeurs de thèse, ce n'est pas toujours facile. Surtout quand ce sont des personnalités humaines et scientifiques très différentes. Mais quand chacun y met du sien, la différence devient richesse. Anne Débarre et Jean Louis Le Gouët ont dirigé mon travail avec compétence, et n'ont pas ménagé leurs efforts pour que ma thèse soit terminée à temps. Les encouragements constants qu'ils m'ont prodigués, leurs conseils amicaux, sont des souvenirs chaleureux. Merci à vous deux.

La participation de Paul Tchénio à ce travail a été décisive pour son achèvement. Les nombreuses discussions scientifiques et personnelles que nous avons eues ensemble étaient toujours agréables et enrichissantes. Merci Paul.

L'expérience et les connaissances d'Alain Richard étaient indispensables pour mener à bien la réalisation du corrélateur. C'est toujours avec le sourire que je repense aux nombreuses heures que nous avons passées ensemble, à galérer pour mettre au point notre "machine". Merci Alain.

J'ai pris grand plaisir à travailler avec Hilde Fleurent et Heiki Sonajalg, au cours de leur séjour au laboratoire. Nos relations étaient amicales. Leur contribution à cette thèse est importante. Merci à eux deux.

Les figures de ce mémoire ont été réalisées par Bernard Desmarets. Vite fait bien fait. Chapeau Bernard. Et merci, sans oublier Jean Marc Sintès.

J'aurai été bien embarrassé si les spécialistes de la mécanique, de l'électronique, ... ne m'avait pas apporté leurs précieux services tout au long de ce travail. Et puis leur sympathie est vraiment agréable. Je vous remercie tous.

J'adresse mes remerciements à messieurs Baudon, Ducasse, Desaintfuscien, et Levy,

pour l'intérêt qu'ils ont manifesté pour cette étude en acceptant de faire partie du jury.

Mon visage s'éclaire de milles sourires quand je pense à tous les "jeunes" du laboratoire, avec lesquels nous avons partagés joies, doutes, peines et espoirs, sans oublier les gommes et le chocolat. J'ai une pensée toute particulière pour Jouda, mon amie, ma confidente.

Je remercie Agnès, ma compagne...

Enfin, je remercie ma famille et particulièrement ma mère, pour son soutien et son dévouement sans failles tout au long de ces trois années de travail.



## FIELD CORRELATION AND FOUR WAVE MIXING WITH INCOHERENT LIGHT

**Abstract.** This work presents a theoretical and experimental study of the application of field correlation and four wave mixing to time resolved spectroscopy and optical information processing.

The spectroscopic study is devoted to the problem of atomic lifetime measurement with incoherent light. Its motivation lies in the poor sensitivity of the methods experimented so far. It consists of a theoretical work, which analyses these methods, based on detection of the signal energy, and shows that correlation detection techniques are better adapted to incoherent light. We have experimented one of these correlation techniques and thus demonstrated the theoretical predictions.

The experiment has showed the need for a very sensitive correlation device. We have developed two correlators, working according to two different principles. The characterisation of these apparatus has brought out the factors limiting their sensitivity in an experimental situation, and determined their favourite domains of application.

The last part of this work is devoted to image storage in the absorption band of "permanent spectral hole burning" materials. We propose a new method for encoding the spectrally stored images, which must allow for video rate image access. This method makes use of the four wave mixing process and the field correlation operation as a temporal pattern recognition technique for image access. The thorough theoretical study we have performed demonstrate the validity of the method in a realistic experimental situation.



# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>7</b>
<b>2</b>	<b>Mesure et applications de la corrélation de champ</b>	<b>11</b>
2.1	Introduction . . . . .	11
2.2	Cohérence temporelle . . . . .	12
2.3	Comment mesurer la corrélation de champ? . . . . .	13
2.3.1	Principe de l'interféromètre de Michelson . . . . .	13
2.3.2	Les corrélateurs de type Michelson . . . . .	19
2.3.3	Franges d'interférence de deux ondes planes . . . . .	21
2.3.4	Les corrélateurs à franges spatiales . . . . .	24
2.3.5	Corrélation à quatre champs . . . . .	26
2.4	A quoi ça sert? . . . . .	27
2.4.1	Analyse d'une réponse linéaire . . . . .	27
2.4.2	Réfectométrie . . . . .	31
2.4.3	Imagerie à travers un milieu diffusant . . . . .	33
2.5	Conclusion . . . . .	38
<b>3</b>	<b>Deux corrélateurs d'amplitude</b>	<b>41</b>
3.1	Introduction . . . . .	41
3.2	Analyse de Fourier d'une figure d'interférence . . . . .	42
3.2.1	Mesure du contraste des franges . . . . .	42
3.2.2	Caractérisation expérimentale d'un corrélateur . . . . .	47
3.3	Interférences en quadratures . . . . .	51

3.3.1	Mesure de la corrélation . . . . .	51
3.3.2	Résultats expérimentaux . . . . .	55
3.4	Caractérisation d'un laser picoseconde . . . . .	56
3.4.1	Fonctionnement en bande large . . . . .	56
3.4.2	Fonctionnement en bande étroite . . . . .	60
3.5	Conclusion . . . . .	60
<b>4</b>	<b>Corrélation de champ et MQOD en spectroscopie résolue en temps en lumière incohérente</b>	<b>63</b>
4.1	Introduction . . . . .	63
4.2	Mélange à quatre ondes dégénérées avec des impulsions courtes . . . . .	65
4.3	Signal MQOD avec des impulsions longues . . . . .	75
4.4	Mesure du temps de déphasage homogène en lumière incohérente . . . . .	79
4.5	Mesure du temps de vie en lumière incohérente . . . . .	88
4.5.1	Mesures d'énergie . . . . .	90
4.5.2	Mesures de corrélation d'amplitude . . . . .	97
4.6	Conclusion . . . . .	105
<b>5</b>	<b>Corrélation de champ et MQOD appliqués au traitement optique de l'information</b>	<b>109</b>
5.1	Introduction . . . . .	109
5.2	"Hole-burning" spectral permanent . . . . .	110
5.3	MQOD en présence d'élargissement homogène: écho de photon . . . . .	114
5.4	MQOD et holographie spectrale . . . . .	118
5.4.1	Enregistrement holographique . . . . .	121
5.4.2	Reconnaissance de forme temporelle . . . . .	122
5.4.3	Mise en forme d'impulsions . . . . .	123
5.5	Holographie spectrale en lumière incohérente . . . . .	125
5.6	Adressage de l'information stockée dans le domaine spectral . . . . .	129
5.6.1	Adressage temporel: écho de photon . . . . .	129
5.6.2	Adressage spectral . . . . .	129

<b>TABLE DES MATIÈRES</b>	<b>3</b>
5.6.3 Difficultés liées aux méthodes d'adressage . . . . .	130
5.7 Adressage par codage de phase spectral . . . . .	131
5.8 Conclusion . . . . .	135
<b>6 Conclusion</b>	<b>137</b>
<b>A Aspects techniques du corrélateur à franges spatiales</b>	<b>139</b>
A.1 Les deux prototypes . . . . .	139
A.2 Le premier prototype . . . . .	141
A.3 Le nouveau prototype . . . . .	141
A.3.1 Eléments constitutifs . . . . .	141
A.3.2 Cadencement de la mesure . . . . .	142
<b>B Article 1</b>	<b>145</b>
<b>C Article 2</b>	<b>171</b>
<b>D Article 3</b>	<b>183</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>217</b>



# Liste des figures

2.1	Principe de l'interféromètre de Michelson . . . . .	14
2.2	Interférences de Michelson . . . . .	16
2.3	Principe d'un corrélateur de type Michelson . . . . .	18
2.4	Interférences de deux onde planes . . . . .	22
2.5	Analyse d'une réponse linéaire . . . . .	28
2.6	Réfectométrie . . . . .	32
2.7	Élongation d'une impulsion dans un milieu diffusant . . . . .	34
2.8	Holographie électronique . . . . .	36
3.1	Profil d'autocorrélation à travers une densité $\gamma$ et écart type du bruit sur la mesure . . . . .	49
3.2	Détection d'interférences en quadratures . . . . .	52
3.3	Profil d'autocorrélation du laser picoseconde en large-bande pour un temps d'exposition de (a) $10 \mu s$ , (b) $100 \mu s$ , (c) $1200 \mu s$ . . . . .	57
3.4	Profil d'autocorrélation du laser picoseconde en bande étroite . . . . .	58
4.1	Mélange à quatre ondes avec des impulsions courtes: diffraction sur le réseau de population . . . . .	70
4.2	Configuration "Boxcar" . . . . .	72
4.3	Diagramme d'interaction . . . . .	77
4.4	Mesure de $T_2$ , diagrammes de corrélation . . . . .	84
4.5	Mesure de $T_2$ , énergie du signal MQOD en fonction du décalage $T$ . . . . .	87
4.6	Mesure de $T_1$ , diagrammes d'interaction . . . . .	89

4.7	Mesure de $T_1$ d'après l'énergie du signal MQOD. Principaux diagrammes de corrélation quand les impulsions $E_2$ et $E_3$ sont corrélées. . . . .	91
4.8	Mesure de $T_1$ d'après l'énergie du signal MQOD. Principaux diagrammes de corrélation quand les impulsions $E_1$ et $E_3$ sont corrélées. . . . .	93
4.9	Diagrammes de corrélation d'une expérience pompe-sonde . . . . .	95
4.10	Expérience pompe-sonde. Variation de l'énergie de la sonde transmise par l'échantillon en fonction du décalage $T$ . . . . .	96
4.11	Détection de la corrélation entre le signal et une référence linéaire . . . . .	98
4.12	Diagrammes décrivant la corrélation du signal MQOD avec une référence linéaire . . . . .	98
4.13	Détection de la corrélation entre le signal MQOD et une référence MQOD .	100
4.14	Diagrammes décrivant la corrélation entre le signal MQOD et une référence MQOD . . . . .	100
4.15	Diagrammes décrivant la corrélation entre deux signaux MQOD . . . . .	103
4.16	Corrélation entre deux signaux MQOD en fonction du décalage $T$ . . . . .	103
5.1	Élargissement homogène et inhomogène . . . . .	112
5.2	"Hole burning" spectral . . . . .	112
5.3	Écho de photon . . . . .	116
5.4	MQOD en présence d'élargissement inhomogène avec des impulsions séparées dans le temps . . . . .	120
5.5	Mise en forme spectrale d'une impulsion . . . . .	124
5.6	Facteur de forme spectral appliqué à une impulsion incohérente. Exemple simple où la structure de l'impulsion et le facteur de forme sont des fonctions de phase. . . . .	126
5.7	Adressage des images par codage de phase spectral . . . . .	132
A.1	Schéma des corrélateurs . . . . .	140
A.2	Diagramme de cadencement . . . . .	143







# Chapitre 1

## Introduction

Le déroulement temporel du signal optique résultant de l'interaction d'une onde lumineuse avec un système atomique dépend des caractéristiques de l'onde excitatrice et des propriétés du système matériel. D'un point de vue spectroscopique, le processus d'interaction est une sonde pour déterminer les propriétés du système. Alternativement, le processus peut être envisagé comme un outil de traitement de l'information dont le signal est le véhicule. Mon travail s'inscrit dans ce double cadre. Je me suis intéressé à l'utilisation du processus de mélange à quatre ondes dégénérées (MQOD) pour la mesure de temps de vie atomique et le stockage optique d'information. La corrélation de champ joue un rôle central dans ce travail.

La corrélation de champ est connue comme outil d'analyse temporelle des processus trop rapides pour les détecteurs électroniques actuels. L'opération est généralement effectuée à l'aide d'un interféromètre. Dans une expérience type, on enregistre par échantillonnage la fonction de corrélation entre le signal et une réplique de l'impulsion excitatrice qui lui a donné naissance. On observe ainsi le déroulement temporel du signal avec une résolution déterminée par le temps de cohérence du champ exciteur, c'est à dire l'inverse de sa largeur spectrale, indépendamment de sa durée. Cette technique est une alternative à l'analyse par corrélation d'intensité, dont la résolution temporelle est fixée par la durée de l'impulsion excitatrice. La corrélation de champ permet de travailler avec des impulsions larges-bandes de lumière incohérente, plus faciles à mettre en œuvre que des impulsions

courtes. Grâce au développement de sources laser incohérentes compactes et peu onéreuses, les corrélateurs d'amplitude ont suscité récemment un regain d'intérêt dans le domaine de la physique appliquée. Ils sont utilisés en réflectométrie pour étudier les propriétés de systèmes optiques à l'échelle micrométrique, tels que les dispositifs d'optique intégrée ou l'appareil oculaire humain [1,2].

Un interféromètre n'est pas nécessaire pour effectuer la corrélation de deux champs. Cette opération est inhérente au processus de mélange à quatre ondes. Dans ce processus d'interaction non-linéaire, trois champs lumineux de même fréquence excitent un système atomique pour produire un signal de même fréquence, qui constitue la quatrième onde. La première excitation construit une cohérence atomique que le deuxième champ transforme en un réseau spatial de population. Le signal résulte de la diffraction de la troisième impulsion sur ce réseau. Le réseau construit par les deux premiers champs matérialise la corrélation entre ces deux champs, effectuée par le processus MQOD. Le mélange à quatre ondes permet plus généralement de réaliser la corrélation entre deux des trois champs excitateurs. Cette corrélation interne au processus, utilisée comme porte optique, est exploitée pour la mesure du temps de relaxation  $T_2$  de la cohérence atomique en lumière incohérente [3,4,5,6]. La corrélation interne au mélange à quatre ondes est également mise à profit pour observer la relaxation des populations atomiques en lumière incohérente [7,8]. Cependant, la sensibilité de cette observation est faible et ne permet pas une mesure fiable du temps de vie  $T_1$  des populations.

Pour la mesure de  $T_1$  en lumière incohérente, j'ai développé une méthode originale qui, s'appuyant sur un dispositif interférométrique, diffère cependant des techniques mentionnées plus haut puisqu'elle effectue la corrélation simultanée du signal MQOD avec les trois champs excitateurs [9]. Cette autocorrélation multidimensionnelle est effectuée de manière externe à l'aide d'un corrélateur. L'expérience a été limitée par la faible sensibilité du corrélateur disponible. J'ai réalisé un nouvel appareil dont la sensibilité est 400 fois supérieure à celle du précédent.

L'opération de corrélation interne du processus MQOD, utilisée pour la reconnaissance de forme temporelle, ouvre des perspectives pour le traitement optique de l'information [10, 11]. Si on excite un matériau possédant la propriété de "persistent spectral hole burning" (PSHB), le spectre de l'excitation s'inscrit de façon permanente dans le matériau, sous la forme d'une modulation de la bande d'absorption inhomogène du matériau. Cette propriété peut être exploitée pour réaliser des mémoires d'images haute-densité, utilisant la dimension spectrale comme quatrième dimension de stockage [12]. Dans les travaux déjà réalisés, la lecture des images stockées est lente car elle implique le balayage de la fréquence d'un laser ou le déplacement mécanique d'une ligne à retard optique. Je propose dans ce mémoire une nouvelle approche, qui doit permettre d'atteindre la cadence vidéo. Dans cette approche, l'accès aux images est effectuée par une technique de reconnaissance de forme temporelle, qui repose sur l'opération de corrélation interne du processus MQOD.

Le mémoire est organisé comme suit. Le chapitre 2 commence par rappeler les notions fondamentales sur la cohérence temporelle et la corrélation de champ en optique. Il passe ensuite en revue les principales méthodes de mesure de la corrélation de champ avant de décrire ses applications simples telles que l'analyse d'une réponse linéaire, la réflectométrie et l'imagerie à travers un milieu diffusant.

J'examine dans le chapitre 3 deux méthodes de mesure de la corrélation d'amplitude, en mettant l'accent sur leur sensibilité comparée. Cette étude s'appuie sur les résultats expérimentaux obtenus avec les appareils réalisés d'après ces méthodes. Je présente également les résultats de la caractérisation d'un laser picoseconde effectuée avec l'un de ces corrélateurs.

Le chapitre 4 considère le problème de la mesure de  $T_1$  par mélange à quatre ondes en lumière incohérente. J'y décris le processus MQOD et les méthodes de mesure déjà expérimentées. J'analyse ensuite les raisons de l'inadéquation de ces techniques et je présente la méthode de corrélation que j'ai développée.

Le chapitre 5 est consacré à l'utilisation du mélange à quatre ondes et des matériaux PSHB pour le stockage et le traitement optique de l'information. Je présente les diverses opérations de traitement réalisables avec le processus MQOD, et les différentes approches déjà étudiées pour adresser les informations stockées dans un matériau PSHB, avant de décrire la méthode d'adressage par corrélation que je propose.

Le chapitre 6 conclut mon travail en examinant ses prolongements possibles.







# Chapitre 2

## Mesure et applications de la corrélation de champ

### 2.1 Introduction

Ce chapitre décrit les principales méthodes de mesure de la corrélation de champ en optique et propose une courte revue des domaines où cette méthode d'analyse temporelle a trouvé récemment des applications. La section 2.2 donne les notions élémentaires sur la cohérence temporelle en optique. La section 2.3 s'intéresse aux méthodes de mesure de la corrélation d'amplitude. On rappelle le principe de l'interféromètre de Michelson avant de décrire les corrélateurs dérivés de ce dispositif. Selon la même logique, on analyse la figure d'interférence spatiale formée par deux ondes planes afin d'introduire les corrélateurs basés sur l'analyse de ces interférences. Cette section se termine par un court paragraphe qui considère la mesure de la corrélation entre des champs qui n'interfèrent pas. Les applications récentes simples des mesures de corrélation de champ sont décrites dans la section 2.4. Cette revue inclue l'analyse d'une réponse linéaire, la réflectométrie et l'imagerie à travers les milieux diffusants. La section 2.5 résume ce chapitre introductif.

## 2.2 Cohérence temporelle

On considère une vibration lumineuse que l'on décrit par son champ électrique classique

$$E(t) = \tilde{E}(t) e^{2i\pi\nu t} + c.c. \quad (2.1)$$

Dans cette expression,  $\tilde{E}(t)$  est l'amplitude complexe du champ. On fait l'hypothèse que cette fonction varie lentement à l'échelle de la période optique  $1/\nu$ .

La fonction d'autocorrélation de la vibration lumineuse est définie comme

$$g(T) = \int \tilde{E}(t) \tilde{E}^*(t - T) dt / \int |\tilde{E}(t)|^2 dt \quad (2.2)$$

La largeur caractéristique de cette fonction, définie comme

$$\tau_c = \int g(t) dt \quad (2.3)$$

est le temps de cohérence de la vibration. C'est le temps caractéristique de l'évolution de la phase et de l'amplitude du champ, c'est à dire de son amplitude complexe. Dans le cadre de l'hypothèse de l'enveloppe lentement variable, le temps de cohérence est très supérieur à la période des oscillations optique:

$$\tau_c \gg 1/\nu \quad (2.4)$$

Le spectre normalisé de la vibration lumineuse est défini comme la transformée de Fourier de la fonction d'autocorrélation:

$$s(\nu) = \int g(t) e^{-2j\pi\nu t} dt \quad (2.5)$$

Réciproquement, la fonction d'autocorrélation est déterminée par la transformée de Fourier inverse du spectre. En conséquence, le temps de cohérence du champ coïncide avec l'inverse de sa largeur spectrale:

$$\tau_c \sim 1/\Delta\nu \quad (2.6)$$

Il s'ensuit que les inégalités  $\tau_c\nu \gg 1$  et  $\Delta\nu/\nu \ll 1$  sont équivalentes. Faire l'hypothèse de l'enveloppe lentement variable équivaut donc à considérer que la vibration lumineuse est quasi-monochromatique.

De manière plus générale, on définit la fonction de corrélation croisée de deux champs  $E_1(t)$  et  $E_2(t)$  comme l'intégrale

$$g_{12}(T) = \int \tilde{E}_1(t)\tilde{E}_2^*(t-T)dt / \left( \int |\tilde{E}_1(t)|^2 dt \int |\tilde{E}_2(t)|^2 dt \right)^{1/2} \quad (2.7)$$

Cette quantité compare les amplitudes des champs  $E_1(t)$  et  $E_2(t-T)$ . En général, l'un des champs est le signal émis par un système matériel en réponse à une excitation lumineuse et l'autre champ, qui joue le rôle de référence, est la réplique décalée dans le temps du champ excitateur. La fonction de corrélation croisée extrait alors du signal la partie qui est restée cohérente avec l'excitation.

## 2.3 Comment mesurer la corrélation de champ?

Les interférences lumineuses permettent de visualiser et de mesurer la corrélation de champ. L'interféromètre de Michelson est un dispositif simple dans son principe qui illustre bien la relation entre les interférences lumineuses et la cohérence temporelle de la lumière.

### 2.3.1 Principe de l'interféromètre de Michelson

La figure 2.1 présente un schéma de principe du dispositif. Une onde plane est dirigée vers la séparatrice  $S$ . Celle-ci divise l'onde en deux faisceaux d'égale énergie, qui vont se réfléchir sur les miroirs  $M_1$  et  $M_2$  respectivement. En retour des miroirs, les deux faisceaux rencontrent de nouveau la séparatrice qui les recombine en un seul faisceau dirigé vers le photodétecteur.

On représente l'onde à l'entrée de l'interféromètre par son champ électrique  $E(t)$ . L'onde incidente sur le détecteur est décrite par la somme des deux champs  $E(t)$  et  $E(t-T)$  où  $T$  est le décalage temporel entre les faisceaux provenant des deux bras  $SM_1$  et  $SM_2$  de l'interféromètre. Le décalage  $T$  est dû à la différence  $\delta$  des chemins optiques dans les deux bras de l'interféromètre

$$T = \delta/c \quad (2.8)$$

où  $c$  est la célérité de la lumière dans le vide.

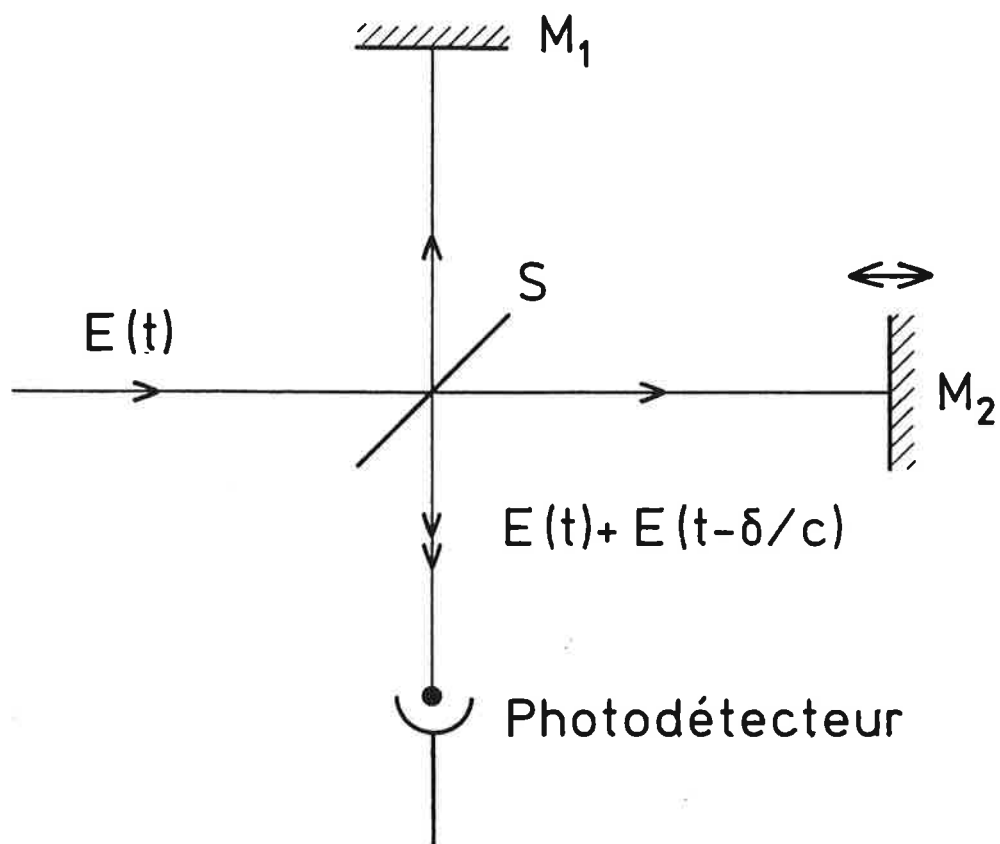


Figure 2.1: Principe de l'interféromètre de Michelson

Le signal électrique fourni par le photodétecteur est proportionnel à l'énergie lumineuse qu'il reçoit pendant un intervalle de temps au moins égal à son temps de réponse. Cet intervalle est toujours très long devant tous les temps caractéristiques de l'évolution du champ. Par conséquent, on écrit l'énergie reçue par le détecteur sous la forme simple

$$W = \int |\tilde{E}(t) + \tilde{E}(t - \delta/c)|^2 dt \quad (2.9)$$

Le détecteur réalise une moyenne temporelle de l'énergie de l'onde.

L'énergie  $W$  dépend de l'état d'interférence des deux ondes  $E(t)$  et  $E(t - \delta/c)$  et de leur corrélation mutuelle. Elle peut se mettre sous la forme

$$W(\delta) = 2W_0 + 2W_0 |g(\delta/c)| \cos(2\pi\delta/\lambda + \Phi(\delta/c)) \quad (2.10)$$

où  $2W_0$  est la somme des énergies des deux champs interférents,  $|g(\delta/c)|$  et  $\Phi(\delta/c)$  sont respectivement le module et la phase de la fonction d'autocorrélation, et  $\lambda$  est la longueur d'onde de la vibration lumineuse. Dans cette expression, le dernier terme est le terme d'interférence. L'état d'interférence est décrit par la valeur du cosinus. Il varie entre les valeurs  $+1$  et  $-1$  correspondant respectivement à des interférences constructives et destructives. Des interférences constructives se traduisent par un maximum d'énergie

$$W_{max}(\delta) = 2W_0(1 + |g(\delta/c)|) \quad (2.11)$$

Des interférences destructives résultent en un minimum d'énergie

$$W_{min}(\delta) = 2W_0(1 - |g(\delta/c)|) \quad (2.12)$$

La corrélation des deux champs détermine l'amplitude du terme d'interférence.

Dans l'espace de la différence de marche, la fonction d'autocorrélation évolue à l'échelle de la longueur de cohérence  $l_c$  du champ, définie par

$$l_c = c\tau_c \quad (2.13)$$

L'hypothèse de l'enveloppe lentement variable s'exprime par l'inégalité

$$l_c \gg \lambda \quad (2.14)$$

La fonction de corrélation évolue lentement à l'échelle de la longueur d'onde.

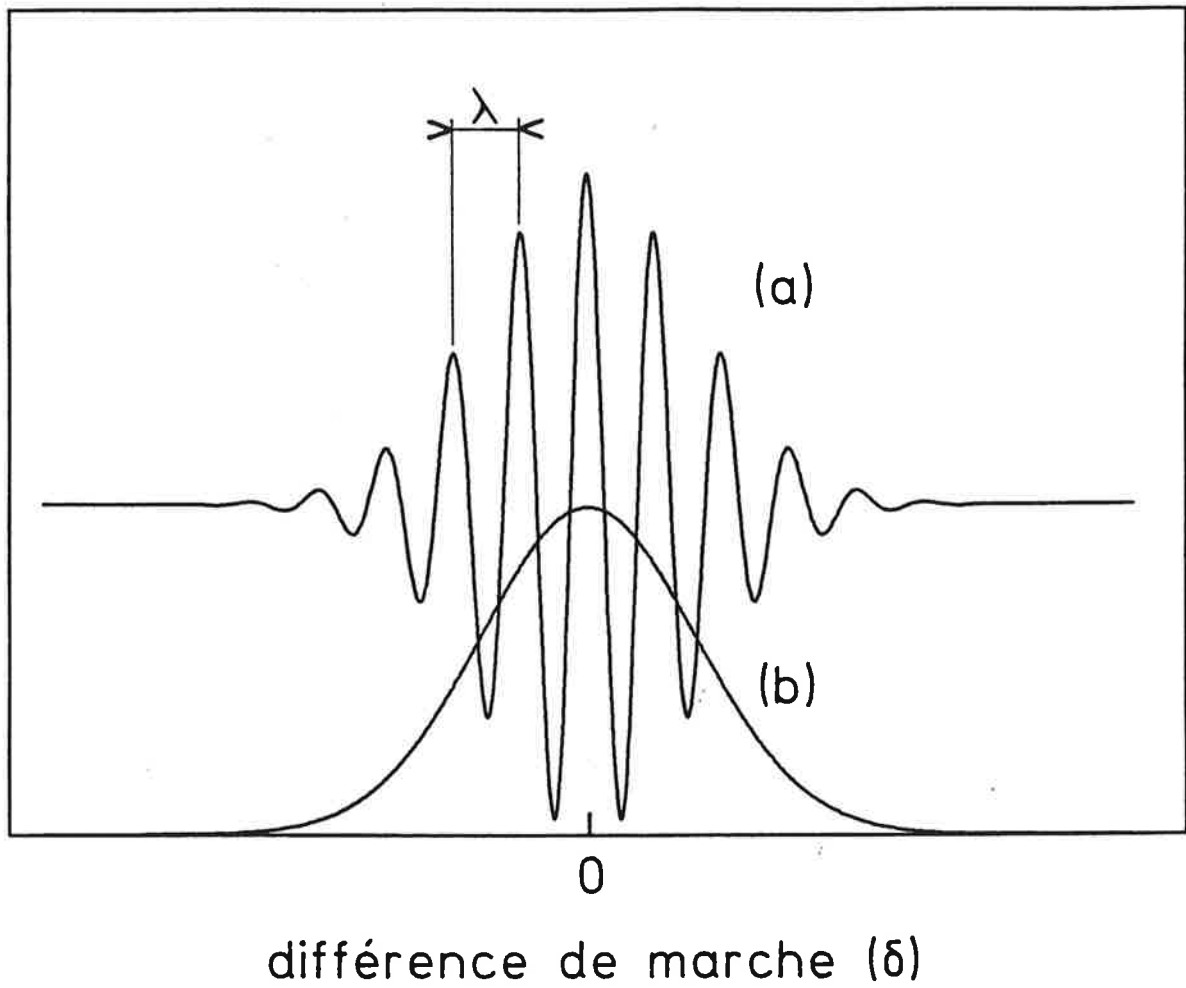


Figure 2.2: Interférences de Michelson

Si on parcourt l'espace de la différence de marche, l'énergie sur le détecteur oscille entre les valeurs  $W_{max}(\delta)$  et  $W_{min}(\delta)$  avec une période  $\lambda$  de par la variation de l'argument  $2\pi\delta/\lambda$ . Ces oscillations sont modulées en amplitude et en phase par la variation lente des fonctions  $|g(\delta/c)|$  et  $\Phi(\delta/c)$  respectivement. L'énergie décrit des franges d'interférence (figure 2.2.a), dont le contraste, défini comme le rapport

$$C = (W_{max} - W_{min}) / (W_{max} + W_{min}) \quad (2.15)$$

est entièrement déterminé par le module de la fonction d'autocorrélation:

$$C(\delta) = |g(\delta/c)| \quad (2.16)$$

Au voisinage de la différence de marche nulle, la corrélation et le contraste des franges sont proches de leur valeur maximale. L'énergie est égale à zéro quand les interférences sont destructives, à  $4W_0$  quand les interférences sont constructives. Au fur et à mesure que la différence de marche grandit devant la longueur d'onde, le contraste des franges diminue, les modulations sont de moins en moins profondes. A la limite où  $\delta$  est très supérieur à la longueur de cohérence du champ, les deux vibrations lumineuses mélangées sur le détecteur sont complètement décorrélées et ne peuvent plus interférer. L'énergie reçue par le détecteur est alors simplement égale à  $2W_0$ . La diminution du contraste des franges correspond à la décorrélation progressive des champs  $E(t)$  et  $E(t - \delta/c)$  lorsque le décalage  $\delta/c$  augmente. La forme de l'enveloppe des franges est donnée par le module de la fonction d'autocorrélation du champ  $E(t)$  (figure 2.2.b). Cette propriété fait de l'interféromètre de Michelson un autocorrélateur. La section suivante décrit les corrélateurs dérivés de cet interféromètre.

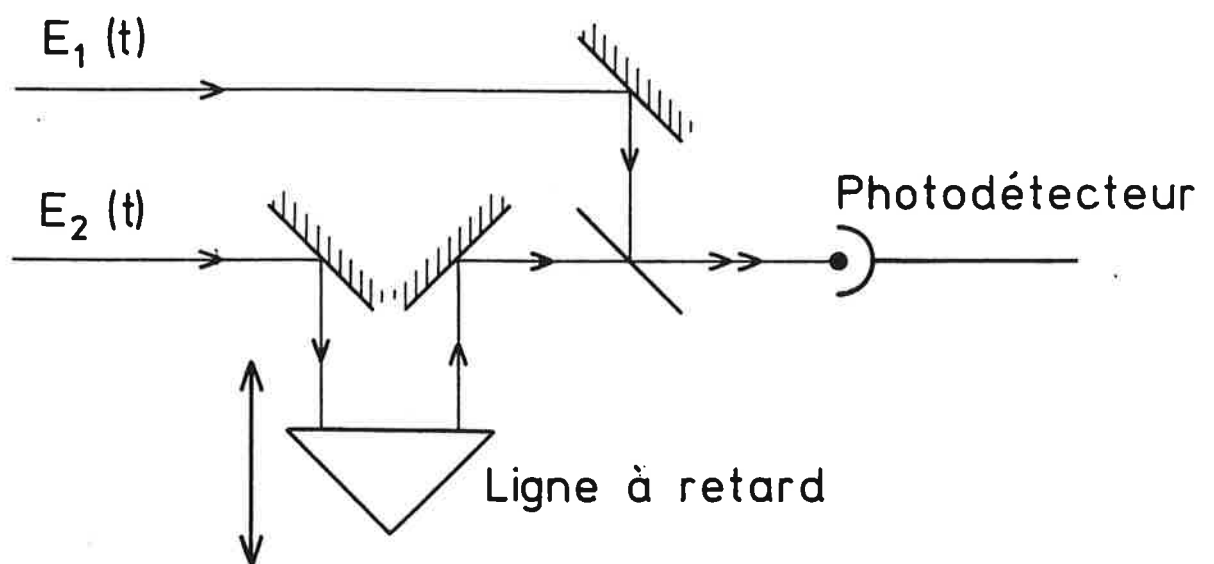


Figure 2.3: Principe d'un corrélateur de type Michelson



### 2.3.2 Les corrélateurs de type Michelson

Une simple modification de la géométrie de l'interféromètre de Michelson en fait un dispositif qui permet de visualiser la fonction de corrélation croisée entre deux champs  $E_1(t)$  et  $E_2(t)$ . La figure 2.3 donne un schéma de principe de ces corrélateurs. Les deux champs  $E_1(t)$  et  $E_2(t)$ , qui représentent deux ondes planes de même polarisation, pénètrent dans le corrélateur par deux voies distinctes. Dans un des bras, une ligne à retard optique permet de faire varier la longueur du chemin optique dans ce bras. Une séparatrice combine les deux ondes et les dirige vers un photodétecteur unique.

La vibration lumineuse sur le détecteur est représentée par la somme des deux champs  $E_1(t)$  et  $E_2(t - \delta/c)$ . L'énergie correspondante s'écrit

$$W(\delta) = W_1 + W_2 + 2(W_1 W_2)^{1/2} |g_{12}(\delta/c)| \cos(2\pi\delta/\lambda + \Phi_{12}(\delta/c)) \quad (2.17)$$

Cette expression est une généralisation de celle donnée dans le paragraphe précédent (éq. 2.10).  $W_1$  et  $W_2$  représentent l'énergie des champs  $E_1(t)$  et  $E_2(t)$  respectivement. Les fonctions  $|g_{12}(\delta/c)|$  et  $\Phi_{12}(\delta/c)$  sont respectivement le module et la phase de la fonction de corrélation croisée des deux champs. Le paragraphe suivant examine les différentes techniques mises en œuvre pour mesurer la corrélation à partir d'un dispositif interférentiel de ce type.

#### Démodulation et détection hétérodyne

Les corrélateurs à démodulation sont techniquement les plus simples. Le principe de la mesure est le suivant. On déplace à vitesse constante  $v$  la ligne à retard optique. Le signal donné par le détecteur décrit une fonction sinusoïdale du temps. Il est modulé à la fréquence  $\Delta f = 2v/\lambda$  où le facteur 2 rend compte du fait qu'un déplacement de longueur  $x$  de la ligne à retard correspond à une différence de marche  $2x$  entre les deux bras de l'interféromètre. La mesure de la corrélation consiste alors à démoduler le signal du détecteur. C'est un problème bien connu en électronique. Avec cette technique, la phase de la modulation est inconnue. On extrait l'enveloppe du signal modulé, c'est à

dire le module  $|g_{12}(\delta/c)|$  de la fonction de corrélation. On peut échantillonner la fonction  $|g_{12}(\delta/c)|$  à cadence élevée [11,1].

Une technique de mesure plus sophistiquée consiste à utiliser un système de détection synchrone (on dit aussi hétérodyne) [11,12]. Dans ce cas, en plus du déplacement du miroir, qui module le signal du détecteur à la fréquence  $\Delta f$ , un dispositif généralement piezo-électrique module la phase de ce signal, à la fréquence  $f \gg \Delta f$ . Le système de détection synchrone suit les variations de phase et d'amplitude de la composante du signal à la fréquence  $f + \Delta f$ , c'est à dire les variations des fonctions  $|g_{12}(\delta/c)|$  et  $\Phi_{12}(\delta/c)$ . Le signal issu de la détection synchrone peut alors être moyenné sur un temps long, permettant d'obtenir un rapport signal sur bruit plus élevé qu'avec un système de démodulation simple. Le gain en rapport signal sur bruit est obtenu au détriment de la cadence d'échantillonnage. Par ailleurs, cette technique, pour être efficace, requiert une stabilité mécanique du montage à l'échelle de la longueur d'onde (stabilité interférométrique).

Dans ces technique, la mesure est dynamique. Le principe même de la mesure repose sur le balayage de la différence de marche entre les deux voies de l'interféromètre. En conséquence, ces techniques ne sont pas adaptées à la mesure de la corrélation à décalage temporel fixe.

### Interférences en quadrature

Il est possible de mesurer la corrélation  $|g_{12}(\delta/c)|$  en statique, c'est à dire sans avoir à faire varier la différence de marche, et de s'affranchir du problème du contrôle de la phase  $\Phi_{12}(\delta/c)$ . Pour cela, au lieu de détecter l'état d'interférence sur un seul détecteur, on peut mesurer sur deux détecteurs identiques les deux quadratures des interférences des deux champs. La somme des carrés des deux signaux d'interférence mesure la corrélation  $|g_{12}(\delta/c)|^2$  indépendamment de la phase  $\Phi_{12}(\delta/c)$  et sans qu'il soit nécessaire de faire varier la différence de marche. Nous avons expérimenté un prototype de corrélateur fonctionnant selon ce principe, qui est aussi celui du sigma-mètre développé par Juncar et Pinard [13]. Le chapitre 3 détaille les caractéristiques de ce prototype.

### 2.3.3 Franges d'interférence de deux ondes planes

La figure d'interférence formée par deux ondes planes de vecteurs d'onde non-colinéaires est constituée d'une succession de franges rectilignes sombres et brillantes. La mesure du contraste des franges fournit la corrélation des deux champs interférents. Pour décrire le principe d'un corrélateur à franges spatiales, on considère le dispositif schématisé sur la figure 2.4.a. Les deux champs  $E_1(t)$  et  $E_2(t)$ , de même polarisation, pénètrent dans le corrélateur sous la forme d'onde plane par deux voies distinctes, dont l'une contient une ligne à retard optique. Deux miroirs orientent les deux faisceaux selon deux directions  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  non colinéaires. La figure d'interférence se forme dans la région de l'espace où les deux faisceaux se recouvrent. Dans cette région, le champ électrique est la somme des deux champs  $E_1(\vec{r}; t)$  et  $E_2(\vec{r}; t)$  avec

$$E_1(\vec{r}; t) = \tilde{E}_1(t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r}/2\pi\nu) e^{i(2\pi\nu t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} + c.c. \quad (2.18)$$

$$E_2(\vec{r}; t) = \tilde{E}_2(t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r}/2\pi\nu - \delta_0/c) e^{i(2\pi\nu t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r} - 2\pi\delta_0/\lambda)} + c.c. \quad (2.19)$$

Dans cette expression,  $\delta_0$  est la différence de marche entre les deux champs aux points  $\vec{r}$  d'abscisse  $x = 0$ , l'axe  $x$  étant défini par le vecteur  $\vec{K} = \vec{k}_1 - \vec{k}_2$ . La différence de marche à l'origine,  $\delta_0$ , dépend de la position de la ligne à retard.

#### Lecture directe

Supposons que la ligne à retard soit ajustée de manière à ce que la différence de marche  $\delta_0$  soit nulle. La distribution d'énergie résultant des interférences entre les deux champs, observée le long de l'axe  $x$  est alors décrite par l'expression

$$W(x) = W_1 + W_2 + 2(W_1 W_2)^{1/2} |g_{12}(Kx/2\pi\nu)| \cos(Kx + \Phi_{12}(Kx/2\pi\nu)) \quad (2.20)$$

avec les mêmes notations que dans les paragraphes précédents, et où  $K = |\vec{K}|$ . Cette expression n'est autre que celle donnée par l'équation 2.17 pour décrire les interférences de Michelson, dans laquelle on a exprimé le fait que la différence de marche entre les deux champs interférents varie maintenant en fonction de la position  $x$  du point d'observation, sans que l'on ait à déplacer la ligne à retard. Le long de la direction du vecteur  $\vec{K}$ , on

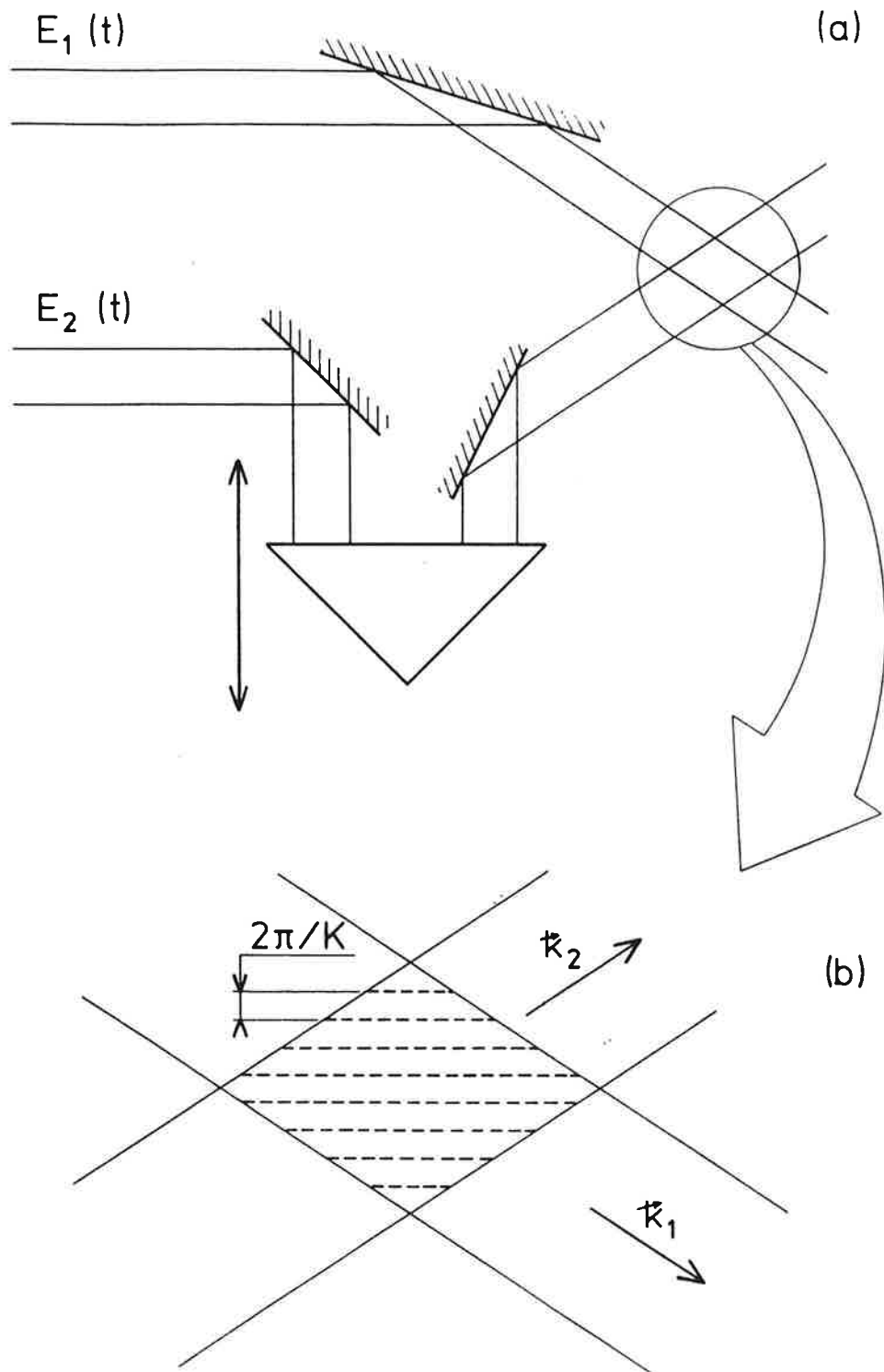


Figure 2.4: Interférences de deux onde planes

observe une succession de minima et maxima d'énergie, décrivant des franges d'interférence de période  $2\pi/K$ , correspondant à la variation de l'argument  $Kx$  (figure 2.4.b). D'une frange à la suivante, la différence de marche varie d'une longueur d'onde. Les franges sont modulées en phase et en amplitude par la variation lente de la fonction de corrélation  $g_{12}(Kx/2\pi\nu)$  le long de la figure d'interférence. On observe dans le domaine spatial les mêmes franges qui sont observées avec un interféromètre de type Michelson en déplaçant la ligne à retard. Par conséquent, pour mesurer l'amplitude  $|g_{12}(Kx/2\pi\nu)|$  de la fonction de corrélation, il suffit de lire le contraste des franges le long de la figure d'interférence. Certains corrélateurs fonctionnent selon ce principe. Ils sont limités par les caractéristiques du système d'analyse, à la mesure de fonctions de corrélation dont l'étendue n'est pas trop grande devant la longueur d'onde.

### Échantillonnage

Pour mesurer des fonctions de corrélation de grande largeur, on analyse une figure d'interférence contenant un nombre  $N$  de franges tel que la variation  $N\lambda$  de la différence de marche le long de la figure soit petite devant l'étendue de la fonction de corrélation. La corrélation peut alors être considérée comme constante sur toute la figure d'interférence. La distribution d'énergie le long de cette figure est décrite par l'expression

$$W(x) = W_1 + W_2 + 2(W_1W_2)^{1/2}|g_{12}(\delta_0/c)| \cos(Kx + 2\pi\delta_0/\lambda + \Phi_{12}(\delta_0/c)) \quad (2.21)$$

où  $|g_{12}(\delta_0/c)|$  et  $\Phi_{12}(\delta_0/c)$  sont les valeurs moyennes du module et de la phase de la fonction de corrélation le long de la figure. Par conséquent, la mesure du contraste des franges fournit la corrélation  $|g_{12}(\delta_0/c)|$ . Afin de mesurer la fonction de corrélation, on procède par échantillonnage en faisant varier la différence de marche à l'aide de la ligne à retard. La résolution temporelle de ce type d'analyse est limitée par  $N\lambda/c$ .

La section suivante examine les différentes techniques mises en œuvre pour mesurer le contraste de la figure d'interférence.

### 2.3.4 Les corrélateurs à franges spatiales

#### Mesure par échantillonnage

Ce sont les plus nombreux des corrélateurs à franges spatiales. La technique la plus triviale pour mesurer le contraste de la figure d'interférence consiste à enregistrer cette figure à l'aide d'une barrette de photodétecteurs pour ensuite extraire le terme d'interférence par une analyse de Fourier numérique. La distribution d'énergie sur la barrette est donnée par l'équation 2.21. Le spectre de Fourier de cette distribution est défini comme

$$\tilde{W}(p) = \left| \int W(x) e^{ipx} dx \right| \quad (2.22)$$

Il est constitué de deux pics. Un à la fréquence nulle correspondant à l'énergie moyenne  $W_1 + W_2$  sur la barrette, et l'autre à la fréquence  $K$ , correspondant au terme d'interférence. La composante à la fréquence  $K$  est proportionnelle au contraste des franges d'interférence et donc au module de la corrélation recherchée. Une partie de mon travail a été consacré à la réalisation d'un corrélateur fonctionnant selon ce principe. Parmi ses caractéristiques remarquables, citons sa sensibilité élevée et sa grande souplesse d'utilisation (cf chapitre 3).

L'illumination d'un matériau non linéaire par une figure d'interférence peut y inscrire un réseau de diffraction dont le pouvoir diffractant est proportionnel au contraste de la distribution spatiale d'éclairement. L'énergie du signal résultant de la diffraction d'un faisceau sonde sur ce réseau est alors proportionnelle au contraste des franges et fournit une mesure de la corrélation des deux champs interférents. D'après le paragraphe précédent, le contraste des franges est proportionnel à la composante de Fourier à la fréquence  $K$  de la distribution spatiale d'éclairement. La technique équivaut donc à une lecture optique de la composante de Fourier à la fréquence  $K$  du réseau de diffraction.

Ce procédé demande à priori trois faisceaux lumineux pour être mis en œuvre. Cependant, le faisceau sonde peut être l'un des deux faisceaux interférents. On parle alors d'auto-diffraction ou de mélange à deux ondes.

Pour que l'efficacité de diffraction du réseau soit proportionnelle à la corrélation des deux champs, les temps caractéristiques du matériau non-linéaire doivent vérifier les inégalités

$$T_2 \ll \tau_c \ll T_1 \quad (2.23)$$

où  $T_2$  est le temps de déphasage associée à la transition et  $T_1$  la durée de vie des populations. Par ailleurs, l'intervalle de temps entre la mesure de deux échantillons successifs de la fonction de corrélation doit être supérieur à la durée de vie du réseau. La technique manque donc de souplesse.

La sensibilité de la mesure réalisée par lecture optique dépend du  $\chi^{(3)}$  caractéristique de la non-linéarité dans le matériau utilisé. Elle est presque toujours inférieure à celle obtenue avec la technique d'analyse de Fourier.

Les premiers corrélateurs à lecture optique du contraste utilisaient comme matériau des colorants en solution [16]. L'inconvénient de ce type de matériau tient au fait que le réseau de diffraction se relaxe sur des temps assez courts. En particulier, le temps de désorientation des molécules de colorant est de l'ordre de la centaine de picosecondes, ce qui limite le domaine d'utilisation de ces corrélateurs.

Un groupe Brésilien a développé la technique en utilisant des verres dopés avec des éléments semi-conducteurs [17]. Ces matériaux possèdent un  $\chi^{(3)}$  élevé ( $\sim 10^{-9} esu$ ), donnant à la technique une bonne sensibilité [18]. Cependant, les mécanismes de la non-linéarité ne sont pas clairement élucidés. La dynamique de sa relaxation et son efficacité dépendent fortement de la longueur d'onde et de la puissance de l'excitation [19]. Par conséquent, l'utilisation de ces matériaux est délicate.

Récemment, des mesures de corrélation ont été effectuées en utilisant la diffusion Raman stimulée [20]. La technique consiste à mélanger dans une cellule Raman deux ondes  $E_{laser}(t)$  et  $E_{stokes}(t)$  pour produire un signal de diffusion Raman anti-Stokes  $E_{as}(t)$ . L'énergie de ce dernier mesure la corrélation entre les champs  $E_{laser}(t)$  et  $E_{stokes}(t)$ . En plus des temps de relaxation relativement longs du  $\chi_{Raman}^{(3)}$ , cette technique présente l'avantage de produire

un signal à une fréquence différente de celles des deux champs excitateurs. On peut alors utiliser des filtres pour éliminer la lumière diffusée ce qui augmente la sensibilité de la technique.

### Mesure directe

Une expérience a été réalisée où l'on crée une figure d'interférence le long de laquelle on peut lire toute la fonction de corrélation [21]. La figure d'interférence était formée dans un cristal photoréfractif, créant ainsi un réseau de diffraction sous la forme d'un réseau d'indice. L'utilisation de ce type de matériau présente l'avantage de donner une grande sensibilité à la méthode. L'efficacité de diffraction d'un cristal photoréfractif est grande, et le réseau de diffraction a une durée de vie de plusieurs minutes. En revanche, la technique est limitée à la mesure de fonctions de corrélation dont la largeur ne dépasse pas la centaine de picosecondes.

### 2.3.5 Corrélation à quatre champs

Les paragraphes précédents discutent de la mesure de la corrélation entre deux champs qui interfèrent. Diverses méthodes de corrélation à quatre champs permettent de mesurer la corrélation entre des champs qui ne sont pas simultanément présents sur le détecteur.

Considérons une séquence de deux impulsions  $E_1(t - t_1)$  et  $E_2(t - t_2)$  centrées en  $t_1$  et  $t_2$  respectivement et de même durée  $\tau_1$ . On suppose que  $t_{12} = t_2 - t_1$  est suffisamment grand pour éviter tout recouvrement temporel entre les impulsions. On forme sur une barrette de photodétecteurs les franges d'interférence de cette séquence avec les impulsions  $E_1(t - t_1 - T)$  et  $E_2(t - t_2 - T)$ , décalées d'un intervalle  $T < \tau_1$  par rapport aux précédentes. Le carré du contraste des franges ainsi formées s'écrit

$$|C(T)|^2 = \left| \int [E_1(t - t_1)E_1^*(t - t_1 - T) + E_2(t - t_2)E_2^*(t - t_2 - T)] dt \right|^2 \quad (2.24)$$

La moyenne statistique de cette expression contient, en plus des moments statistiques associés à chacun des champs  $E_1$  et  $E_2$ , le terme croisé

$$G = \int dt \int dt' \langle E_1(t - t_1)E_1^*(t - t_1 - T)E_2^*(t' - t_2)E_2(t' - t_2 - T) \rangle \quad (2.25)$$



où les signes  $\langle \rangle$  symbolisent la moyenne. Dans l'hypothèse où les champs sont considérés comme des processus gaussiens, cette expression se développe sous la forme

$$G = \int dt \langle E_1(t - t_1) E_1^*(t - t_1 - T) \rangle \int dt \langle E_2(t - t_2) E_2^*(t - t_2 - T) \rangle \quad (2.26)$$

$$+ \int dt \int dt' |\langle E_1(t - t_1) E_2^*(t' - t_2) \rangle|^2$$

On voit donc apparaître une contribution provenant de la corrélation d'amplitude entre les impulsions  $E_1$  et  $E_2$ , qui ne forment pourtant pas entre elles une figure d'interférence. Cette propriété sera mise à profit dans le chapitre 3 pour mesurer la corrélation entre les impulsions successives délivrées par un laser picoseconde.

La corrélation à quatre champs est à la base de l'interférométrie d'intensité, imaginée par Hanbury Brown [20]. On en retrouve le principe dans l'interférométrie des tavelures et dans plusieurs expériences récentes consacrées à la mesure du temps de cohérence d'une source laser [21,22,23].

## 2.4 A quoi ça sert?

La corrélation de champ permet de réaliser des portes optiques temporelles de largeur picoseconde ou subpicoseconde avec un excellent rapport signal sur bruit avec des sources de lumière peu sophistiquées. Cette propriété a été mise à profit dans un certain nombre d'applications.

### 2.4.1 Analyse d'une réponse linéaire

On considère l'expérience de principe schématisée sur la figure 2.5.a. Un faisceau laser est divisé en deux par une lame séparatrice. L'un des deux faisceaux représenté par le champ  $E(t)$  va exciter un système matériel pour produire le signal  $E_s(t)$ . On suppose que ce signal dépend linéairement de l'excitation. Il est déterminé par la fonction de réponse linéaire  $R(t)$  du système et par la forme de l'excitation  $E(t)$ :

$$E_s(t) = \int_{-\infty}^t E(t') R(t - t') dt' \quad (2.27)$$

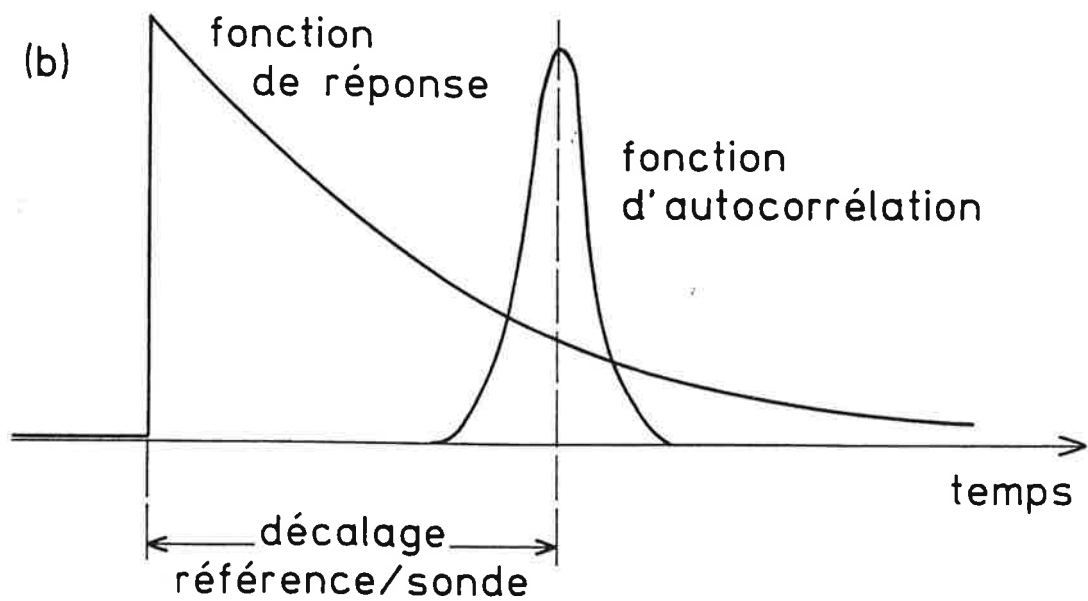
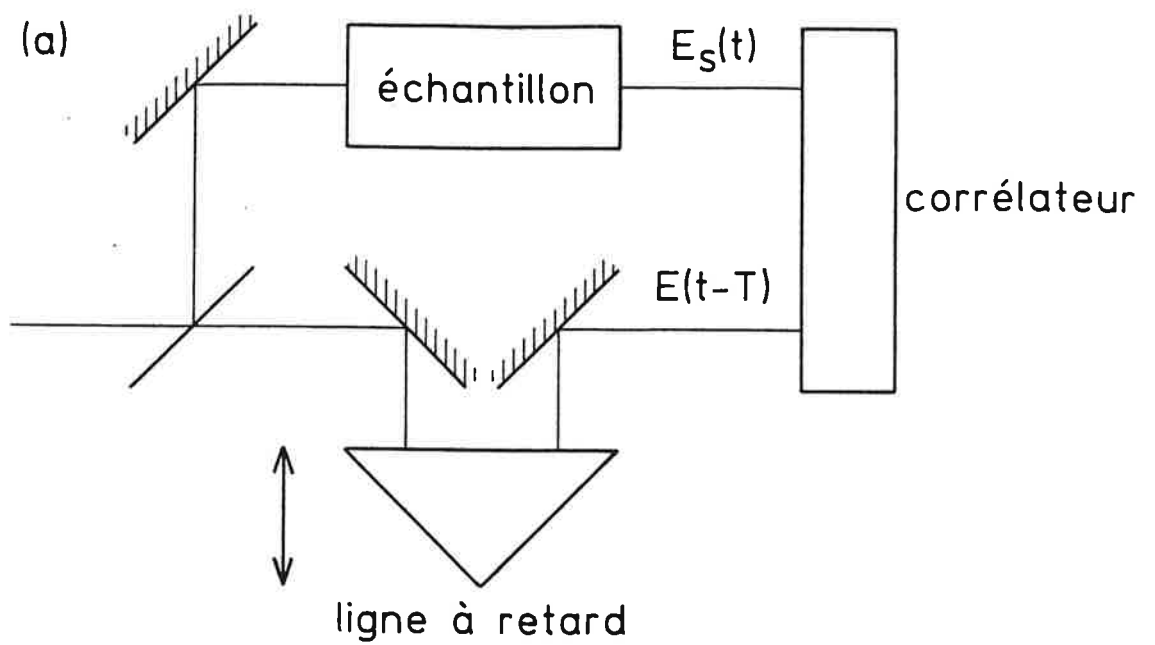


Figure 2.5: Analyse d'une réponse linéaire

Dans cette expression, le signal à l'instant  $t$  apparaît comme la somme des signaux individuels  $R(t - t')$  dus à l'excitation produite aux instant  $t'$  antérieur à  $t$ . Cette expression peut se mettre sous la forme

$$E_s(t) = \int E(t - \tau)R_c(\tau) d\tau \quad (2.28)$$

où  $R_c(t)$  est la réponse causale définie par

$$\begin{aligned} R_c(t) &= R(t) & t \geq 0 \\ R_c(t) &= 0 & t < 0 \end{aligned} \quad (2.29)$$

Le signal apparaît alors comme la convolution de l'excitation par la fonction réponse du système.

Afin d'analyser la réponse du système, on mesure la fonction de corrélation croisée  $g_{rs}(T)$  entre le signal et une réplique décalée dans le temps du champ exciteur. La corrélation  $g_{rs}(T)$  s'écrit, au facteur de normalisation près

$$g_{rs}(T) = \int E_s(t)E^*(t - T) dt \quad (2.30)$$

Compte tenu de l'expression du signal, elle s'exprime comme

$$g_{rs}(T) = \int dt \int d\tau E(t - \tau)E^*(t - T)R_c(\tau) \quad (2.31)$$

Que l'on peut réécrire, en introduisant la fonction d'autocorrélation du champ exciteur, comme

$$g_{rs}(T) = \int g(T - \tau)R_c(\tau) d\tau \quad (2.32)$$

La corrélation croisée entre le signal et la référence équivaut donc à la convolution de la fonction réponse recherchée par la fonction d'autocorrélation du champ exciteur, qui apparaît ainsi comme une véritable fenêtre temporelle au travers de laquelle on peut observer la réponse du système (figure 2.5.b). La corrélation croisée de champ permet donc de résoudre la fonction réponse à l'échelle du temps de cohérence du champ exciteur. En faisant varier le décalage temporel  $T$  sur la voie référence on peut reconstituer la fonction réponse.

Deux expériences du type de celle décrite ci-dessus ont été réalisées. L'une d'elle avait pour but de mettre en évidence les effets de propagation liés à la dispersion anormale dans un matériau, quand le spectre de la lumière excitatrice couvre largement la bande d'absorption du matériau [24]. Pour une impulsion limitée par transformée de Fourier, c'est à dire dont l'inverse de la durée coïncide avec la largeur de son spectre, la dispersion anormale se traduit par une déformation de l'impulsion qui développe une structure temporelle oscillatoire dont l'échelle de temps est beaucoup plus petite que l'inverse de la largeur de la bande d'absorption. Pour une bande d'absorption de l'ordre de 1 GHz de large, comme on en trouve dans les vapeurs atomiques, où les raies d'absorption sont élargies par effet Doppler, la structure est à l'échelle de la centaine de picosecondes. Elle ne peut être observée directement sur la forme de l'impulsion qu'avec des impulsions dont la durée ne dépasse pas la dizaine de picosecondes. Dans l'expérience qui nous intéresse, les effets de propagation étaient observés sur la fonction de corrélation croisée de champ entre l'impulsion propagée dans la vapeur et une réplique de l'impulsion excitatrice, selon le schéma de la figure 2.5.a. La corrélation était mesurée sur la figure d'interférence des deux champs, formée sur une barrette CCD, par analyse de Fourier électronique selon le principe exposé dans le paragraphe 2.3.4. Les impulsions utilisées avaient une durée de 8 ns, pour un temps de cohérence de 30 ps. Le spectre des impulsions couvrait donc largement la bande d'absorption de la vapeur atomique, dont la largeur était de l'ordre de  $(600 \text{ ps})^{-1}$ . Dans ces conditions la fonction de corrélation croisée exhibe la structure oscillatoire caractéristique de la réponse du milieu dispersif. Le déroulement temporel de la fonction réponse est ainsi résolu avec des impulsions dont la durée est très supérieure au temps caractéristique d'évolution de cette fonction. Cette expérience met en évidence l'intérêt des mesures de corrélations croisées de champ, qui permettent d'obtenir une grande résolution temporelle avec des sources laser peu sophistiquées.

Une autre expérience du même type a été réalisée, avec le même corrélateur. Il s'agissait cette fois de résoudre une structure spectrale gelée dans la bande d'absorption d'un colorant dispersé dans une matrice polymère, à la température de l'hélium liquide [25]. Cette structure constitue un réseau de diffraction. L'analyse temporelle du signal diffracté permet

de résoudre la structure. Dans l'expérience en question, des impulsions larges-bandes de durée nanoseconde permirent d'analyser avec une résolution subpicoseconde le signal diffracté, mettant ainsi en évidence sa structure temporelle cohérente, caractéristique de la structure spectrale gravée dans le matériau. Cette expérience s'inscrit dans le cadre de la recherche de nouveaux procédés de stockage et de traitement optique de l'information, dont le chapitre 5 traite plus précisément.

### 2.4.2 Réflectométrie

La réflectométrie est la mesure de la réflectivité et/ou du pouvoir de rétrodiffusion d'un milieu matériel. La réflectométrie par corrélation d'amplitude permet de mener cette mesure dans l'épaisseur du milieu, avec une résolution spatiale micrométrique. Le schéma de principe d'une expérience de ce type est donné par la figure 2.6. On mesure la corrélation croisée de champ entre une réplique décalée dans le temps de la lumière injectée dans le milieu (la référence), et la lumière rétrodiffusée (le signal). Cette dernière émerge du milieu à des instants divers selon la position du centre diffuseur dans l'épaisseur du milieu. Seule la lumière provenant d'une petite portion longitudinale dans l'épaisseur du milieu participe au signal de corrélation. La résolution spatiale est égale à la longueur de cohérence  $l_c = c\tau_c/2n$  de la lumière injectée dans le milieu, où  $n$  est l'indice du milieu. En déplaçant la ligne à retard situé sur le faisceau référence, on sonde l'amplitude de la rétrodiffusion sur toute l'épaisseur du milieu.

La réflectométrie est utilisée pour analyser les propriétés d'un système optique intégré à l'échelle micrométrique [26,12,1]. Les corrélateurs développés pour cette application sont du type Michelson à démodulation ou à détection synchrone. Ils sont utilisés avec des diodes laser larges-bandes continues dont la longueur de cohérence dans le vide est de quelques dizaines de micromètres. La dynamique obtenue, c'est à dire le rapport signal sur bruit maximum, varie entre 90 dB et 110 dB, les corrélateurs à détection synchrone étant les plus sensibles. En contrepartie, les corrélateurs à démodulation permettent de sonder le système optique à des vitesses allant jusqu'à 40 mm/s, alors que la vitesse des dispositifs à détection synchrone est limitée à  $\sim 0.1$  mm/s.

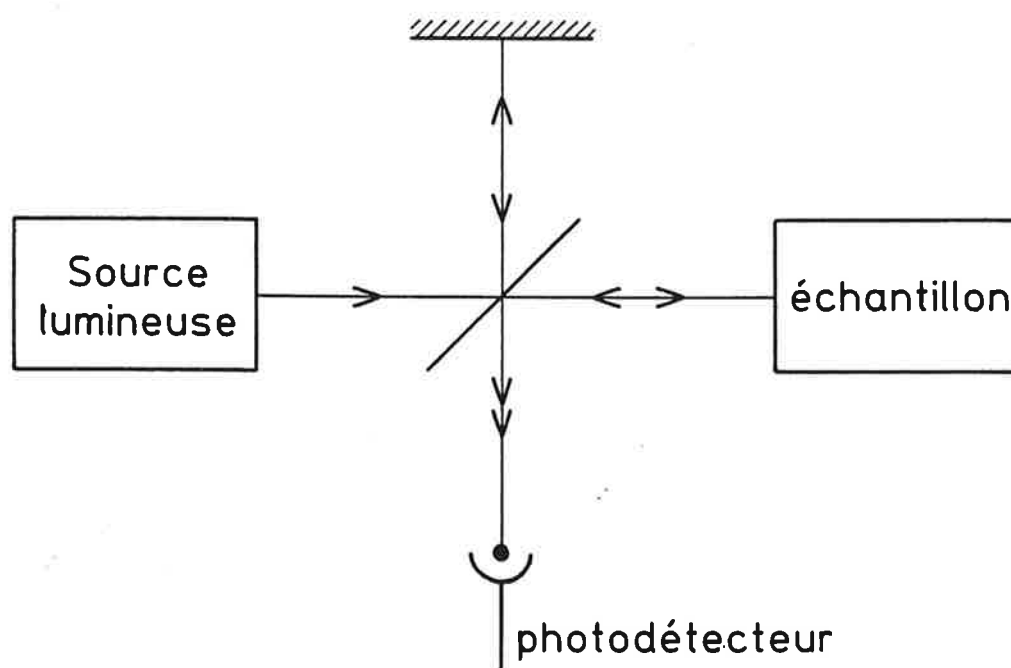


Figure 2.6: Réflectométrie

La réflectométrie par corrélation d'amplitude avec des sources incohérentes larges-bandes, où réflectométrie basse cohérence, semble avoir un avenir prometteur en ophtalmologie [1,27,2]. Des chercheurs du Michigan ont rapporté récemment une des premières images tomographiques prises in vivo d'un œil humain, incluant la cornée, le cristallin, et la rétine [2]. L'image obtenue est la carte plan par plan de la réflectivité et/ou du pouvoir rétrodiffusant de l'œil. Elle est enregistrée point par point. Un dispositif de microscopie confocale permet de sonder l'œil transversalement. La technique de corrélation croisée de champ assure l'analyse en profondeur. La résolution spatiale est déterminée transversalement par la résolution du dispositif de microscopie confocale et longitudinalement par la longueur de cohérence de la source utilisée. Le corrélateur utilisé pour ces expériences est du type Michelson à détection hétérodyne. Il est utilisé avec une diode laser délivrant une puissance de  $500 \mu\text{W}$ . Les auteurs rapportent une dynamique de 94 dB avec une résolution longitudinale de  $13 \mu\text{m}$  déterminée par la longueur de cohérence de la source. Le temps minimal pour obtenir une image de  $500$  (longitudinalement)  $\times$   $100$  (transversalement) pixels est de 2,5 s. Les performances obtenues devraient permettre de réaliser un appareil à vocation ophtalmologique opérationnel assez rapidement.

La réflectométrie est également utilisée pour étudier les propriétés optiques des tissus vivants [28], dans le but de mettre au point des techniques d'imagerie médicale optique, la lumière étant potentiellement moins nocive pour l'organisme que les rayons X ou  $\gamma$ . L'imagerie au travers des tissus vivants est un problème d'imagerie au travers d'un milieu diffusant. Un certain nombre d'expériences ont été réalisées dans ce cadre, qui utilisent la corrélation d'amplitude. La discussion de ces expériences fait l'objet de la section suivante.

### 2.4.3 Imagerie à travers un milieu diffusant

Il a été démontré récemment qu'il est possible de visualiser des centres absorbants situés dans un milieu hautement diffusant tel que les tissus vivants. Les techniques mises en œuvre reposent sur l'observation que la lumière qui est diffusée le moins (ballistic light et snake light), c'est à dire celle qui est capable de former des images, est celle qui parcourt le milieu le plus rapidement, c'est à dire celle qui en émerge en premier (figure 2.7). L'utilisation de

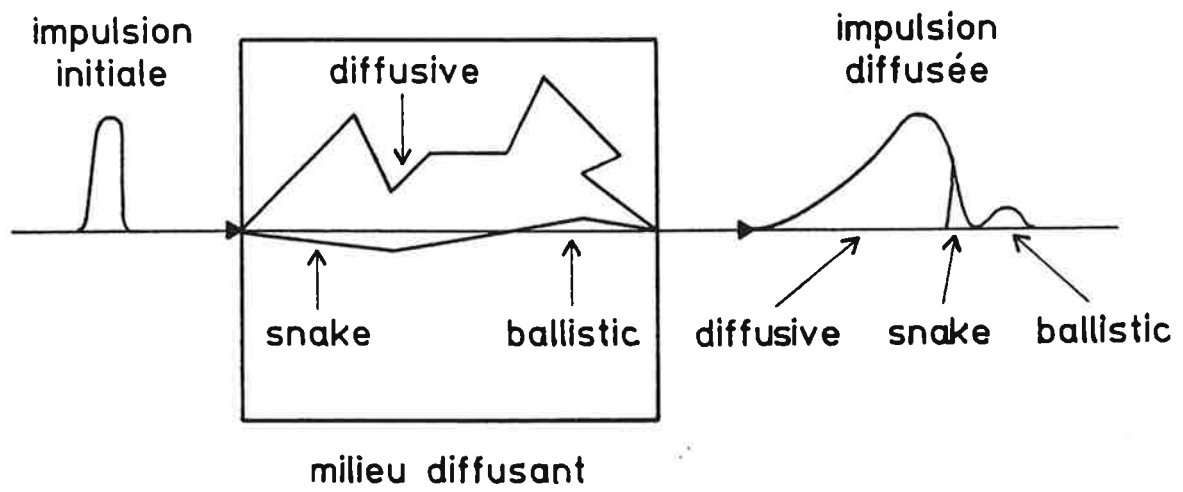


Figure 2.7: Élongation d'une impulsion dans un milieu diffusant



portes optiques subpicosecondes permet de sélectionner la lumière la moins diffusée et donc d'obtenir des images des centres absorbants dans le milieu diffusant. Un certain nombre d'expériences ont été réalisées en utilisant des portes optiques basées sur l'effet Kerr [2] ou sur des mesures de corrélation d'intensité [31]. Nous nous intéressons aux expériences qui utilisent la corrélation croisée de champ pour réaliser la porte optique. Le principe est le même que celui exposé dans le paragraphe consacré à l'analyse d'un signal linéaire. On mesure la corrélation croisée entre le faisceau transmis par le milieu et un faisceau référence, réplique décalée dans le temps du faisceau envoyé sur le milieu. Ceci revient à analyser à travers une porte optique temporelle le signal émergeant du milieu. La largeur et la forme de la porte sont contrôlées par les caractéristiques spectrales de la lumière envoyée sur le milieu. La position de la porte sur le signal dépend du décalage temporel imposé au faisceau référence. Les caractéristiques de la porte et sa position sur le signal sont ajustées afin de sélectionner la partie de la lumière transmise qui permet de produire les meilleures images.

La même équipe qui s'intéresse aux applications de la réflectométrie en ophtalmologie a réalisé une expérience d'imagerie en milieu diffusant [2,32]. La technique expérimentale est la même qu'en réflectométrie à ceci près que le signal est maintenant constituée par la lumière qui est transmise par l'échantillon. Comme en réflectométrie, l'image est obtenue point par point, la sélection spatiale transverse dans l'échantillon étant réalisée par un dispositif de microscopie confocale. A la différence de la réflectométrie, la mesure de corrélation est maintenant utilisée pour éliminer la lumière diffusée, selon le principe exposé dans le paragraphe ci-dessus, et non plus pour déterminer la résolution longitudinale dans l'échantillon, qui n'est pas recherchée dans cette application. Dans une des expériences réalisées, l'objet était constitué d'une figure conçue pour tester la résolution spatiale transverse. Il était situé derrière 1.5 cm de tissus mammaire de poulet. La source de lumière était un laser saphir-titane délivrant des impulsions de 900 fs avec une puissance moyenne de 45 mW. Une dynamique de 130 dB est reportée par les auteurs avec une résolution spatiale transverse de  $\sim 1$  mm. Une image de  $200 \times 50$  pixels requiert  $\sim 8$  mn pour être enregistrée.

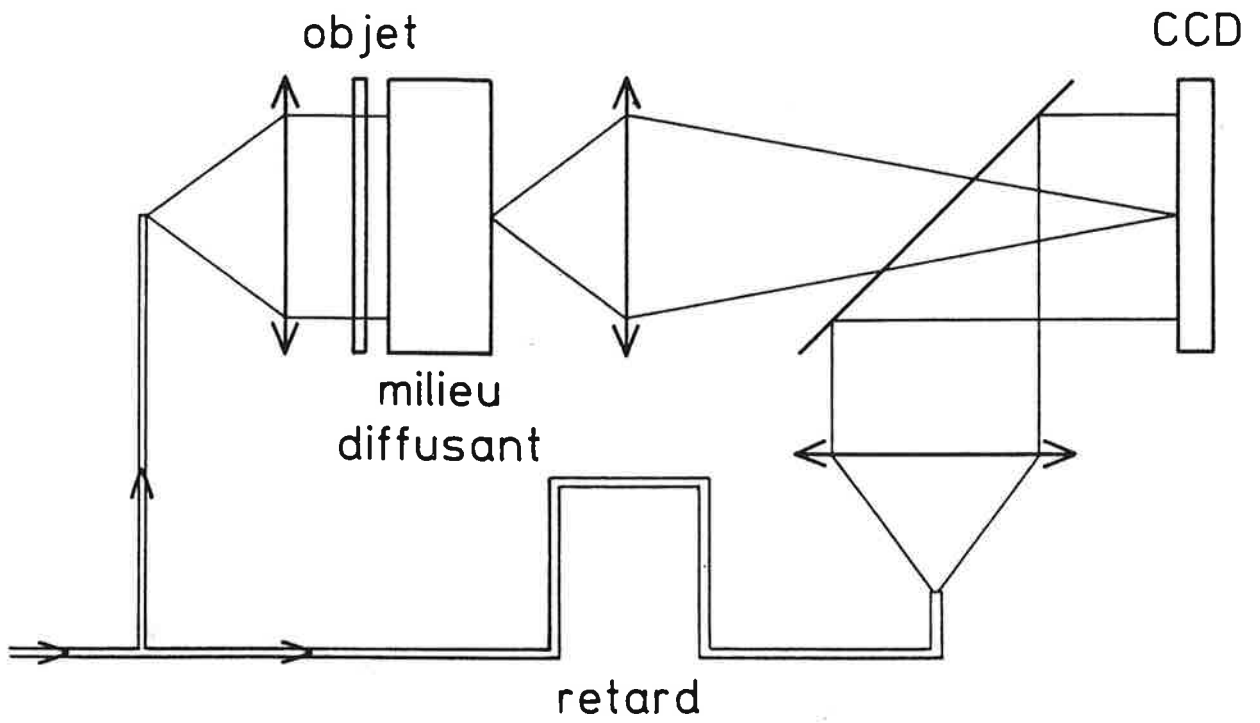


Figure 2.8: Holographie électronique

Une autre technique de corrélation a été expérimentée, qui relève de l'holographie électronique [2]. Elle présente l'avantage de produire des images sans qu'il soit nécessaire de sonder transversalement l'échantillon. Le milieu diffusant est éclairé par une onde plane (figure 2.8). On forme l'image du plan de sortie du milieu diffusant sur une caméra CCD. Par ailleurs un faisceau référence, qui passe par une ligne à retard, illumine la caméra en formant un léger angle avec le faisceau signal. On forme ainsi sur la caméra la figure d'interférence du signal et de la référence, c'est à dire un hologramme. Seuls les fronts d'onde du faisceau signal qui sont temporellement cohérents avec la référence, sont holographiés. En ajustant convenablement le temps de cohérence de la source de lumière et la longueur du chemin optique sur la voie référence, on holographie uniquement les fronts d'onde correspondant à la lumière la moins diffusée. La reconstruction de l'hologramme consiste en une opération de transformée de Fourier spatiale. Elle est effectuée par un micro-ordinateur.

La méthode a d'abord été expérimentée avec un laser saphir-titane délivrant des impulsions de 120 fs de durée, avec une puissance moyenne de 70 mW [33]. Les hologrammes sont enregistrés sur une caméra CCD de  $500 \times 500$  pixels, refroidie à l'hélium liquide pour obtenir une dynamique de 14 bits. L'accumulation de 75 hologrammes enregistrés successivement avec un temps de pose de 100 ms permet de visualiser un objet situé derrière 6 mm de chair de poulet cru avec une résolution spatiale de  $\sim 1$  mm. La durée totale de l'expérience est de  $\sim 40$  mn. Un calculateur plus puissant permettrait de réduire ce temps considérablement.

La méthode a également été expérimentée avec un laser à colorant monochromatique [34]. Dans ce cas, on enregistre plusieurs hologrammes, en décalant la fréquence du laser entre deux enregistrements. La combinaison des différents hologrammes dans l'ordinateur réalise l'équivalent d'un hologramme enregistré en lumière large-bande. Cette technique possède plusieurs avantages par rapport à la précédente. On peut réaliser une porte temporelle très courte sans avoir recours à un laser femtoseconde coûteux. On peut contrôler la forme de la porte optique avec une grande souplesse. Par ailleurs, le même rapport signal sur

bruit est obtenu avec un plus petit nombre d'enregistrements. Dans l'expérience réalisée, 16 hologrammes ont été enregistrés, chacun à une longueur d'onde différente, la bande spectrale balayée correspondant à un temps de cohérence de 150 fs. Le rapport signal sur bruit obtenu en combinant ces 16 hologrammes est meilleur que celui obtenu dans l'expérience décrite précédemment.

## 2.5 Conclusion

La fonction d'autocorrélation d'amplitude d'une onde lumineuse caractérise sa cohérence temporelle. La largeur caractéristique de cette fonction est le temps de cohérence de la vibration. C'est le temps caractéristique d'évolution de la phase et de l'amplitude du champ. La fonction d'autocorrélation est la transformée de Fourier du spectre du champ. La largeur spectrale de la vibration est l'inverse de son temps de cohérence.

Lorsque deux champs lumineux interfèrent, le contraste des interférences est proportionnel à la corrélation des deux champs. Les corrélateurs d'amplitude qui ont été développés dans un certain nombre de laboratoires de par le monde sont des dispositifs interférentiels. On peut les regrouper en deux classes. Ceux qui dérivent de l'interféromètre de Michelson, où les interférences sont formées sur un détecteur ponctuel et ceux qui sont basés sur l'analyse des franges d'interférence spatiales formées sur une barrette de photodétecteurs ou dans un matériau non-linéaire.

Le carré du contraste des franges révèle un terme de corrélation à quatre champs. Ceci permet de mesurer la corrélation entre des champs lumineux sans recouvrement temporel. La corrélation d'intensité est à la base de l'interférométrie d'intensité, qui est surtout utilisée en optique astronomique.

La corrélation de champ permet d'analyser avec une très haute résolution temporelle des signaux et processus optiques linéaires, et ce, avec des sources lumineuses peu sophistiquées. Cette propriété a été récemment mise à profit pour l'étude de la réponse linéaire de certains matériaux absorbants, la réflectométrie dans les systèmes optiques intégrés et le système

oculaire humain, et l'imagerie à travers des milieux diffusants tels que les tissus vivants. Les applications de la corrélation de champ à la mesure des temps de relaxation atomiques et au traitement optique de l'information par mélange à quatre ondes en lumière incohérente sont analysées dans les chapitres 4 et 5. Le chapitre 3 examine deux méthodes de mesure de la corrélation de champ.









# Chapitre 3

## Deux corrélateurs d'amplitude

### 3.1 Introduction

Le chapitre 2 présente les principales méthodes de mesure de la corrélation de champ. Nous nous sommes intéressés particulièrement à deux d'entre elles. La première, introduite dans la section 2.3.4, est la méthode basée sur l'analyse de Fourier électronique de la figure d'interférence des deux champs formée sur une barrette de photodétecteurs (méthode AF). La seconde, présentée dans la section 2.3.2, est celle qui consiste à mesurer les deux quadratures des interférences des deux champs à l'aide de deux détecteurs ponctuels (méthode IQ).

La section 3.2 est consacrée à la méthode AF. On commence par décrire le processus de mesure. On analyse ensuite la limite de sensibilité de la méthode, déterminée par le bruit de la chaîne de détection, dans trois situations expérimentales typiques. Puis on discute des autres sources de bruit qui réduisent la sensibilité effective d'un corrélateur AF. Cette étude se termine par la discussion des résultats obtenus avec le prototype de corrélateur AF que nous avons réalisé. La description technique de l'appareil est donnée en appendice à la fin du chapitre.

La seconde partie du chapitre (section 3.3) analyse les caractéristiques de la méthode IQ. Après avoir décrit le processus de mesure, on discute de la limite de sensibilité de

la méthode en comparaison avec celle de la méthode AF. Les résultats expérimentaux obtenus avec un premier prototype de corrélateur IQ sont ensuite résumés. Ce prototype et l'étude expérimentale dont il a fait l'objet sont détaillés dans une copie de l'article qui sera prochainement publié dans "Applied optics" et qui est présenté dans l'annexe B.

Le corrélateur AF a été utilisé pour caractériser un laser picoseconde à colorant. Cette étude est décrite dans la section 3.4.

La section 3.5 conclut le chapitre.

## 3.2 Analyse de Fourier d'une figure d'interférence

### 3.2.1 Mesure du contraste des franges

#### Processus de mesure

La figure d'interférence formée par deux ondes planes de vecteurs d'ondes non-colinéaires est décrite dans la section 2.3.3. On détecte cette figure sur une barrette de  $N$  photodétecteurs identiques et indépendants. On écrit le signal recueilli sur le pixel  $n$  sous la forme

$$p(n) = W_1 + W_2 + 2g(W_1W_2)^{1/2} \cos(2\pi nK/N + \varphi) \quad (3.1)$$

où  $W_1$  et  $W_2$  sont les énergies des deux champs sur chaque pixel,  $g$  est leur degré de corrélation,  $K$  est le nombre de franges sur la barrette, et  $\varphi$  la phase de la figure d'interférence sur la barrette. Ce signal est digitalisé par un module de conversion analogique/digital. Un processeur calcule la transformée de Fourier discrète  $\tilde{p}(k)$  du signal, définie par ses parties réelles et imaginaires:

$$\begin{aligned} \tilde{p}_c(k) &= \sum_{n=1}^N p(n) \cos(2\pi nk/N) \\ \tilde{p}_s(k) &= \sum_{n=1}^N p(n) \sin(2\pi nk/N) \end{aligned} \quad (3.2)$$

Dans cette transformation de Fourier, le nombre  $K$  de franges sur la barrette coïncide avec la fréquence des franges. On calcule la quantité

$$S = \frac{\tilde{p}_c(K)^2 + \tilde{p}_s(K)^2}{\tilde{p}_c(0)^2} = \frac{|\tilde{p}(K)|^2}{\tilde{p}(0)^2} \quad (3.3)$$

qui est proportionnelle au carré du contraste des franges:

$$S = g^2 \frac{W_1 W_2}{(W_1 + W_2)^2} \quad (3.4)$$

La mesure  $S$  est indépendante des fluctuations d'intensité de la source.

La durée du processus de mesure décrit ci-dessus, hormis la phase d'exposition des pixels, peut être estimée en nombre d'opérations élémentaires. Elle se décompose en  $N$  fois le temps de lecture du signal d'un pixel auquel s'ajoute le temps de calcul de la transformée de Fourier, qui demande, avec un algorithme FFT,  $N \log_2(N)$  multiplications.

### Dynamique de la chaîne de détection

La chaîne de détection (barrette, amplificateur et convertisseur) induit un bruit (bruit électronique) sur le signal  $p(n)$ . On suppose que ce bruit est le même pour les  $N$  pixels de la barrette et qu'il ne dépend pas du niveau du signal. On le caractérise par sa variance  $\sigma$  aussi appelée valeur *rms*. La dynamique de la chaîne de détection est définie comme le rapport entre le niveau  $W_{sat}$  du signal d'un pixel à saturation et le bruit  $\sigma$ :

$$R = W_{sat}/\sigma \quad (3.5)$$

Le bruit de détection est la somme du bruit électronique et du bruit de photons. Ce dernier dépend du niveau de signal sur le pixel. Pour  $N_\nu$  photons détectés, le bruit de photons est  $\sqrt{N_\nu}$  en valeur *rms*. Il est donc maximum à la saturation pour laquelle il vaut  $\sqrt{N_{\nu,sat}}$  où  $N_{\nu,sat}$  est le nombre de photons détectés à saturation. Le bruit électronique, en nombre de photons, peut s'écrire  $\sigma = N_{\nu,sat}/R$ . Le bruit de photons est négligeable devant le bruit électronique si  $\sqrt{N_{\nu,sat}} \gg R$ . Cette condition est toujours vérifiée pour les chaînes de détection considérées. Nous confondons dans la suite le bruit de détection et le bruit électronique.

### Limite de sensibilité

Le bruit de détection détermine la limite de sensibilité de la mesure du contraste. On montre que la valeur moyenne  $\langle S \rangle$  prenant en compte le bruit de détection, s'exprime comme

$$\langle S \rangle = \frac{g^2 W_1 W_2 + \sigma^2 / N}{(W_1 + W_2)^2} \quad (3.6)$$

où on a négligé le bruit sur le dénominateur. Cette approximation est justifiée dès lors que  $W_1 + W_2$  est proche du niveau de saturation  $W_{sat}$  des pixels et que la dynamique de la chaîne de détection est très supérieure à 1. D'après cette expression, le contraste des franges est mesurable si

$$g^2 W_1 W_2 > \sigma^2 / N \quad (3.7)$$

Cette expression permet de discuter de la limite de sensibilité d'une mesure de corrélation. Celle-ci dépend de l'expérience considérée. Nous envisageons trois situations typiques. Dans la première, on réalise une mesure de corrélation croisée entre un signal de faible énergie  $w$  et une référence dont l'énergie n'est pas limitée. On suppose que le signal est parfaitement corrélé à la référence. Dans cette situation, l'énergie du signal est le facteur limitatif. La sensibilité de la mesure est l'énergie minimale  $w_{min}$  du signal, compatible avec la condition 3.7. On obtient son expression à partir de l'équation 3.7 avec  $g = 1$ ,  $W_1 = W_{sat}$  et  $W_2 = w_{min}/N$  où le facteur  $N$  rend compte de la répartition de l'énergie du signal entre les  $N$  pixels de la barrette. On trouve

$$w_{min} = \sigma / R \quad (3.8)$$

La sensibilité dépend donc simultanément du niveau de bruit absolu du détecteur et de sa dynamique. Elle est indépendante du nombre de pixels de la barrette.

La seconde situation correspond au cas où l'on cherche à mesurer l'autocorrélation d'un signal de faible énergie  $w$ . On suppose que l'autocorrélation est parfaite. La sensibilité est comme dans le cas précédent l'énergie minimale du signal permettant de mesurer le contraste. Elle s'exprime maintenant comme

$$w_{min} = \sigma \sqrt{N} \quad (3.9)$$

Par conséquent dans cette situation l'utilisation d'un grand nombre de pixels diminue la sensibilité. Autre différence avec la situation précédente, la sensibilité ne dépend plus maintenant de la dynamique des pixels.

La troisième situation est celle dans laquelle on cherche à mesurer un signal de corrélation  $g$  faible, sans limitation énergétique sur les faisceaux interférents. Dans ce cas, le seuil de sensibilité est la plus petite corrélation  $g_{min}$  mesurable, qui s'exprime comme

$$g_{min} = \frac{1}{R\sqrt{N}} \quad (3.10)$$

L'utilisation d'un grand nombre de pixels est donc cette fois favorable à la sensibilité qui par ailleurs, ne dépend plus maintenant que de la dynamique des pixels.

### Sensibilité effective

La section précédente discute de la limite de sensibilité de la mesure, déterminée par le bruit de détection. Dans une situation expérimentale, d'autres sources de bruit sont susceptibles de réduire la sensibilité effective d'un corrélateur. La plus importante est la non-uniformité de la répartition spatiale d'énergie des faisceaux interférents. Pour en tenir compte, on écrit le signal pixel comme

$$p(n) = a(n) + 2gb(n) \cos(2\pi nK/N + \varphi) \quad (3.11)$$

où  $a(n)$  et  $b(n)$  sont définis par

$$a(n) = W_1(n) + W_2(n) \quad (3.12)$$

$$b(n) = [W_1(n)W_2(n)]^{1/2} \quad (3.13)$$

La mesure  $S$  s'exprime alors comme

$$S = g^2B + A \quad (3.14)$$

Dans cette expression, le premier terme représente le contraste des franges. Le coefficient  $B$  est défini par

$$B = \left( \frac{\sum b(n)}{\sum a(n)} \right)^2 \quad (3.15)$$

Le second terme résulte de la composante de Fourier à la fréquence spatiale  $K$  du fond  $a(n)$  sur la barrette. Il s'écrit

$$A = \left( \frac{\sum a(n) \cos(2\pi nK/N)}{\sum a(n)} \right)^2 + \left( \frac{\sum a(n) \sin(2\pi nK/N)}{\sum a(n)} \right)^2 \quad (3.16)$$

Ce terme représente une contribution importante qui réduit considérablement la sensibilité effective de la mesure. On peut réduire son importance par une procédure de traitement du signal appropriée.

Celle-ci consiste à soustraire au signal  $p(n)$  les distributions d'énergies  $\langle W_1(n) \rangle$  et  $\langle W_2(n) \rangle$ , enregistrées indépendamment l'une de l'autre dans une étape préalable, en moyennant sur un grand nombre d'acquisitions. On obtient alors le signal

$$p'(n) = a'(n) + 2gb(n) \cos(2\pi nK/N + \varphi) \quad (3.17)$$

où  $a'(n)$  est défini par

$$a'(n) = W_1(n) + W_2(n) - \alpha(\langle W_1(n) \rangle + \langle W_2(n) \rangle) \quad (3.18)$$

Dans l'expression de  $a'(n)$ , le facteur  $\alpha$ , défini par

$$\alpha = \frac{\sum p(m)}{\sum(\langle W_1(n) \rangle + \langle W_2(n) \rangle)} \simeq \frac{\sum W_1(n) + W_2(n)}{\sum(\langle W_1(n) \rangle + \langle W_2(n) \rangle)} \quad (3.19)$$

permet de compenser les fluctuations d'intensité de la source dans la soustraction du fond.

La mesure  $S$  est maintenant calculée comme l'amplitude de la composante de Fourier à la fréquence  $K$  du signal  $p'(n)$ , normalisée par la quantité d'énergie reçue par la barrette:

$$S = \frac{|\tilde{p}'(K)|^2}{(\sum p(n))^2} \quad (3.20)$$

Elle s'exprime sous la forme

$$S = g^2 B + A' \quad (3.21)$$

où  $B$  est défini dans l'équation 3.15 et  $A'$  est la composante de Fourier à la fréquence  $K$  du fond résiduel  $a'(n)$  sur le signal après traitement:

$$A' = \left( \frac{\sum a'(n) \cos(2\pi nK/N)}{\sum a(n)} \right)^2 + \left( \frac{\sum a'(n) \sin(2\pi nK/N)}{\sum a(n)} \right)^2 \quad (3.22)$$

En l'absence de fluctuations de la répartition spatiale d'énergie des faisceaux sur la barrette, le fond  $A'$  est nul. En présence de fluctuations, le fond moyen  $\langle A' \rangle$  peut être estimé par la relation

$$\langle A' \rangle = \sigma_w^2 / N(W_1 + W_2)^2 \quad (3.23)$$

où  $\sigma_w = \sqrt{\sum \langle a'(n)^2 \rangle / N}$  est la moyenne de l'écart type des fluctuations sur les  $N$  pixels de la barrette, et  $W_1 + W_2 = \sum a(n)$  représente l'énergie moyenne sur la barrette. Le bruit  $\sigma_w$  joue le même rôle que le bruit de détection  $\sigma$ . Pour atteindre la limite de sensibilité, il faut que  $\sigma_w$  soit inférieur à  $\sigma$ .

D'autres facteurs peuvent encore réduire la sensibilité effective de la mesure.

Les fluctuations de la phase  $\varphi$  au cours d'une acquisition, résultant de l'instabilité mécanique du montage et réduisant la valeur effective de  $g$ .

La cohérence spatiale mutuelle imparfaite des faisceaux, qui réduit encore la valeur effective de  $g$  sur la barrette.

La forme imparfaite des fronts d'ondes des deux faisceaux interférents, qui se traduit par une variation de la phase  $\varphi$  d'un pixel à l'autre. Ceci élargit le spectre de la figure d'interférence, et réduit donc le rapport signal sur bruit.

Ces derniers facteurs sont d'origine opto-mécanique. La minimisation de leur influence sur la sensibilité de la mesure passe par une optimisation de la qualité du montage optique.

### 3.2.2 Caractérisation expérimentale d'un corrélateur

Les caractéristiques de dynamique et de sensibilité de la méthode de mesure décrite dans les paragraphes précédents ont été étudiées expérimentalement. Cette étude a été menée avec le dernier prototype de corrélateur AF réalisé, dont la description technique est donnée dans l'annexe A.

#### Dynamique de la détection

La dynamique d'un pixel de la barrette de photodétecteurs est définie dans l'équation 3.5. Pour la déterminer expérimentalement, la barrette est éclairée par une lampe de poche à

incandescence à travers un écran diffuseur. Cette disposition vise à éliminer les fluctuations de la répartition spatiale de l'énergie lumineuse sur la barrette. On réalise une série d'acquisitions (1000) pour laquelle on calcule l'écart quadratique

$$\sigma^2(n) = \left( \left\langle \left( \frac{p(n)}{p_m} \right)^2 \right\rangle - \left\langle \frac{p(n)}{p_m} \right\rangle^2 \right) \langle p_m^2 \rangle \quad (3.24)$$

où  $p_m$  est le signal moyen sur les  $N$  pixels de la barrette:

$$p_m = \sum p(n)/N \quad (3.25)$$

et les signes  $\langle \rangle$  représentent la moyenne sur l'ensemble des acquisitions. Dans l'expression de  $\sigma^2(n)$ , la normalisation par  $p_m$  élimine l'effet des fluctuations d'intensité de la source. Seul le bruit lié à la chaîne de détection (barrette, amplificateur, convertisseur) contribue à  $\sigma(n)$ .

Les observations expérimentales montrent que  $\sigma(n) = \sigma$  varie peu d'un pixel à l'autre et que la dynamique  $R$  est proche de 4000, ce qui correspond au maximum escompté avec les caractéristiques commerciales des éléments de la chaîne de détection. Par ailleurs, on vérifie que le bruit de photons est inférieur au bruit propre à la chaîne de détection. L'énergie de saturation d'un pixel est de 31 pJ qui correspond à  $N_{\nu, sat} \sim 10^8$  photons à 600 nm. On a donc  $\sqrt{N_{\nu, sat}} > R$  qui est la condition à satisfaire.

### Sensibilité de la mesure

L'étude expérimentale de la sensibilité de la mesure de corrélation a été menée à l'aide d'un laser picoseconde à colorant. L'expérience consiste à enregistrer la fonction d'autocorrélation du champ laser quand l'intensité d'un des deux faisceaux est fortement atténuée à l'aide d'une densité optique calibrée, tandis que l'autre est proche du niveau de saturation des pixels. On simule ainsi une expérience de corrélation croisée entre un signal de faible énergie et une référence sans limitation énergétique. La valeur maximale de l'atténuation compatible avec l'observation de la fonction d'autocorrélation détermine la sensibilité.



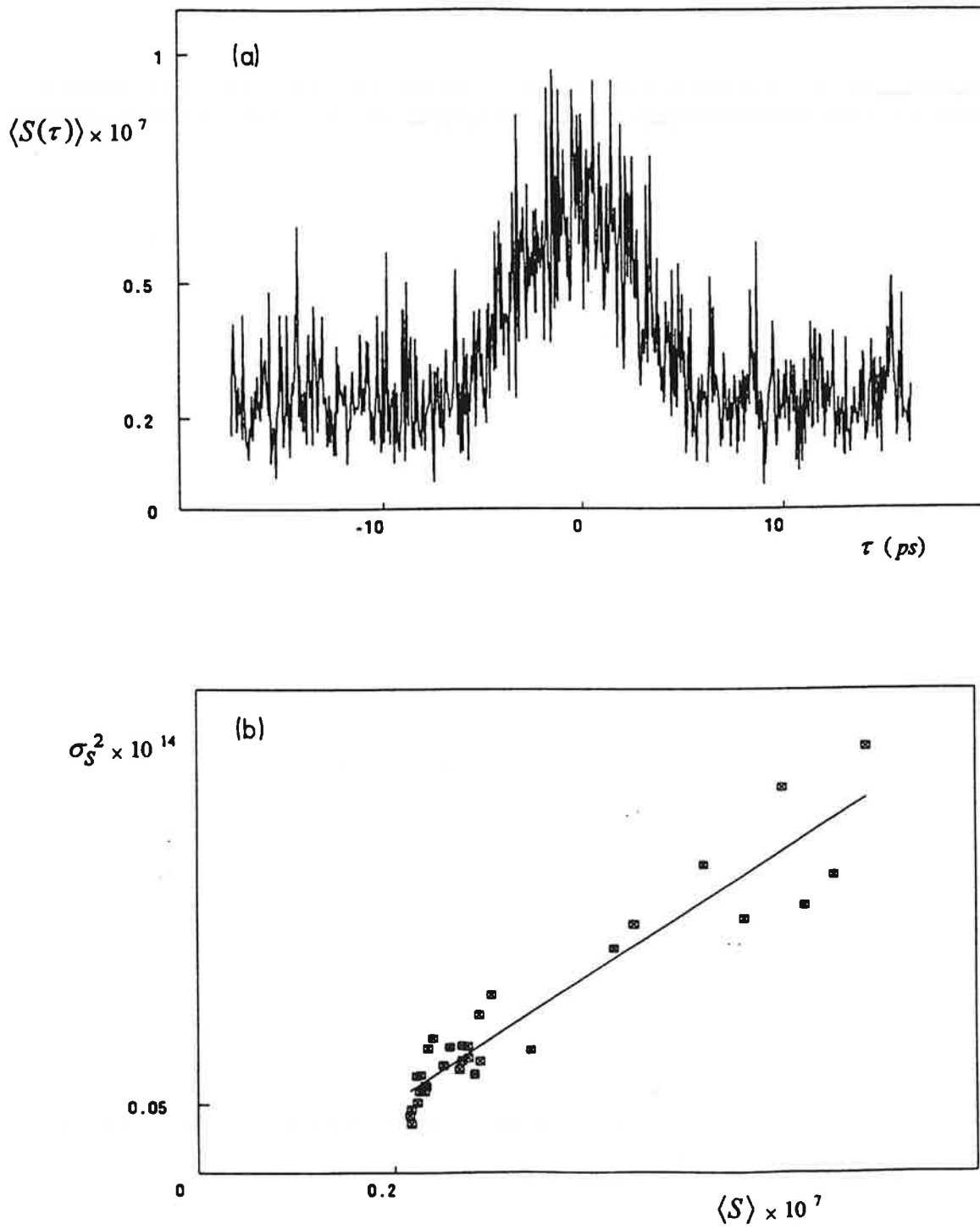


Figure 3.1: Profil d'autocorrélation à travers une densité 7 et écart type du bruit sur la mesure

La figure 3.1.a représente le profil  $\langle S(T) \rangle$  obtenu à travers une densité  $d = 7$ , en moyennant sur 10 acquisitions. Ceci correspond à un niveau de signal initial  $w$ , avant répartition sur la barrette égal à

$$w = N \times 10^{-7} W_{sat} = 1,6 \text{ fJ} \quad (3.26)$$

avec  $N = 512$  et  $W_{sat} = 31 \text{ pJ}$ . Ce résultat a été obtenu grâce à la procédure de réduction de fond décrite précédemment. Sans cette procédure, la densité ne peut dépasser la valeur  $d = 4$ . La procédure de réduction de fond est donc efficace. Cependant, la sensibilité n'atteint pas sa valeur limite

$$w_{min} = \sigma/R = W_{sat}/R^2 \simeq 0,6 \times 10^{-7} W_{sat} \simeq 1,9 \times 10^{-3} \text{ fJ} \quad (3.27)$$

accessible en l'absence de tout bruit autre que celui de la chaîne de détection. En observant les ailes du profil de la figure 3.1.a, on peut mesurer le fond sur la mesure. Il vaut  $\sim 0,22 \times 10^{-7}$ . D'après l'équation 3.6, la contribution du bruit de détection à ce fond est  $\sigma^2/NW_{sat}^2 = 0,1 \times 10^{-9}$ . Ceci suggère que ce sont les fluctuations de la répartition spatiale d'énergie des faisceaux sur la barrette qui déterminent la sensibilité effective.

Afin de tester cette hypothèse, on mesure l'écart type  $\sigma_w$  des fluctuations de la répartition d'énergie sur la barrette quand celle-ci est illuminée par le faisceau laser. La procédure de mesure est la même que celle utilisée pour déterminer la dynamique de la chaîne de détection. D'après l'équation 3.23, la contribution de ce bruit au fond sur la mesure est  $\sim \sigma_w^2/NW_{sat}^2 \sim 10^{-8}$  ce qui est cohérent avec la valeur mesurée sur le profil de la figure 3.1.a.

Par ailleurs, on peut analyser le graphe du carré  $\sigma_S^2$  de l'écart type sur la mesure  $S$ , en fonction de sa valeur moyenne  $\langle S \rangle$ , pour le profil de la figure 3.1.a. La figure 3.1.b représente ce graphe. Les points sont alignés sur une droite, et la pente de la droite est égale à deux fois la valeur du fond sur le profil  $\langle S(T) \rangle$  de la figure 3.1.a. Ces observations sont bien décrites par les expressions théoriques de  $\sigma_S^2$  et  $\langle S \rangle$ , obtenues en considérant les fluctuations de la répartition spatiale d'énergie des faisceaux sur la barrette comme unique source de bruit:

$$\langle S \rangle = g^2 \langle B \rangle + \langle A' \rangle \quad (3.28)$$

$$\sigma_s^2 = \langle S^2 \rangle - \langle S \rangle^2 = 2\langle S \rangle \langle A' \rangle - 2\langle A' \rangle + \langle A'^2 \rangle - \langle A' \rangle^2 \quad (3.29)$$

où  $A'$  et  $B$  sont décrits dans les équations 3.22 et 3.15 respectivement. De plus, ces observations sont incompatibles avec la forme de  $\sigma_s^2$  obtenue en considérant les autres sources de bruit énumérées dans la section "sensibilité effective". On peut en effet montrer que celles-ci se traduisent par une dépendance quadratique de  $\sigma_s^2$  en fonction de  $\langle S \rangle$ . Au vu de ces résultats, on peut considérer que la sensibilité effective de la mesure est déterminée par les fluctuations de la répartition spatiale d'énergie des faisceaux sur la barrette.

### 3.3 Interférences en quadratures

#### 3.3.1 Mesure de la corrélation

##### Processus de mesure

La figure 3.2 présente un schéma de principe d'un dispositif utilisé pour détecter les deux quadratures des interférences de deux champs. Les deux champs  $E_1(t)$  et  $E_2(t)$ , polarisés rectilignement selon deux directions perpendiculaires, sont combinés sur une lame séparatrice et pénètrent ainsi dans les deux bras de l'interféromètre. Le signal du détecteur A, précédé d'un analyseur, est

$$A = W_{1A} + W_{2A} + 2g(W_{1A}W_{2A})^{1/2} \cos(\varphi) \quad (3.30)$$

où  $W_{1A}$  (respectivement  $W_{2A}$ ) est le signal dû au champ  $E_1(t)$  (respectivement  $E_2(t)$ ) seul,  $g$  est le degré de corrélation des deux champs, et  $\varphi$  leur phase relative. Le détecteur B, identique au détecteur A, est précédé d'une lame quart d'onde ou d'un dispositif équivalent, suivi d'un analyseur. Il fournit le signal

$$B = W_{1B} + W_{2B} + 2g(W_{1B}W_{2B})^{1/2} \cos(\varphi + \pi/2) \quad (3.31)$$

où  $W_{1B}$  et  $W_{2B}$  sont les équivalents pour le détecteur B des quantités  $W_{1A}$  et  $W_{2A}$ , et le déphasage supplémentaire de  $\pi/2$  est introduit par la lame quart d'onde. On détecte ainsi simultanément sur A et B les deux quadratures des interférences des deux champs, quelle que soit la phase  $\varphi$ . Dans le même temps un troisième détecteur, noté C, identique aux

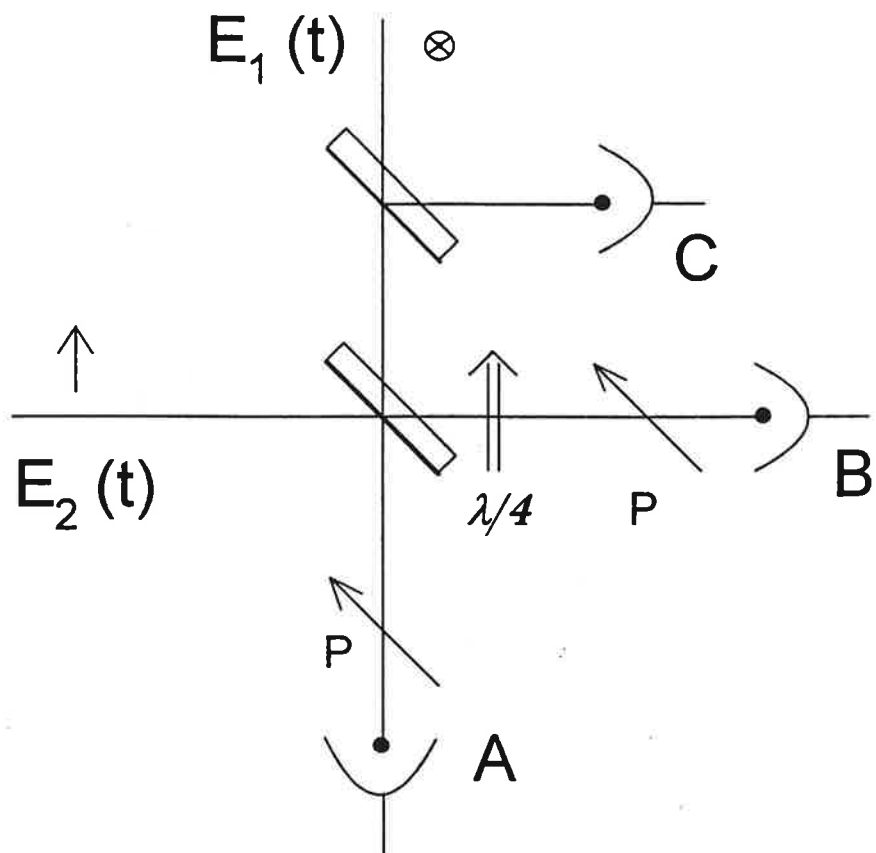


Figure 3.2: Détection d'interférences en quadratures

précédents, et situé en amont des deux bras de l'interféromètre, sert de référence pour détecter les fluctuations d'intensité de la source lumineuse engendrant les deux champs:

$$C = W_r \quad (3.32)$$

Une étape de calibration est nécessaire avant d'effectuer une série de mesures. Celle-ci consiste à enregistrer les signaux des détecteurs A, B et C en coupant le champ  $E_2(t)$ . On calcule et on mémorise alors les quantités  $a_1 = A/C = W_{1A}/W_r$  et  $b_1 = B/C = W_{1B}/W_r$ , qui sont indépendantes des fluctuations d'intensité de la source lumineuse. On réitère ensuite l'opération en coupant cette fois le champ  $E_1(t)$  pour obtenir les constantes  $a_2 = W_{2A}/W_r$  et  $b_2 = W_{2B}/W_r$ . La calibration effectuée, chaque mesure  $S$  est déduite des signaux normalisés  $a = A/C$ ,  $b = B/C$  et des constantes de calibration précédentes selon la formule

$$S = (a - a_1 - a_2)^2 / 4a_1a_2 + (b - b_1 - b_2)^2 / 4b_1b_2 \quad (3.33)$$

La mesure  $S$  fournit le carré de la corrélation  $g$ . L'utilisation des quantités normalisées rend la mesure indépendante des fluctuations d'intensité de la source lumineuse. Par ailleurs, les gains éventuellement différents des détecteurs A et B, ainsi que les imperfections de la répartition de l'énergie des champs entre les deux voies de l'interféromètre par la séparatrice, sont compensés par les dénominateurs  $4a_1a_2$  et  $4b_1b_2$  dans le calcul de  $S$ .

Ce processus de mesure (compté sans la calibration) est beaucoup plus rapide que celui de la méthode AF. Les signaux des trois détecteurs sont acquis simultanément alors que les  $N$  pixels d'une barrette doivent être lus séquentiellement. Le calcul de la corrélation se résume à quelques opérations arithmétiques élémentaires tandis que  $N \log_2(N)$  multiplications sont nécessaires pour le calcul de la transformée de Fourier. On gagne donc plus d'un facteur  $N$  sur la durée totale d'une mesure par rapport à la méthode AF. La section suivante compare les limites de sensibilité des deux méthodes de mesure.

### Limite de sensibilité

On montre que la moyenne  $\langle S \rangle$  de la mesure, prenant en compte le bruit de détection s'écrit

$$\langle S \rangle = g^2 + \sigma^2/2W_1W_2 \quad (3.34)$$

où  $\sigma$  est le bruit de détection sur chacune des deux voies de l'interféromètre,  $W_1$  et  $W_2$  sont les énergies des deux champs interférents dans chacune des deux voies. Cette expression néglige le bruit sur le détecteur C, dont le niveau d'éclairement est supposé proche de la saturation et la dynamique très supérieure à 1. On néglige comme précédemment la contribution du bruit de photons. D'après cette expression, la corrélation  $g$  est séparable du bruit sur la mesure si

$$g^2 > \sigma^2/2W_1W_2 \quad (3.35)$$

Par ailleurs, pour que la calibration puisse être effectuée, les inégalités

$$W_1, W_2 > \sigma \quad (3.36)$$

doivent être vérifiées.

D'après ces conditions, dans une expérience de corrélation croisée entre une référence sans limitation énergétique, et un signal de faible énergie  $w$ , la limite de sensibilité est fixée par la condition de calibration:

$$w_{min} = \sigma \quad (3.37)$$

La sensibilité est donc dans ce cas inférieure d'un facteur  $R$  à celle de la méthode par analyse de Fourier, où  $R$  est la dynamique des détecteurs. Remarquons cependant que l'on peut envisager d'effectuer la calibration avec un faisceau intense simulant le faisceau signal. Dans ce cas, la sensibilité des deux méthodes est équivalente:

$$w_{min} = \sigma/R \quad (3.38)$$

Dans une mesure d'autocorrélation d'un signal de faible énergie  $w$ , l'avantage est à la méthode IQ. La sensibilité est donnée par l'équation 3.37. On gagne donc dans ce cas un facteur  $\sqrt{N}$  par rapport à la méthode AF.

Dans une expérience où l'on cherche à mesurer un signal de corrélation  $g$  faible entre deux champs sans limitation énergétique, la sensibilité est

$$g_{min} = 2/R \quad (3.39)$$

Dans cette situation, la méthode par analyse de Fourier est plus avantageuse, d'un facteur  $2\sqrt{N}$ .

### Sensibilité effective

La méthode des interférences en quadratures n'est pas sensible aux problèmes de la non-uniformité de la répartition spatiale d'énergie des faisceaux interférents. Cependant d'autres facteurs d'origine opto-mécanique peuvent réduire la sensibilité effective d'un corrélateur IQ. Le démonstrateur réalisé ne permet pas de mettre en évidence ces facteurs.

### 3.3.2 Résultats expérimentaux

Le premier prototype de corrélateur réalisé d'après la méthode IQ, et l'étude dont il a fait l'objet sont décrits en détail dans l'article présenté à la fin du chapitre. L'étude inclut la caractérisation, théorique et expérimentale, des performances du démonstrateur. Dans cette étude, le test de la sensibilité du corrélateur a été effectué dans les mêmes conditions que pour le corrélateur AF. Ces conditions correspondent à la situation où les deux méthodes de mesure possèdent la même limite de sensibilité. On peut comparer les résultats obtenus avec les corrélateurs correspondant.

Les résultats obtenus avec le corrélateur IQ montrent que le rapport des intensités entre les deux champs interférents ne doit pas dépasser  $10^{-5}$  pour que l'on puisse observer sur l'enregistrement le profil d'autocorrélation du laser picoseconde. Cette valeur est à comparer à la valeur  $10^{-7}$  obtenue avec le corrélateur AF. Ce dernier est donc le plus sensible. Cependant, la caractérisation du bruit sur la mesure effectuée avec le corrélateur IQ montre que sa sensibilité effective est limitée par le bruit de détection, ce qui n'est pas le cas pour le corrélateur AF. Ces résultats justifient la réalisation et la caractérisation d'un nouveau prototype de corrélateur IQ, avec des éléments performants.

### 3.4 Caractérisation d'un laser picoseconde

Un corrélateur d'intensité et le nouveau prototype de corrélateur d'amplitude AF sont mis en oeuvre pour déterminer les caractéristiques temporelles et spectrales d'un laser à colorant pompé en synchrone par le second harmonique d'un laser YAG (coherent Antares 76-YAG) tirant à 76 MHz.

#### 3.4.1 Fonctionnement en bande large

On s'intéresse au fonctionnement du laser en l'absence de tout élément sélectif dans la cavité. Dans ces conditions de fonctionnement le laser délivre un train d'impulsions picosecondes de largeur spectrale très supérieure à l'inverse de leur durée. Nous souhaitons mesurer la durée des impulsions, leur temps de cohérence, ainsi que le degré de corrélation entre impulsions successives.

La fonction enregistrée à l'aide du corrélateur d'amplitude est le carré du contraste des franges. D'après l'expression 2.24 du chapitre 2, elle se développe sous la forme

$$\langle |C(T)|^2 \rangle^{1/2} = [|g(T)|^2 \int P(T) dt + \alpha \int |g(T)|^2 dt]^{1/2} \quad (3.40)$$

où  $|g(T)|$  est la fonction d'autocorrélation de champ d'une impulsion laser et  $P(t)$  leur fonction d'autocorrélation d'intensité. Le coefficient  $\alpha$  représente le degré de corrélation entre les impulsions du train. Il s'écrit

$$\alpha = \frac{1}{N^2} \sum_{m=1}^N \sum_{n=1}^N G(m-n) \quad (3.41)$$

où la somme porte sur les impulsions reçues par le détecteur pendant la durée  $\Theta$  de la fenêtre d'acquisition et où  $G(m-n)$  décrit la corrélation entre impulsions successives ( $G(0) = 1$ ). Le développement de  $\langle |C(T)|^2 \rangle^{1/2}$  sous cette forme reste largement indépendant des propriétés statistiques du champ tant que le temps de cohérence  $\tau_c$  est très inférieur à la durée  $\tau_i$  des impulsions.

Nous avons effectué une série d'enregistrement pour différentes valeurs du temps d'exposition des pixels de la barrette, contrôlé à l'aide d'un obturateur acousto-optique.



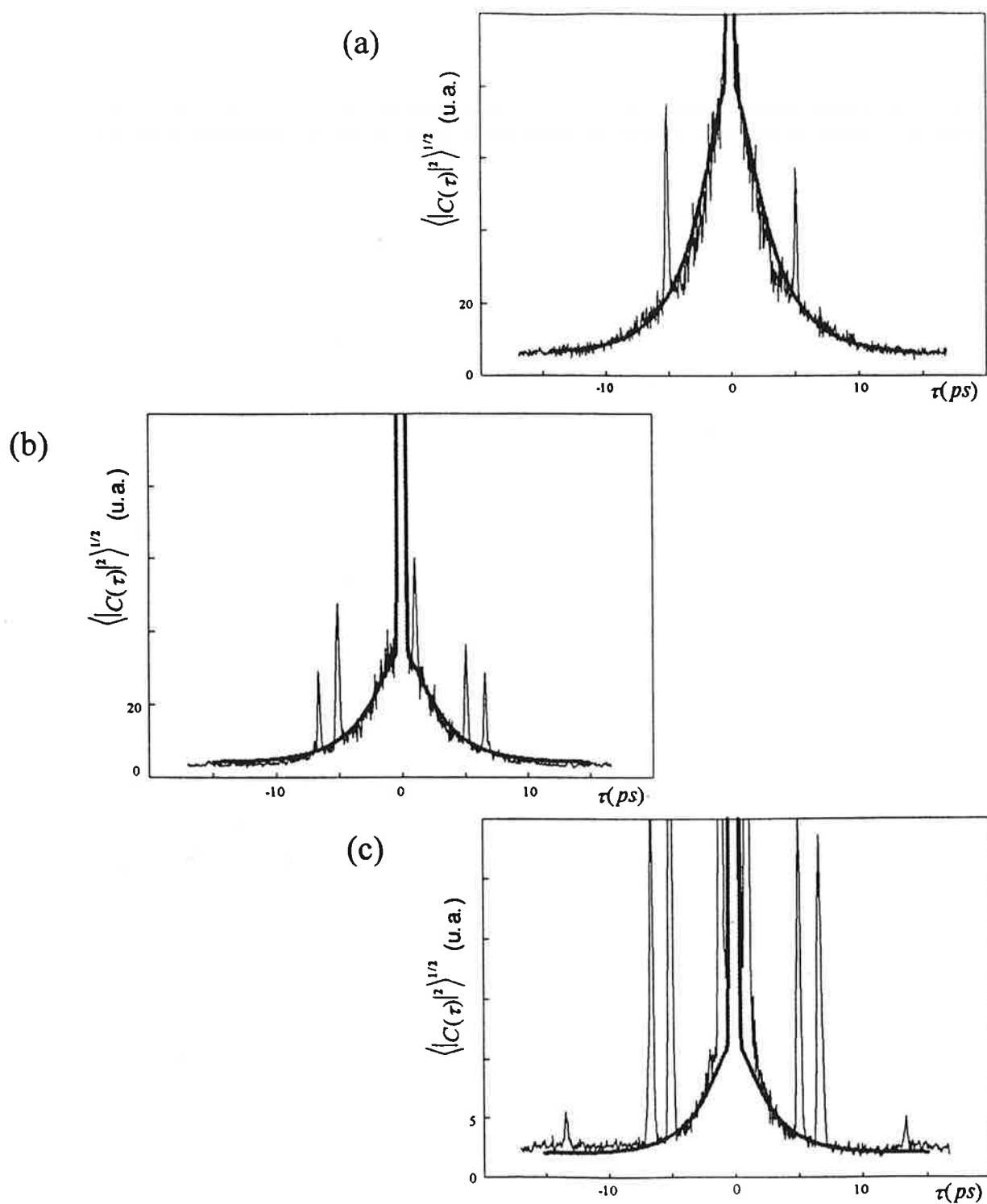


Figure 3.3: Profil d'autocorrélation du laser picoseconde en large-bande pour un temps d'exposition de (a) 10  $\mu$ s, (b) 100  $\mu$ s, (c) 1200  $\mu$ s

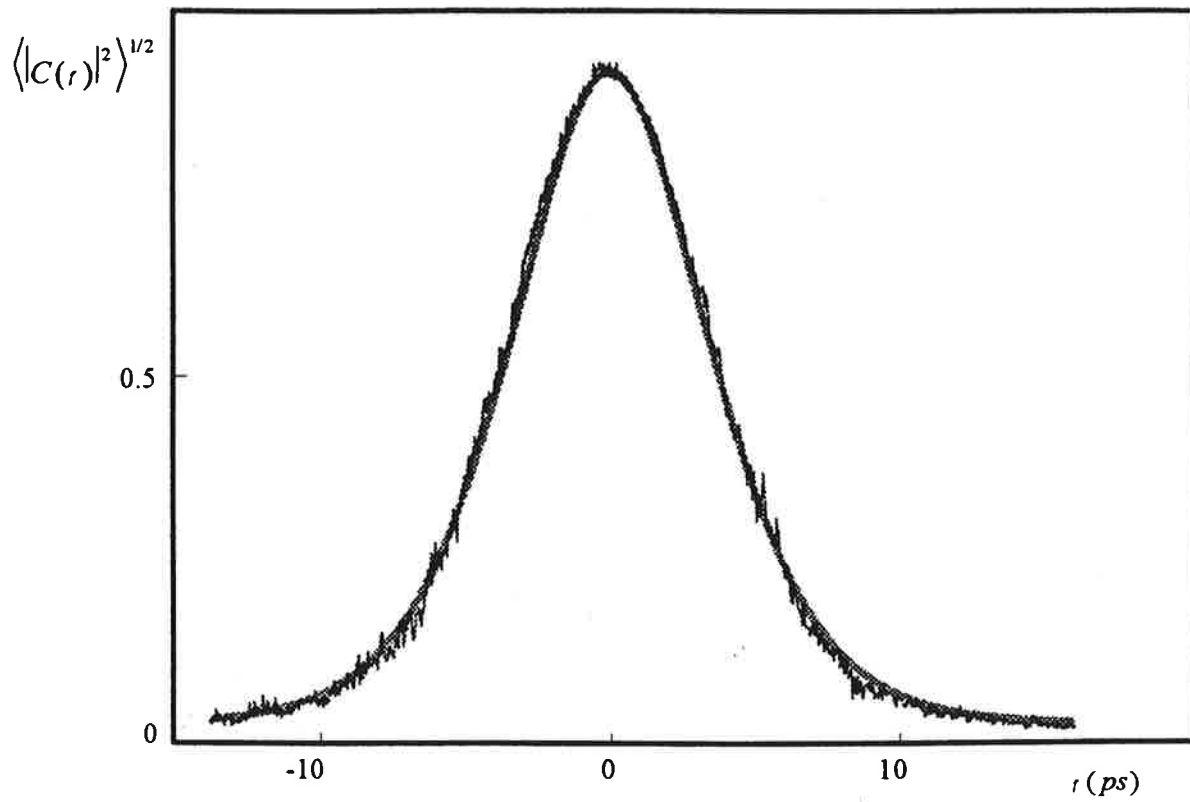


Figure 3.4: Profil d'autocorrélation du laser picoseconde en bande étroite

Les profils expérimentaux de  $(|C(T)|^2)^{1/2}$  sont présentés sur la figure 3.3. Ces courbes sont comparées à l'expression théorique 3.40 dans laquelle les fonctions sont remplacées par les modèles suivants:

$$\begin{aligned} |g(t)| &= \exp(-t^2/t_1^2) \\ P(t) &= \operatorname{sech}(t/t_2) \\ G(m-n) &= \exp(-|m-n|\gamma\tau) \end{aligned} \quad (3.42)$$

où  $\tau = 13$  ns est l'intervalle entre impulsions successives. Les tracés en pointillés correspondent au jeu de paramètres suivants:

$$\begin{aligned} t_1 &= 200 \text{ fs} \\ t_2 &= 1,3 \text{ ps} \\ \gamma^{-1} &= 150 \text{ ns} \end{aligned} \quad (3.43)$$

La largeur à mi-hauteur de  $P(t)$  correspondant à cette valeur de  $t_2$  est 3,4 ps. De la valeur de  $t_1$  on déduit un temps de cohérence  $\tau_c = \int |g(t)| dt = 360$  fs. La valeur obtenue pour  $\gamma\tau$  indique que la corrélation entre impulsions est réduite de moitié après huit allers et retours dans la cavité laser.

Les résultats ainsi obtenus sont confrontés avec ceux de l'analyse par corrélation d'intensité. Dans l'hypothèse où le champ aléatoire produit par le laser est un processus gaussien, le signal du corrélateur d'intensité est décrit par l'expression

$$\Upsilon(T) = P(T) + |g(T)|^2 \quad (3.44)$$

Cette fonction de la différence de marche entre les deux faisceaux lumineux se compose d'une contribution large  $P(T)$  et d'une contribution étroite  $|g(T)|^2$  de même amplitude. Le profil expérimental observé à l'oscilloscope est compatible avec le choix de paramètres  $t_1$  et  $t_2$  obtenus à l'aide du corrélateur d'amplitude. La corrélation entre impulsions séparées est observée en réalisant dans le cristal doubleur de fréquence le mélange entre deux faisceaux dont le décalage temporel est voisin d'un multiple de 13 ns, temps de cycle du laser. Une ligne à retard optique du type cellule de White permet d'atteindre au plus quelques

centaines de nanosecondes de décalage. La fonction de corrélation entre impulsions séparées de  $p$  cycles laser s'écrit

$$\Upsilon(T) = P(T) + G(p)|g(T)|^2 \quad (3.45)$$

Nous n'avons pas observé de décroissance sensible du pic cohérent jusqu'à la limite accessible de  $p = 13$ . Ce résultat semble en contradiction avec celui obtenu avec le corrélateur d'amplitude. Cependant, ces deux études correspondent à des conditions de fonctionnement du laser différentes. Remarquons que le corrélateur d'amplitude donne facilement accès à la corrélation entre impulsions séparées par de grands intervalles temporels (jusqu'à plusieurs millisecondes) alors que l'observation du même processus à l'aide d'un corrélateur d'intensité se limite à des intervalles entre impulsions au plus de quelques centaines de nanosecondes.

### 3.4.2 Fonctionnement en bande étroite

On insère un filtre biréfringent à trois lames dans la cavité du laser à colorant. La fonction d'autocorrélation obtenue à l'aide du corrélateur d'amplitude est présentée sur la figure 3.4. Ce profil est bien décrit à l'aide d'un modèle de champ cohérent, dont le déroulement temporel serait représenté par une sécante hyperbolique. Le temps de cohérence associé est  $\tau_c = 9,3$  ps. La mesure complémentaire effectuée à l'aide du corrélateur d'intensité confirme que les impulsions sont quasiment limitées par transformée de Fourier.

## 3.5 Conclusion

On a étudié théoriquement et expérimentalement deux méthodes de mesures de la corrélation de champ. L'étude de la limite de sensibilité de ces deux méthodes montre qu'elles ont chacune leur domaine d'application privilégié. Pour mesurer l'autocorrélation d'un signal faible, la répartition du signal sur un grand nombre de pixels est défavorable. La méthode IQ est la plus sensible. Pour mesurer la corrélation entre un signal de faible énergie et une référence sans limitation énergétique, les deux méthodes sont équivalentes. La sensibilité est d'autant meilleure que la dynamique de la détection est grande. Dans

le cas où la corrélation entre le signal et la référence est le facteur limitatif, la méthode AF est avantageuse, car la corrélation est mesurée simultanément sur un grand nombre de pixels.

Un corrélateur AF performant a été réalisé. L'étude de ce prototype montre que ce sont les fluctuations de la répartition spatiale d'énergie des faisceaux interférents qui déterminent sa sensibilité. La recherche de la sensibilité minimale passe donc par une optimisation de la qualité des faisceaux interférents. Dans des conditions standards, l'appareil peut mesurer des signaux de corrélation avec une dynamique de 70 dB. Cette bonne sensibilité nous a permis de caractériser un laser picoseconde à colorant et doit permettre d'expérimenter la méthode de traitement optique de l'information proposée dans le chapitre 5. Par ailleurs, un premier prototype de corrélateur IQ a été réalisé. Sa dynamique est de 50 dB, déterminée par le bruit de détection. Un futur prototype réalisé avec du matériel performant doit permettre d'obtenir une meilleure sensibilité.



the 1990s, the number of people with a mental health problem has increased in the UK (Mental Health Act 1983).

There is a growing awareness of the need to improve the lives of people with mental health problems. The Department of Health (2000) has set out a strategy for mental health care in the UK. The strategy is based on the following principles:

- People with mental health problems should be treated as individuals and not as a group.
- People with mental health problems should be given the opportunity to participate in decisions about their care.
- People with mental health problems should be given the opportunity to live in their own homes and communities.

The strategy also sets out a number of objectives for mental health care in the UK:

- To reduce the number of people with mental health problems who are admitted to hospital.
- To improve the quality of care for people with mental health problems.
- To improve the support and services available to people with mental health problems.

The strategy also sets out a number of actions that need to be taken to achieve these objectives:

- To improve the training and skills of mental health professionals.
- To improve the availability of mental health services.
- To improve the support and services available to people with mental health problems.

The strategy also sets out a number of measures that need to be taken to improve the lives of people with mental health problems:

- To improve the housing and living conditions of people with mental health problems.
- To improve the employment opportunities of people with mental health problems.
- To improve the social and community support of people with mental health problems.

The strategy also sets out a number of measures that need to be taken to improve the lives of people with mental health problems:

- To improve the mental health of people with mental health problems.
- To improve the physical health of people with mental health problems.
- To improve the social and community support of people with mental health problems.

The strategy also sets out a number of measures that need to be taken to improve the lives of people with mental health problems:

- To improve the mental health of people with mental health problems.
- To improve the physical health of people with mental health problems.
- To improve the social and community support of people with mental health problems.





# Chapitre 4

## Corrélation de champ et MQOD en spectroscopie résolue en temps en lumière incohérente

### 4.1 Introduction

La spectroscopie optique résolue en temps s'applique à observer l'évolution des quantités atomiques ou moléculaires d'après l'analyse temporelle de signaux optiques résultant de l'interaction du système atomique avec un ou plusieurs champs lumineux. Le mélange à quatre ondes dégénérées (MQOD) est utilisé pour mesurer les temps de relaxation atomiques. Dans ce processus d'interaction, trois ondes de même fréquence excitent le système atomique pour engendrer un signal de même fréquence, qui constitue la quatrième onde. Une expérience standard met en œuvre des impulsions limitées par transformée de Fourier de durée plus courte que les temps de relaxation atomiques. Avec de telles impulsions, la résolution temporelle de l'expérience est limitée par la durée des impulsions.

En 1984, dans un article publié dans "Physical Review", Morita et Yajima démontrèrent théoriquement que le processus de mélange à quatre ondes permet de tirer parti de la corrélation entre les champs excitateurs et d'observer ainsi les relaxations atomiques avec

une résolution déterminée par le temps de cohérence de ces champs, indépendamment de leur durée [4]. Le temps de cohérence du champ est l'inverse de sa largeur spectrale. C'est le temps caractéristique de l'évolution de l'amplitude complexe du champ. Il coïncide avec la durée de l'impulsion dans le cas d'une impulsion limitée par transformée de Fourier, aussi qualifiée de cohérente. En revanche, le temps de cohérence est beaucoup plus court que la durée de l'impulsion dans le cas d'une impulsion (longue) de lumière incohérente. Ces impulsions sont aussi dites larges-bandes pour indiquer que leur largeur spectrale est très supérieure à l'inverse de leur durée.

La communication de Morita et Yajima marque le début de la spectroscopie résolue en temps en lumière incohérente. De nombreuses expériences ont été réalisées depuis [33]. Plusieurs considérations motivent cette recherche. Tout d'abord, pour une grande largeur spectrale, il est beaucoup plus facile de produire des impulsions de lumière incohérente que des impulsions limitées par transformée de Fourier. Ensuite, l'utilisation d'impulsions de durée subpicoseconde est rendue délicate par le phénomène de dispersion, alors que le temps de cohérence d'une impulsion est insensible à ce phénomène [15]. Enfin, l'utilisation d'impulsions longues permet, à énergie égale, de réduire la puissance instantanée de l'irradiation à laquelle est soumise l'échantillon.

De nombreuses mesures de temps de relaxation transverse  $T_2$  (relaxation de la cohérence atomique) ont été effectuées par mélange à quatre ondes en lumière incohérente [3,34,5,6,35]. Les techniques de détection classiques utilisées dans ces expériences, fondées sur l'enregistrement de l'énergie d'un signal, ne permettent pas une mesure précise du temps de relaxation longitudinal  $T_1$  (relaxation des populations atomiques) [36,37]. Il apparaît nécessaire de développer des méthodes de détection spécifiques aux expériences en lumière incohérente. Les mesures de corrélation croisée de champ répondent à ces nouvelles exigences.

La section 4.2 analyse la formation d'un signal de mélange à quatre ondes avec des impulsions limitées par transformée de Fourier de durée plus courte que les temps de rela-

xation atomiques. On en déduit le principe des expériences standards de mesure de temps de déphasage homogène  $T_2$  et de temps de vie  $T_1$ . La section 4.3 décrit la forme générale d'un signal MQOD engendré par des impulsions de durée quelconque. La section 4.4 montre comment des impulsions de lumière incohérente permettent de mesurer le temps de relaxation  $T_2$  d'après l'enregistrement de l'énergie d'un signal MQOD. Sur cet exemple est introduite une méthode diagrammatique adaptée à l'analyse rapide des corrélations mises en jeu dans une expérience en lumière incohérente [38]. A l'aide de cette méthode, la section 4.5 analyse les raisons de l'inadéquation des méthodes classiques de mesure d'énergie à l'observation de la relaxation des populations en lumière incohérente. Dans cette même section sont discutées les diverses méthodes de corrélation d'amplitude adaptées à la mesure de  $T_1$ . Cette discussion est appuyée par les conclusions de l'expérience que nous avons réalisée. Les détails de l'expérience sont donnés dans l'article présenté dans l'annexe C. La section 4.5 conclut le chapitre.

## 4.2 Mélange à quatre ondes dégénérées avec des impulsions courtes

Un signal de mélange à quatre ondes dégénérées résulte du rayonnement de la polarisation non-linéaire d'ordre trois, construite par interaction résonante d'une onde lumineuse avec un milieu matériel.

On considère un milieu gazeux, liquide ou solide, à l'équilibre thermodynamique. Les atomes ou molécules résonants du milieu sont modélisés par un système à deux niveaux, caractérisé par sa fréquence de résonance  $\omega_0$ , et les temps de relaxation longitudinal et transversal  $T_1$  et  $T_2$ . Le temps de relaxation  $T_2$  est la durée de vie de la cohérence du système. C'est l'inverse de la largeur homogène  $\Gamma_h$  de la transition. Il dépend de la durée de vie  $T_1$  du niveau supérieur de la transition et du temps de déphasage homogène  $T_2'$  des dipôles:

$$\Gamma_h = \frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2'} \quad (4.1)$$

On suppose que  $T_2$  est très inférieur à la durée de vie  $T_1$  du niveau supérieur de la transition, c'est à dire qu'on identifie  $T_2$  au temps de déphasage homogène  $T_2'$ . Cette hypothèse est vérifiée dans les gaz à haute pression ( $\gg 1$  Torr) et dans les milieux condensés à température ambiante.

La fréquence de résonance n'est pas identique pour tous les atomes actifs du milieu. Dans un gaz, la vitesse de déplacement d'un atome induit un déplacement Doppler de sa fréquence de résonance. La distribution des vitesses atomiques dans le gaz se traduit par une distribution inhomogène  $n(\omega_0)$  des fréquences de résonance. En phase condensée, c'est l'interaction des atomes avec leur environnement qui déplace leur fréquence de résonance. La distribution inhomogène des fréquences traduit la diversité des environnements. La largeur  $\Gamma_i$  de la distribution  $n(\omega_0)$  est la largeur inhomogène de la transition. L'inverse  $\Gamma_i^{-1}$  représente le temps de déphasage inhomogène des dipôles atomiques du milieu. Ce déphasage est à l'origine du phénomène d'écho de photon, qui sera décrit au chapitre 5. Dans ce chapitre, on ne s'intéresse pas au déphasage inhomogène. Pour des raisons de simplicité, la présentation qui suit ne prend pas en compte l'élargissement inhomogène.

Le milieu est décrit par des quantités macroscopiques. A l'instant  $t$ , l'ensemble des atomes actifs dans un volume macroscopique autour du point  $\vec{r}$ , est décrit par la différence  $n_p(\vec{r}; t)$  entre les nombres d'atomes dans les états supérieur et inférieur de la transition, et par la cohérence  $\rho(\vec{r}; t)$  de ces deux états. A l'équilibre thermodynamique, la plupart des atomes sont sur le niveau fondamental. La différence de population  $n_p(\vec{r}; t)$  est égale à  $-N$  où  $N$  est le nombre d'atomes par unité de volume. Par ailleurs, la cohérence est nulle.

On considère dans cette section le cas où l'onde excitatrice est constituée de trois impulsions limitées par transformée de Fourier  $E_1$ ,  $E_2$  et  $E_3$ . Ces impulsions sont décrites par leur champ électrique

$$E_j(t) = \tilde{E}_j(t) e^{i(\omega t - \vec{k}_j \cdot \vec{r})} + c.c. \quad j = 1, 2, 3 \quad (4.2)$$

où la fréquence  $\omega$  du champ est accordée à résonance avec la fréquence propre des dipôles du milieu, et  $\vec{k}_j$  est le vecteur d'onde de l'impulsion. L'amplitude complexe  $\tilde{E}_j(t)$  du champ

est une fonction régulière dont la largeur caractéristique définit la durée  $\tau_1$  de l'impulsion. On suppose que toutes les impulsions ont même durée et que celle-ci est très inférieure aux temps de relaxation  $T_1$  et  $T_2$ . Les différents temps caractéristiques de l'interaction s'ordonnent donc selon

$$\tau_1 \ll T_2 \ll T_1 \quad (4.3)$$

L'interaction de ces impulsions avec le milieu matériel est considérée dans l'hypothèse où l'échantillon est optiquement mince. Ceci signifie que les impulsions ne sont pas perturbées par la traversée de l'échantillon. Tous les dipôles voient le même champ exciteur. Par ailleurs, on se place en régime de champ faible. Cette hypothèse s'exprime par la condition

$$\Theta_j = \int 2\pi\mu\tilde{E}_j(t)/h dt \ll 1 \quad (4.4)$$

où  $\mu$  est le moment dipolaire associée à la transition résonante,  $h$  la constante de Planck et  $\Theta_j$  est l'aire de l'impulsion. La quantité  $2\pi\mu\tilde{E}_j(t)/h$  est la fréquence de Rabi de l'interaction. La condition de champ faible signifie que l'interaction est trop faible et/ou trop courte pour modifier de façon significative la répartition des atomes entre les deux niveaux de la transition.

L'impulsion  $E_1$  excite le milieu autour de l'instant  $t_1$ . Elle induit une cohérence dans les atomes résonants du milieu, proportionnelle à l'aire de l'impulsion:

$$\rho(\vec{r}; t_1) = in_p(\vec{r}; t_1) \Theta_1 e^{-i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}} + c.c. \quad (4.5)$$

Dans cette expression,  $n_p(\vec{r}; t_1) = -N$  est la différence de population à l'équilibre thermodynamique. Elle n'est pas perturbée par l'interaction avec l'impulsion  $E_1$ , en accord avec l'hypothèse de champ faible. Le facteur  $\exp -i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}$  exprime la relation de phase établie entre les atomes situés à des positions différentes dans l'échantillon et le facteur  $i$  indique que la cohérence est en quadrature de phase avec le champ exciteur.

Après l'excitation, la cohérence évolue librement. Elle oscille à sa fréquence propre  $\omega_0 = \omega$ , et se relaxe exponentiellement avec la constante de temps  $T_2$ . A l'instant  $t_2$



Dans cette expression les facteurs  $\exp -i(\vec{k}_3 - \vec{k}_2 + \vec{k}_1) \cdot \vec{r}$  et  $\exp -i(\vec{k}_3 - \vec{k}_2 + \vec{k}_1) \cdot \vec{r}$  expriment les relations de phase imposées par les trois champs excitateurs entre les dipôles atomiques de l'échantillon. Ce sont les champs  $\tilde{E}_1$ ,  $\tilde{E}_2^*$  et  $\tilde{E}_3$  pour le premier terme et les champs  $\tilde{E}_1^*$ ,  $\tilde{E}_2$  et  $\tilde{E}_3$  pour le second terme.

La polarisation d'ordre trois correspondant à la cohérence ci-dessus est simplement

$$P(\vec{r}; t) = \mu\rho(\vec{r}; t) \quad (4.11)$$

et le signal macroscopique rayonné par cette polarisation

$$E_s(\vec{r}; t) = -i \frac{\omega L}{2\epsilon_0 c} P(\vec{r}; t) \quad (4.12)$$

où le facteur  $-i$  indique que le signal est en quadrature de phase avec la polarisation et  $L$  est la longueur caractéristique de l'échantillon. Compte tenu de l'expression 4.10, le signal est la somme de deux termes:

$$\begin{aligned} E_s(\vec{r}; t) &= \tilde{E}_{S1}(t) e^{i\omega t} e^{-i(\vec{k}_3 - \vec{k}_2 + \vec{k}_1) \cdot \vec{r}} \\ &+ \tilde{E}_{S2}(t) e^{i\omega t} e^{-i(\vec{k}_3 + \vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}} \end{aligned} \quad (4.13)$$

avec

$$\tilde{E}_{S1}(t) = \frac{\mu L \omega N}{\epsilon_0 c} \Theta_3 \Theta_2^* \Theta_1 e^{-(t-t_3)/T_2} e^{-(t_3-t_2)/T_1} e^{-(t_2-t_1)/T_2} \quad (4.14)$$

$$\tilde{E}_{S2}(t) = \frac{\mu L \omega N}{\epsilon_0 c} \Theta_3 \Theta_2 \Theta_1^* e^{-(t-t_3)/T_2} e^{-(t_3-t_2)/T_1} e^{-(t_2-t_1)/T_2} \quad (4.15)$$

Les deux composantes du signal sont émises dans les directions  $\vec{k}_3 - \vec{k}_2 + \vec{k}_1$  et  $\vec{k}_3 + \vec{k}_2 - \vec{k}_1$  respectivement (figure 4.1). Dans le cas général, ces deux signaux sont angulairement séparés. On peut les interpréter comme résultant de la diffraction de l'impulsion  $E_3$  sur le réseau de population construit par les deux premières impulsions. Ils correspondent aux deux ordres de diffraction +1 et -1 du réseau, c'est à dire aux directions  $\vec{k}_3 \pm \vec{K}$ .

Chaque signal résulte de la superposition de tous les champs élémentaires rayonnés des différents points de l'échantillon. Cette superposition est constructive si les champs élémentaires sont en phase. Ceci est vérifié quand le champ élémentaire émis d'une extrémité

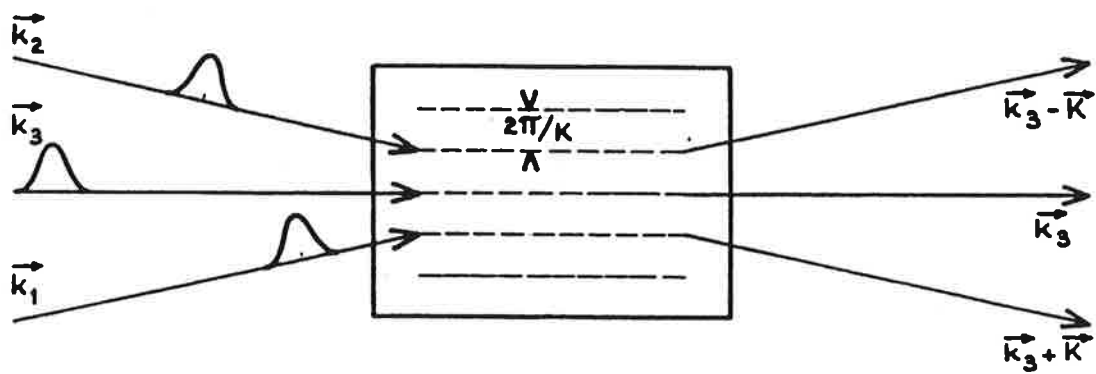


Figure 4.1: Mélange à quatre ondes avec des impulsions courtes: diffraction sur le réseau de population



de l'échantillon est, à l'autre extrémité, en phase avec le champ élémentaire émis de cette extrémité. C'est la condition d'accord de phase qui s'exprime pour le signal  $E_{S1}(t)$  comme

$$(|\vec{k}_3 - \vec{k}_2 + \vec{k}_1| - \omega/c)L \ll \pi \quad (4.16)$$

Pour un échantillon de grande dimension  $L$ , la condition d'accord de phase ne peut être vérifiée que pour certaines configurations particulières des vecteurs d'ondes. Elle ne peut être vérifiée simultanément pour les deux composantes du signal. La figure 4.2 donne l'exemple de la configuration "Boxcar".

Considérons la direction  $\vec{k}_3 - \vec{k}_2 + \vec{k}_1$ . Dans cette direction, on observe le signal  $E_{S1}(t)$ . L'énergie correspondante, définie comme

$$W_{S1} = \int |\tilde{E}_{S1}(t)|^2 dt \quad (4.17)$$

s'écrit simplement

$$W_{S1} = \frac{T_2}{2} \left( \frac{n_p \mu \omega L}{\epsilon_0 c} \right)^2 |\Theta_3|^2 |\Theta_2|^2 |\Theta_1|^2 e^{-2(t_3-t_2)/T_1} e^{-2(t_2-t_1)/T_2} \quad (4.18)$$

Cette expression met en évidence le principe des expériences destinées à l'observation de l'une ou l'autre des deux relaxations du système. Si on mesure l'énergie du signal en fonction du décalage entre les deux premières impulsions, on observe la relaxation de la cohérence. Si c'est le décalage entre la deuxième et la troisième impulsion qui varie, l'énergie du signal reflète la relaxation des populations.

La mesure de  $T_1$  par mélange à quatre ondes dégénérées consiste à sonder un réseau transitoire dont l'effacement résulte du retour des populations atomiques à leur état d'équilibre. Au lieu de mesurer l'énergie du signal MQOD, on peut mesurer l'absorption du milieu. C'est le principe d'une expérience pompe-sonde. Une impulsion pompe de direction  $\vec{k}_{pompe}$  excite le milieu autour de l'instant  $t_{pompe}$ , portant ainsi certains des atomes sur le niveau supérieur de la transition. Une deuxième impulsion, de direction  $\vec{k}_{sonde} \neq \vec{k}_{pompe}$ , vient sonder la transmission du milieu à un instant  $t_{sonde}$  ultérieur. Celle-ci est d'autant plus importante que le nombre d'atomes demeurés sur le niveau excité est grand. Par conséquent,

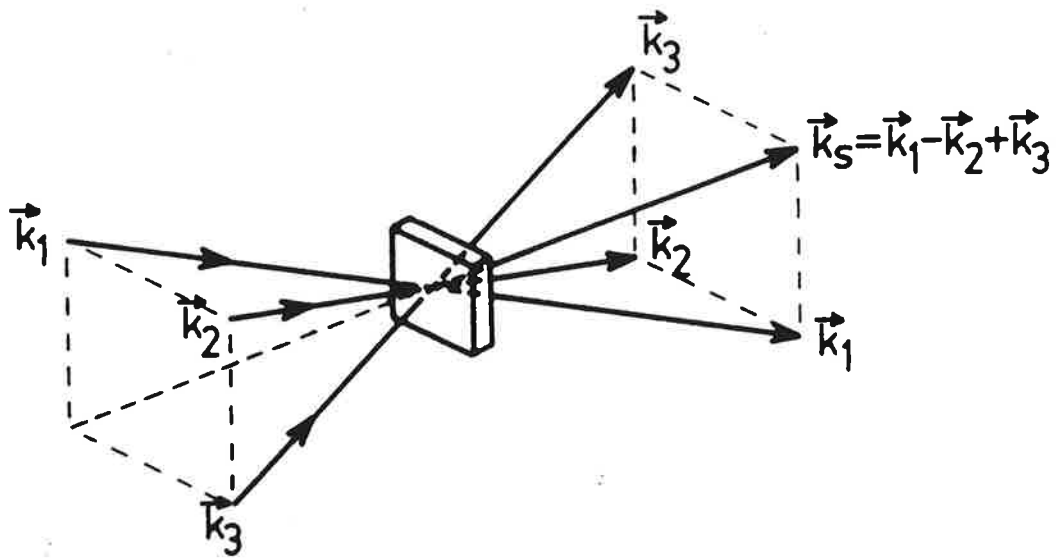


Figure 4.2: Configuration "Boxcar"

l'évolution de l'énergie de la sonde transmise par l'échantillon, en fonction du décalage temporel  $t_{sonde} - t_{pompe}$ , reflète la relaxation des atomes excités pendant cet intervalle de temps.

L'expérience pompe-sonde peut être décrite à l'aide du signal MQOD induit par les impulsions pompe et sonde dans la direction de la sonde. La perturbation de la différence de population induite par la pompe et demeurant à l'instant où elle est sondée s'écrit

$$\delta n_p(t_{sonde}) = 2N |\Theta_{pompe}|^2 e^{-(t_{sonde}-t_{pompe})/T_1} \quad (4.19)$$

où  $\Theta_{pompe}$  est l'aire de l'impulsion pompe. Cette expression correspond au cas particulier de l'expression 4.7 où les deux interactions construisant la perturbation sont produites par une seule et même impulsion. La perturbation est homogène dans tout l'échantillon. Il n'y a pas de réseau.

La cohérence induite par la sonde à l'instant  $t_{sonde}$  dans l'échantillon, et qui subsiste à l'instant  $t$  est

$$\rho(\vec{r}; t) = i n_p(t_{sonde}) \Theta_{sonde} e^{i\omega t} e^{-(t-t_{sonde})/T_2} e^{-i\vec{k}_{sonde} \cdot \vec{r}} + c.c. \quad (4.20)$$

où  $\Theta_{sonde}$  est l'aire de l'impulsion sonde. Dans cette expression,  $n_p(t_{sonde})$  est la somme de la différence de population d'équilibre  $-N$ , et de la perturbation  $\delta n_p(t_{sonde})$  de cette répartition. La polarisation correspondante, et le signal rayonné dans la direction de propagation de la sonde, sont donc sommes de deux termes. Le signal s'écrit

$$E_S(t) = (\tilde{E}_S^{(1)}(t) + \tilde{E}_S^{(3)}(t)) e^{i(\omega t - \vec{k}_{sonde} \cdot \vec{r})} + c.c. \quad (4.21)$$

où  $\tilde{E}_S^{(1)}(t)$  est l'amplitude complexe du signal linéaire en réponse à l'impulsion sonde:

$$\tilde{E}_S^{(1)}(t) = -\frac{\mu N \omega L}{2\epsilon_0 c} \Theta_{sonde} e^{-(t-t_{sonde})/T_2} \quad (4.22)$$

et  $\tilde{E}_S^{(3)}(t)$  est l'amplitude du signal non-linéaire d'ordre trois construit par la pompe et la sonde:

$$\tilde{E}_S^{(3)}(t) = \frac{\mu N \omega L}{\epsilon_0 c} \Theta_{sonde} |\Theta_{pompe}|^2 e^{-(t-t_{sonde})/T_2} e^{-(t_{sonde}-t_{pompe})/T_1} \quad (4.23)$$

Les signaux linéaire et non-linéaire sont respectivement en opposition de phase et en phase avec le champ sonde.

Le champ transmis par l'échantillon est la somme du champ sonde, du signal linéaire et du signal d'ordre trois. On mesure donc l'énergie

$$W_{transmis} = \int |\tilde{E}_{sonde}(t) + \tilde{E}_S^{(1)}(t) + \tilde{E}_S^{(3)}(t)|^2 dt \quad (4.24)$$

Cette expression se développe sous la forme

$$W_{transmis} = W_{sonde} + W^{(1)} + \Delta W^{(1)} + \Delta W^{(3)} \quad (4.25)$$

où  $W_{sonde}$  et  $W^{(1)}$  sont les énergies de la sonde et du signal linéaire respectivement et les deux autres termes décrivent les interférences entre la sonde et les signaux  $E_S^{(1)}(t)$  et  $E_S^{(3)}(t)$ . On a négligé dans cette expression le terme d'interférence entre ces deux signaux ainsi que l'énergie du signal  $E_S^{(3)}(t)$ .

Les termes d'interférences  $\Delta W^{(1)}$  et  $\Delta W^{(3)}$  sont explicitement

$$\begin{aligned} \Delta W^{(1)} &= \int \tilde{E}_S^{(1)}(t) \tilde{E}_{sonde}^*(t) dt + c.c. \\ &= -T_2 \frac{\mu N \omega L}{\epsilon_0 c} |\Theta_{sonde}| \end{aligned} \quad (4.26)$$

$$\begin{aligned} \Delta W^{(3)} &= \int \tilde{E}_S^{(3)}(t) \tilde{E}_{sonde}^*(t) dt + c.c. \\ &= 2T_2 \frac{\mu N \omega L}{\epsilon_0 c} |\Theta_{sonde}| |\Theta_{pompe}|^2 e^{-(t_{sonde} - t_{pompe})/T_1} \end{aligned} \quad (4.27)$$

Le terme  $\Delta W^{(1)}$  est négatif. Il correspond aux interférences destructives entre la sonde et le signal linéaire. Le terme  $\Delta W^{(3)}$  décrit lui les interférences constructives entre le signal non-linéaire et la sonde. Il est proportionnel au nombre d'atomes sur le niveau excité au moment où la sonde interagit avec l'échantillon, ce que traduit le facteur  $\exp -(t_{sonde} - t_{pompe})/T_1$ .

L'avantage d'une mesure pompe-sonde est celui d'une expérience homodyne ou hétérodyne. Au lieu de détecter l'énergie d'un signal faible, on mesure le produit de ce signal avec un champ intense. On peut donc espérer obtenir une meilleure sensibilité. En revanche la mise en oeuvre d'une expérience pompe-sonde est délicate. Sur l'énergie mesurée, la relaxation apparaît comme une modulation très faible sur un fond constant. Son observation nécessite l'emploi d'une technique de détection synchrone.

### 4.3 Signal MQOD avec des impulsions longues

La section précédente décrit la formation d'un signal MQOD par des impulsions courtes limitées par transformée de Fourier. Les principes des expériences permettant d'observer les relaxations du système résonant avec ce type de signal sont exposés. Ces expériences reposent sur l'utilisation d'impulsions de durée plus courte que la relaxation que l'on désire observer. De cette manière les intervalles de temps pendant lesquels les quantités atomiques évoluent librement sont bien définis à l'échelle des temps de relaxation. Avec les techniques de la spectroscopie MQOD en lumière incohérente, on peut observer les relaxations atomiques avec une résolution temporelle beaucoup plus courte que la durée des impulsions. Avant de considérer ces techniques, on décrit dans cette section la formation d'un signal MQOD par des impulsions longues. Dans cette section et dans les suivantes, on ne fait plus apparaître dans les expressions mathématiques les facteurs de proportionnalité qui ne sont pas utiles à la discussion.

On considère comme précédemment trois impulsions décrites par leur champ électrique (éq. 4.2). On suppose maintenant que la durée des impulsions est grande devant les temps de relaxation  $T_1$  et  $T_2$  des atomes actifs du milieu et que les trois impulsions se chevauchent temporellement dans l'échantillon. Dans ces conditions, le champ vu par le milieu est la somme des trois champs  $E_j(\vec{r}; t)$ . On l'écrit sous la forme

$$E(\vec{r}; t) = \tilde{E}(\vec{r}; t) e^{i\omega t} + c.c. \quad (4.28)$$

où l'amplitude complexe  $\tilde{E}(\vec{r}; t)$  est la somme

$$\tilde{E}(\vec{r}; t) = \tilde{E}_1(t) e^{-i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}} + \tilde{E}_2(t) e^{-i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}} + \tilde{E}_3(t) e^{-i\vec{k}_3 \cdot \vec{r}} \quad (4.29)$$

L'amplitude complexe du signal MQOD construit par ce champ dans le milieu est donnée par l'expression

$$\tilde{E}_S(\vec{r}; t) = \int_{-\infty}^t dt_3 \tilde{E}(\vec{r}; t_3) e^{-(t-t_3)/T_2} \left( \int_{-\infty}^{t_3} dt_2 \tilde{E}^*(\vec{r}; t_2) e^{-(t_3-t_2)/T_1} \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \tilde{E}(\vec{r}; t_1) e^{-(t_2-t_1)/T_2} + c.c. \right) \quad (4.30)$$

L'interprétation physique de cette expression se déduit de celle donnée pour la polarisation MQOD construite par des impulsions courtes. L'intégrale de droite représente la cohérence atomique dans l'échantillon à un instant  $t_2$ , due à une première interaction avec le champ excitateur. Cette cohérence est la somme de toutes les cohérences induites aux instants  $t_1$  antérieurs, et relaxées pendant un intervalle de temps  $t_2 - t_1$ . L'intégrale centrale fait la somme de tous les termes de population construits aux instants  $t_2$  antérieurs à un instant  $t_3$  par une deuxième excitation. L'intégrale de gauche décrit la formation de la polarisation d'ordre trois dont on observe le rayonnement à l'instant  $t$ . Remarquons que la perturbation des populations est construite par les champs conjugués  $\tilde{E}$  et  $\tilde{E}^*$ . Ceci tient au fait que les populations, contrairement à la cohérence, ne sont pas des quantités oscillantes.

L'introduction du développement 4.29 de  $\tilde{E}(\vec{r}; t)$  dans l'expression ci-dessus fait apparaître le champ signal comme la somme de 54 termes que l'on peut regrouper d'après leurs directions d'émission. La direction d'émission d'un de ces termes est définie par l'un des vecteurs

$$\vec{k}_l - \vec{k}_m + \vec{k}_n \quad l, m, n = 1, 2, 3 \quad (4.31)$$

Si les trois champs excitateurs se propagent selon des directions différentes, il y a 12 directions d'émission différentes, définies par les vecteurs

$$\begin{aligned} \vec{k}_l & \quad l = 1, 2, 3 \\ 2\vec{k}_l - \vec{k}_m & \quad l \neq m = 1, 2, 3 \\ \vec{k}_l - \vec{k}_m + \vec{k}_n & \quad l \neq m \neq n = 1, 2, 3 \end{aligned} \quad (4.32)$$

Pour les directions distinctes de celles des champs excitateurs, l'émission d'un signal ne peut avoir lieu que si la condition d'accord de phase est vérifiée. Dans un échantillon de dimension grande par rapport à la longueur d'onde, on ne peut satisfaire cette condition que pour une seule direction.

Considérons le signal émis dans la direction  $\vec{k}_3 - \vec{k}_2 + \vec{k}_1$ . Sa construction met en jeu les champs  $\tilde{E}_1$ ,  $\tilde{E}_2^*$  et  $\tilde{E}_3$ . Le champ  $\tilde{E}_2^*$  est nécessairement impliqué dans la formation du terme de population. Il fournit la première ou la seconde excitation. Dans les deux cas, le

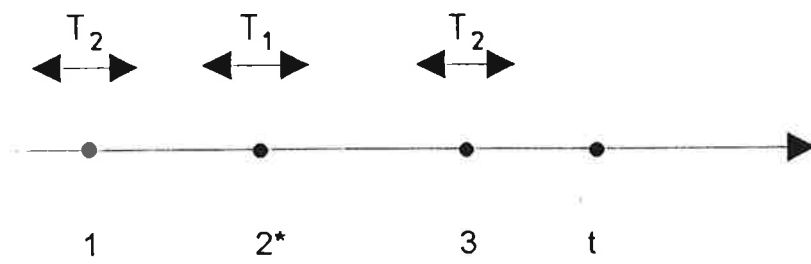


Figure 4.3: Diagramme d'interaction

rôle des champs  $\tilde{E}_1$  et  $\tilde{E}_3$  peut être interverti. Le signal possède donc quatre composantes dont les amplitudes complexes s'écrivent

$$\tilde{E}_{S1}(t) = \int_{-\infty}^t dt_3 \tilde{E}_3(t_3) e^{-(t-t_3)/T_2} \int_{-\infty}^{t_3} dt_2 \tilde{E}_2^*(t_2) e^{-(t_3-t_2)/T_1} \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \tilde{E}_1(t_1) e^{-(t_2-t_1)/T_2} \quad (4.33)$$

$$\tilde{E}_{S2}(t) = \int_{-\infty}^t dt_3 \tilde{E}_3(t_3) e^{-(t-t_3)/T_2} \int_{-\infty}^{t_3} dt_2 \tilde{E}_1(t_2) e^{-(t_3-t_2)/T_1} \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \tilde{E}_2^*(t_1) e^{-(t_2-t_1)/T_2} \quad (4.34)$$

$$\tilde{E}_{S3}(t) = \int_{-\infty}^t dt_3 \tilde{E}_1(t_3) e^{-(t-t_3)/T_2} \int_{-\infty}^{t_3} dt_2 \tilde{E}_2^*(t_2) e^{-(t_3-t_2)/T_1} \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \tilde{E}_3(t_1) e^{-(t_2-t_1)/T_2} \quad (4.35)$$

$$\tilde{E}_{S4}(t) = \int_{-\infty}^t dt_3 \tilde{E}_1(t_3) e^{-(t-t_3)/T_2} \int_{-\infty}^{t_3} dt_2 \tilde{E}_3(t_2) e^{-(t_3-t_2)/T_1} \int_{-\infty}^{t_2} dt_1 \tilde{E}_2^*(t_1) e^{-(t_2-t_1)/T_2} \quad (4.36)$$

Les signaux  $E_{S1}$  et  $E_{S2}$  résultent de la diffraction de l'impulsion  $E_3$  sur un réseau construit par les impulsions  $E_1$  et  $E_2$ . Pour les signaux  $E_{S3}$  et  $E_{S4}$ , ce sont les impulsions  $E_2$  et  $E_3$  qui construisent un réseau, et l'impulsion  $E_1$  qui est diffractée.

On peut représenter par des diagrammes les expressions ci-dessus. La figure 4.3 donne le diagramme d'interaction du champ  $\tilde{E}_{S1}(t)$ . L'axe représente le temps. On observe le signal à l'instant  $t$ , marqué d'un curseur fixe. Les trois autres curseurs, 1, 2\* et 3, représentent les instants des trois interactions successives avec les champs  $\tilde{E}_1$ ,  $\tilde{E}_2^*$  et  $\tilde{E}_3$  respectivement. Chacun de ces curseurs est libre de se déplacer sur l'axe des temps, à condition que soit respectée la causalité. Ainsi par exemple, le curseur 1 ne peut pas dépasser le curseur 2\*. Le déplacement des curseurs est de plus limité par les temps de relaxation du système. Les polarisations atomiques d'ordre trois dont le rayonnement participe à la polarisation macroscopique à l'instant  $t$  ont été créées aux instants  $t_3$  tels que  $t - t_3 < T_2$ . Le curseur 3 est donc libre de se déplacer sur un intervalle de longueur  $T_2$  avant  $t$ . De même, le curseur 2\* se déplace sur un intervalle de longueur  $T_1$  avant le curseur 3, et le curseur 1 sur un intervalle de longueur  $T_2$  avant 2\*. L'ordre de grandeur de l'amplitude du champ à l'instant  $t$  est donc proportionnel à  $T_2^2 T_1$ .



## 4.4 Mesure du temps de déphasage homogène en lumière incohérente

Avec les impulsions longues considérées ci-dessus, les instants de formation des quantités atomiques sont mal définis à l'échelle des temps de relaxation. Si ces impulsions sont cohérentes, l'analyse temporelle du signal MQOD ne peut pas refléter l'évolution caractéristique de ces quantités. Mais si elles sont constituées de lumière incohérente dont le temps de cohérence est plus court que les temps d'évolution du système atomique, il devient possible d'observer cette évolution. Cette section analyse une expérience type de mesure du temps de déphasage homogène en lumière incohérente.

Pour une impulsion cohérente, l'amplitude complexe du champ est constante pendant toute la durée de l'impulsion. Pour une impulsion de lumière incohérente, l'amplitude complexe du champ fluctue aléatoirement tout au long de la durée de l'impulsion. Le temps caractéristique de ces fluctuations est le temps de cohérence  $\tau_c$  de l'impulsion. Il est très inférieur à sa durée  $\tau_l$ . On peut imaginer cette impulsion comme un train de  $\tau_l/\tau_c$  impulsions élémentaires juxtaposées, limitées par transformée de Fourier. La phase relative de ces impulsions est aléatoire, mais chaque élément est cohérent sur toute sa durée.

On reprend les trois impulsions longues de la section précédente. On suppose que les impulsions  $E_1$  et  $E_2$  sont issues d'une même source de lumière incohérente dont le temps de cohérence est très inférieur au temps de relaxation  $T_2$ , et que l'impulsion  $E_1$  précède l'impulsion  $E_2$ . On écrit donc

$$E_2(t) = E_1(t - T) \quad T > 0 \quad (4.37)$$

Cette relation signifie que l'impulsion  $E_2$  est une réplique décalée dans le temps de l'impulsion  $E_1$ . Autrement dit, chaque impulsion élémentaire qui constitue l'impulsion  $E_1$  possède son élément jumeau dans l'impulsion  $E_2$ . On dit que les impulsions  $E_1$  et  $E_2$  sont corrélées. Concernant l'impulsion  $E_3$ , on suppose qu'elle est décorrélée des deux autres. Sa durée et son temps de cohérence sont quelconques.

On considère le signal MQOD résultant de la diffraction de l'impulsion  $E_3$  sur le réseau formé par les impulsions  $E_1$  et  $E_2$ . Il est décrit par l'équation 4.33 de la section précédente. Il peut être analysé à l'aide des impulsions élémentaires de  $E_1$  et  $E_2$ . Les réseaux construits par deux impulsions élémentaires  $l$  et  $m$  non-jumelles de  $E_1$  et  $E_2$  sont, à un instant  $t_2$ , décrits par

$$\delta n_{p,lm}(\vec{r}; t_2) = \cos(\vec{K} \cdot \vec{r} + \varphi_{lm}) e^{-(t_m - t_1)/T_2} e^{-(t_2 - t_m)/T_1} \quad (4.38)$$

où  $\varphi_{lm}$  est la phase relative des deux éléments  $l$  et  $m$ , et les instants  $t_1$  et  $t_m$  représentent les positions de ces éléments dans les impulsions  $E_1$  et  $E_2$ . Le nombre des réseaux qui diffractent un signal à l'instant  $t$  est  $T_1 T_2 / \tau_c^2$ . La phase de ces différents réseaux est aléatoire. Il s'ensuit que les signaux résultants de la diffraction du champ sur ces réseaux n'ont aucune relation de phase mutuelle. Ils sont incohérents. L'énergie diffractée est la somme des énergies de ces signaux. Elle est proportionnelle à  $T_1 T_2 / \tau_c^2$ . Il va de soit que cette énergie ne dépend pas du décalage  $T$  entre les impulsions  $E_1$  et  $E_2$  puisque les instants  $t_m$  et  $t_l$  sont quelconques.

A la différence des réseaux incohérents décrits ci-dessus, les réseaux construits par l'ensemble des paires d'éléments jumeaux des impulsions  $E_1$  et  $E_2$  ont tous la même phase. C'est la phase géométrique des impulsions  $E_1$  et  $E_2$ . De plus, ils ont tous été construits par deux excitations séparées dans le temps du même intervalle  $T$ . A l'instant  $t_2$ , ces réseaux sont décrits par

$$\delta n_{p,ll}(\vec{r}; t_2) = \cos(\vec{K} \cdot \vec{r} + \varphi) e^{-T/T_2} e^{-(t_2 - t_1)/T_1} \quad (4.39)$$

où  $t_1$  est la position de l'impulsion élémentaire dans l'impulsion  $E_1$ . Le nombre des réseaux est  $T_1 / \tau_c$ , il est plus petit que le nombre de réseaux incohérents. Mais ces réseaux sont en phase. Ils sont cohérents. L'amplitude du signal résultant de la diffraction du champ sur ces réseaux est la somme des amplitudes des signaux élémentaires. L'énergie correspondante est donc proportionnelle à  $(T_1 / \tau_c)^2$  et donc supérieure à l'énergie diffractée par les réseaux incohérents dans le rapport  $T_1 / T_2$ . De plus, elle est modulée par le facteur  $\exp -2T/T_2$ , ce que l'on cherche à observer.

Cette analyse intuitive met en évidence l'importance de la condition  $\tau_c \ll T_2$  et de la corrélation entre les impulsions  $E_1$  et  $E_2$ . Si la première condition n'est pas vérifiée, l'instant de formation de la cohérence est mal défini à l'échelle de sa relaxation. C'est l'équivalent de la condition  $\tau_1 \ll T_2$  d'une expérience en lumière cohérente. Par ailleurs, si les impulsions  $E_1$  et  $E_2$  ne sont pas corrélées, l'intervalle de temps  $T$  n'a aucune signification particulière. C'est cette corrélation qui donne un poids plus important aux réseaux construits par des interactions séparées de l'intervalle de temps  $T$ .

La présentation ci-dessus ne rend pas compte de tous les termes qui contribuent à l'énergie du signal rayonné dans la direction  $\vec{k}_3 - \vec{k}_2 + \vec{k}_1$ . Les paragraphes qui suivent analysent de manière plus complète cette énergie. Une méthode diagrammatique adaptée à l'évaluation rapide d'une expérience en lumière incohérente est introduite à cette occasion. Cette méthode nous sera utile dans la section suivante.

La lumière incohérente est un phénomène statistique. La fonction d'autocorrélation du champ est définie comme

$$g(T) = \langle \tilde{E}_j(t) \tilde{E}_j^*(t - T) \rangle / \langle |\tilde{E}_j|^2 \rangle \quad (4.40)$$

où les signes  $\langle \rangle$  symbolisent la moyenne sur la statistique du champ. Le temps de cohérence est la largeur caractéristique de cette fonction:

$$\tau_c = \left| \int g(t) dt \right| \quad (4.41)$$

Dans la définition de  $g(T)$ , le dénominateur représente l'intensité moyenne du champ, qu'on suppose constante sur toute la durée de l'impulsion pour simplifier. Par ailleurs, le numérateur est implicitement supposé indépendant de  $t$ . Ceci signifie que la statistique du champ est stationnaire. La fonction d'autocorrélation est la même à chaque instant. La fonction  $g(T)$  dépend à priori de l'impulsion considérée, de même que la durée de l'impulsion. On supposera toujours pour simplifier les notations que les impulsions  $E_j$  ont même fonction d'autocorrélation, et même durée. Ceci correspond bien aux situations expérimentales.

On considère la situation où les temps caractéristiques de l'expérience s'ordonnent selon

$$\tau_c \ll T_2 \ll \tau_1 \ll T_1 \quad (4.42)$$

La première inégalité est la condition pour que  $T_2$  puisse être résolue. Elle signifie aussi que le spectre des impulsions est beaucoup plus large que la raie homogène de la transition considérée. De ce point de vue, la situation est identique à l'expérience menée avec des impulsions de lumière cohérente, où  $\tau_1 \ll T_2$ . La deuxième inégalité signifie que la mémoire de phase atomique est plus courte que la durée des impulsions. Par conséquent, pour que les impulsions  $E_1$  et  $E_2$  construisent ensemble un réseau de population, elles doivent nécessairement se chevaucher. La dernière inégalité en revanche autorise la diffraction de la troisième impulsion,  $E_3$ , sur le réseau de population construit par les deux premières, sans que les trois impulsions se chevauchent temporellement. Ceci réduit le nombre de termes participant au signal. Les termes  $E_{S3}$  et  $E_{S4}$  des équations 4.35 et 4.36, qui correspondent à un réseau construit par les impulsions  $E_2$  et  $E_3$  n'existent pas dans cette situation.

La lumière incohérente est une quantité fluctuante. L'énergie du signal est caractérisée par une moyenne statistique sur les fluctuations des champs:

$$W_S = \int \langle |E_S(t)|^2 \rangle dt \quad (4.43)$$

Le signal est constitué des deux composantes  $E_{S1}(t)$  et  $E_{S2}(t)$ . Son énergie est la somme de quatre termes:

$$W_S = \int \left( \langle |\tilde{E}_{S1}(t)|^2 \rangle + \langle |\tilde{E}_{S2}(t)|^2 \rangle + \langle \tilde{E}_{S1}(t)\tilde{E}_{S2}(t)^* \rangle + \langle \tilde{E}_{S2}(t)\tilde{E}_{S1}(t)^* \rangle \right) dt \quad (4.44)$$

Considérons le premier terme de cette expression. Il représente l'énergie du signal  $E_{S1}(t)$ . C'est le terme pertinent pour la mesure de  $T_2$ . Il s'écrit

$$W_{S1} = \int dt \int_{-\infty}^t dt_3 \int_{-\infty}^{t_3} dt'_3 \int_{-\infty}^{t'_3} dt_2 \int_{-\infty}^{t_2} dt'_2 \int_{-\infty}^{t'_2} dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt'_1 M(t_1; t_2; \dots; t'_3) R(t_1; t_2; \dots; t'_3) \quad (4.45)$$

où  $M(t_1; \dots; t'_3)$  est la moyenne statistique à six champs:

$$M(t_1; \dots; t'_3) = \langle \tilde{E}_3(t_3)\tilde{E}_2^*(t_2)\tilde{E}_1(t_1)\tilde{E}_3^*(t'_3)\tilde{E}_2^*(t'_2)\tilde{E}_1^*(t'_1) \rangle \quad (4.46)$$

et  $R(t_1; \dots; t'_3)$  regroupe les facteurs de relaxation.

L'évaluation de l'expression 4.45 est plus simple qu'il n'y paraît. On commence par évaluer la moyenne  $M$ . Puisque le champ  $E_3(t)$  est statistiquement indépendant des deux autres, celle-ci est en fait le produit de deux moments statistiques indépendants, d'ordre deux et quatre respectivement:

$$M = \langle \tilde{E}_3(t_3) \tilde{E}_3^*(t'_3) \rangle \times \langle \tilde{E}_2^*(t_2) \tilde{E}_1(t_1) \tilde{E}_2(t'_2) \tilde{E}_1^*(t'_1) \rangle \quad (4.47)$$

Pour évaluer simplement le moment d'ordre quatre, on le développe en fonction de moments d'ordre deux:

$$\begin{aligned} \langle \tilde{E}_2^*(t_2) \tilde{E}_1(t_1) \tilde{E}_2(t'_2) \tilde{E}_1^*(t'_1) \rangle &= \langle \tilde{E}_2^*(t_2) \tilde{E}_1(t_1) \rangle \times \langle \tilde{E}_2(t'_2) \tilde{E}_1^*(t'_1) \rangle \\ &+ \langle \tilde{E}_2^*(t_2) \tilde{E}_2(t'_2) \rangle \times \langle \tilde{E}_1(t_1) \tilde{E}_1^*(t'_1) \rangle \end{aligned} \quad (4.48)$$

Cette forme de développement particulièrement simple suppose que la statistique du champ est gaussienne. Cette statistique s'applique bien aux sources laser larges-bandes [34].

Avec le développement ci-dessus, la moyenne  $M$  apparaît comme la somme de deux termes  $M_a$  et  $M_b$  d'expressions:

$$M_a = \langle |E_3|^2 \rangle \langle |E_2|^2 \rangle \langle |E_1|^2 \rangle g(t'_3 - t_3) g(t_2 - t_1 - T) g(t'_2 - t'_1 - T) \quad (4.49)$$

$$M_b = \langle |E_3|^2 \rangle \langle |E_2|^2 \rangle \langle |E_1|^2 \rangle g(t'_3 - t_3) g(t_2 - t'_2) g(t_1 - t'_1) \quad (4.50)$$

où on a fait apparaître la fonction d'autocorrélation des champs.

Après substitution dans l'équation 4.45, on obtient l'énergie du signal  $E_{S1}$  comme une somme de deux termes  $W_{S1a}$  et  $W_{S1b}$  que l'on peut évaluer à l'aide de diagrammes de corrélation. Le diagramme correspondant au terme  $W_{S1b}$  est représenté sur la figure 4.4.b. Il est constitué des diagrammes d'interaction des champs  $\tilde{E}_{S1}(t)$  et  $\tilde{E}_{S1}^*(t)$  sur lesquels on a représenté les corrélations à deux champs qui interviennent dans le terme  $W_{S1b}$ . Ainsi, les curseurs 3 et 3\* sont reliés par un trait vertical pour représenter la corrélation  $\langle \tilde{E}_3(t_3) \tilde{E}_3^*(t'_3) \rangle$ . Cette liaison est rigide à  $\tau_c$  près. Le déplacement du curseur 3\* par rapport à celui de 3 est limité à un intervalle de longueur  $\tau_c$ . Cette liaison rigide exprime la condition  $t_3 \simeq t'_3$  pour que la corrélation  $\langle \tilde{E}_3(t_3) \tilde{E}_3^*(t'_3) \rangle \propto g(t_3 - t'_3)$  soit non nulle. De

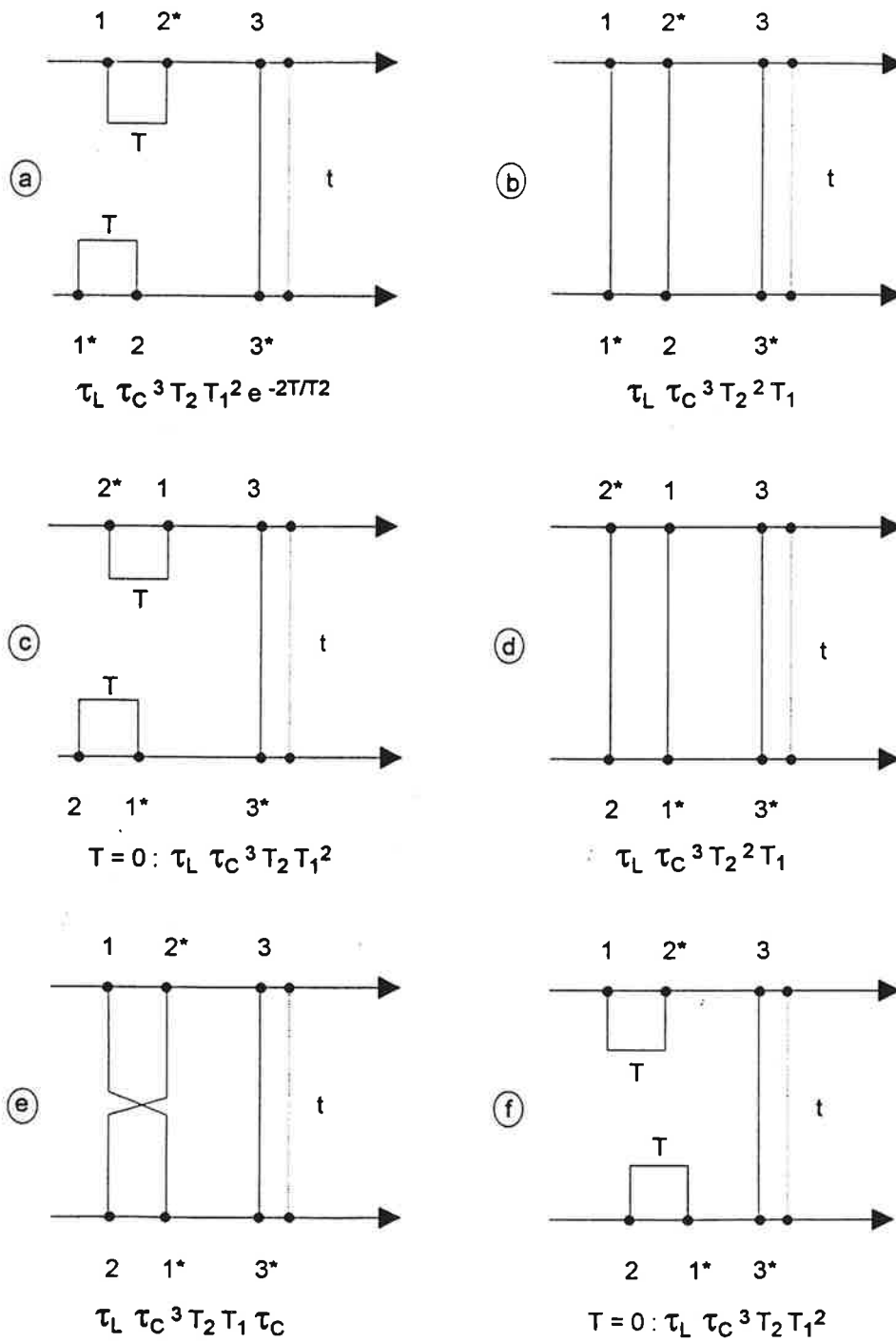


Figure 4.4: Mesure de  $T_2$ , diagrammes de corrélation

même, les curseurs 2 et 2\* d'une part, 1 et 1\* d'autre part, sont liés par un trait rigide pour exprimer les contraintes imposées par les corrélations  $\langle \tilde{E}_2(t_2)\tilde{E}_2^*(t'_2) \rangle$  et  $\langle \tilde{E}_1(t_1)\tilde{E}_1^*(t'_1) \rangle$  respectivement.

Une fois ces contraintes exprimées, l'analyse des degrés de liberté des différents curseurs permet d'évaluer les six intégrales qui composent le terme  $W_{S1b}$ . Les mouvements des curseurs 3, 2\* et 1 sont limités uniquement par les relaxations atomiques. Ils sont libres de se déplacer sur des intervalles de longueur  $T_2$ ,  $T_1$  et  $T_2$  respectivement. En revanche, les mouvements des curseurs 3\*, 2 et 1\* sont limités à des intervalles de longueur  $\tau_c$ . Quant au curseur  $t$ , qui représente l'intégration sur la durée du signal, il se déplace sur un intervalle de longueur  $\tau_1$ . Par conséquent, l'intégrale multiple qui constitue le terme  $W_{S1b}$  est proportionnelle à  $\tau_1 T_1 T_2^2 \tau_c^3$ . On peut également déduire de ce diagramme, que le terme  $W_{S1b}$  ne dépend pas du décalage  $T$ . En définitive  $W_{S1b}$  s'écrit

$$W_{S1b} = \tau_1 \tau_c^3 T_1 T_2^2 \langle |E_3|^2 \rangle \langle |E_2|^2 \rangle \langle |E_1|^2 \rangle \quad (4.51)$$

Ce terme représente la contribution des réseaux incohérents à l'énergie du signal  $E_{S1}$ .

La figure 4.4.a représente le diagramme de corrélation du terme  $W_{S1a}$ . On peut y lire, comme sur le diagramme précédent, la condition  $t_3 \simeq t'_3$  pour que la corrélation  $\langle \tilde{E}_3(t_3)\tilde{E}_3^*(t'_3) \rangle$  soit non-nulle. On y voit l'expression des corrélations  $\langle \tilde{E}_2(t_2)\tilde{E}_1^*(t_1) \rangle$  et  $\langle \tilde{E}_1(t'_1)\tilde{E}_2^*(t'_2) \rangle$ . Les curseurs 2\* et 1 d'une part, 2 et 1\* d'autre part, sont liés et tenus à distance  $T$  l'un de l'autre, conséquence du décalage  $T$  entre les impulsions corrélées  $E_1$  et  $E_2$ . Physiquement, ceci signifie que toutes les contributions au terme  $W_{S1a}$  correspondent à un schéma d'excitation dans lequel un temps  $T$  s'est écoulé entre la première et la seconde excitation. L'amplitude de ce terme est donc modulée par le facteur  $\exp -2T/T_2$  où le facteur 2 résulte du fait que le facteur  $\exp -T/T_2$  apparaît sur les deux axes du diagrammes. Par ailleurs, on vérifie aisément que le diagramme est d'ordre  $\tau_1 T_1^2 T_2 \tau_c^3$ . Le terme  $W_{S1a}$  s'écrit par conséquent

$$W_{S1a}(T) = \tau_1 \tau_c^3 T_1^2 T_2 \langle |E_3|^2 \rangle \langle |E_2|^2 \rangle \langle |E_1|^2 \rangle e^{-2T/T_2} \quad (4.52)$$

Il représente l'énergie diffractée par les réseaux cohérents.

De cette analyse on déduit que sur le graphe de l'énergie  $W_{S1}(T)$ , la relaxation des populations apparaît sur un fond constant dit fond incohérent dans le rapport  $T_1/T_2$ . On retrouve ainsi le résultat de l'analyse intuitive présentée en début de section. Puisque  $T_1 \gg T_2$ , le fond incohérent ne perturbe pas l'observation de la relaxation. Remarquons que l'existence du terme pertinent  $W_{S1a}(T)$  est subordonnée à la corrélation entre les impulsions  $E_1$  et  $E_2$ . Sinon, seul le terme  $W_{S1b}$  existe, qui ne permet pas de mesurer  $T_2$ .

L'utilisation des diagrammes permet d'évaluer les autres contributions à l'énergie  $W_S$ . Prenons le terme  $W_{S2}$ . Il représente l'énergie du signal  $E_{S2}$ . Les diagrammes de corrélation correspondant sont donc constitués de deux axes qui représentent respectivement les diagrammes d'interaction des champs  $\tilde{E}_{S2}(t)$  et  $\tilde{E}_{S2}^*(t)$ . On cherche ensuite à tracer trois lignes de corrélation à deux champs. Les différents diagrammes obtenus de la sorte traduisent les différents termes issus du développement du moment statistique  $\langle \tilde{E}_{S2}(t)\tilde{E}_{S2}^*(t) \rangle$ . Dans le diagramme le plus simple, chaque champ est corrélé avec son conjugué (figure 4.4.d). C'est l'équivalent du diagramme 4.4.b. Sa contribution est négligeable par rapport à celle du diagramme pertinent (figure 4.4.a). Comme le champ  $\tilde{E}_3(t_3)$  ne peut être corrélé qu'avec son conjugué, il ne reste alors qu'un seul diagramme, représenté sur la figure 4.4.c. Le poids de ce diagramme dépend de la corrélation entre les champs  $\tilde{E}_2(t_1)$  et  $\tilde{E}_1^*(t_2)$ , où  $t_2 > t_1$ . Puisque c'est l'impulsion  $E_1$  qui précède l'impulsion  $E_2$  d'une quantité  $T$ , cette corrélation est nulle sauf si  $T < \tau_c$ . Pour  $T = 0$ , le poids de ce diagramme est le même que celui du diagramme pertinent. Sur le graphe  $W_S(T)$ , ce diagramme se traduit donc par un pic de largeur  $\tau_c$  autour de  $T = 0$  dit pic cohérent.

Parmi les diagrammes correspondant au troisième terme de  $W_S(T)$ , seul le diagramme 4.4.f est de poids non négligeable. Il contribue au pic cohérent. Quant au dernier terme de  $W_S(T)$ , ces diagrammes sont les mêmes que ceux du troisième.

Si  $T < 0$ , c'est à dire si l'impulsion  $E_2$  précède l'impulsion  $E_1$ , le rôle des signaux  $E_{S1}$  et  $E_{S2}$  est inversé. La fonction  $W_S(T)$  est paire. La figure 4.5 résume les caractéristiques du graphe  $W_S(T)$ . Elle est constituée d'un pic cohérent autour de  $T = 0$ . Dans les ailes



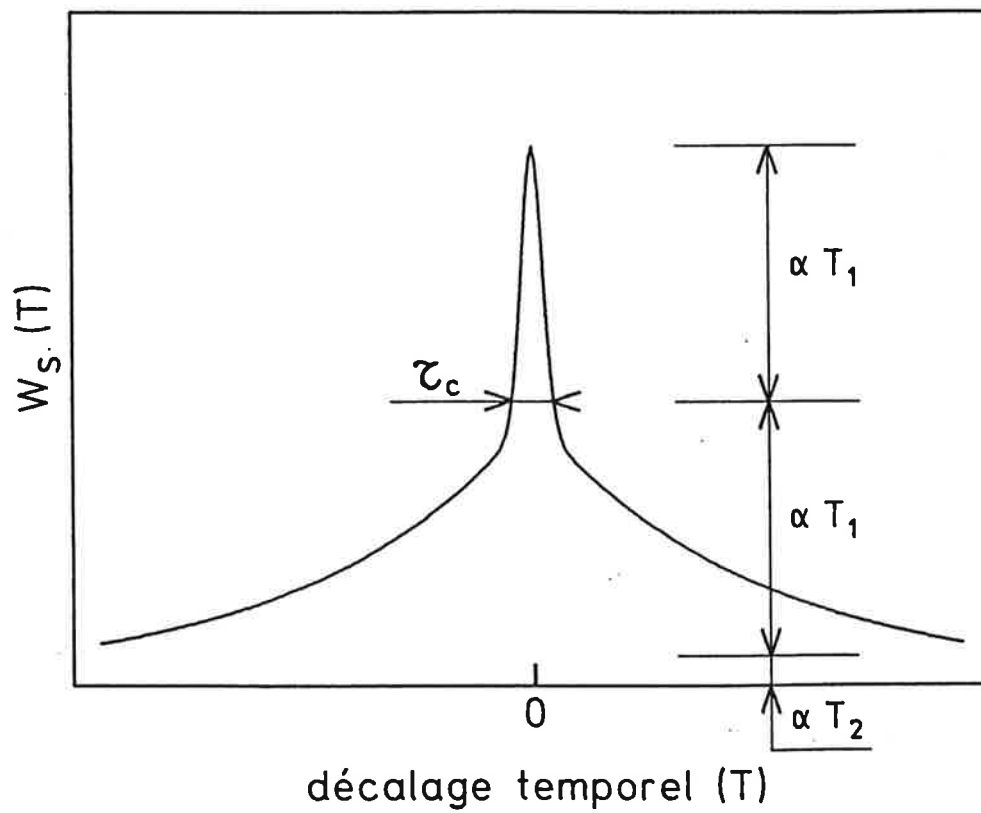


Figure 4.5: Mesure de  $T_2$ , énergie du signal MQOD en fonction du décalage  $T$

de ce pic apparaît la relaxation de la cohérence atomique sur un fond négligeable. Le pic cohérent est du même ordre de grandeur que les ailes. En définitive, cette analyse montre que la mesure de  $T_2$  peut se faire en lumière cohérente où en lumière incohérente, avec la même résolution et la même sensibilité.

## 4.5 Mesure du temps de vie en lumière incohérente

La section précédente montre que l'utilisation d'impulsions longues de lumière incohérente permet d'observer la relaxation de la cohérence atomique. Il est simplement requis que le temps de cohérence des impulsions soit plus court que  $T_2$  et que certaines relations de corrélation soient vérifiées par ces impulsions. Cette section analyse l'extension de ces principes à la mesure du temps de relaxation des populations atomiques. Pour l'observation de cette relaxation, le temps de cohérence des impulsions doit être plus court que  $T_1$ . Il n'est pas nécessaire qu'il soit plus court que  $T_2$ . On se place donc dans la situation où les temps caractéristiques s'ordonnent selon

$$T_2 \ll \tau_c \ll T_1 \ll \tau_1 \quad (4.53)$$

Dans ce cas, pour former un signal MQOD, les trois impulsions excitatrices doivent se chevaucher temporellement. Le signal MQOD de vecteur d'onde  $\vec{k}_3 - \vec{k}_2 + \vec{k}_1$  est à priori la somme des quatre termes décrit par les équations 4.33 à 4.36. Cependant la condition  $T_2 \ll \tau_c$  simplifie la situation. Cette inégalité signifie que le système atomique n'a pas de mémoire de phase à l'échelle temporelle de l'évolution du champ. Par conséquent, un réseau de population ne peut être formé que par deux interactions simultanées, et le signal ne peut être observé qu'à l'instant même où il a été créé. Par suite, le signal  $E_S(t)$  se réduit à deux composantes dont les amplitudes complexes sont décrites par

$$\tilde{E}_{S1}(t) = \tilde{E}_3(t) \int_0^\infty \tilde{E}_2^*(t - \tau) \tilde{E}_1(t - \tau) e^{-\tau/T_1} d\tau \quad (4.54)$$

$$\tilde{E}_{S3}(t) = \tilde{E}_1(t) \int_0^\infty \tilde{E}_2^*(t - \tau) \tilde{E}_3(t - \tau) e^{-\tau/T_1} d\tau \quad (4.55)$$

Pour la première composante, la perturbation des populations est construite par les impulsions  $E_1$  et  $E_2$ , et sondée par l'impulsion  $E_3$ . Elle regroupe les deux termes  $\tilde{E}_{S1}(t)$  et

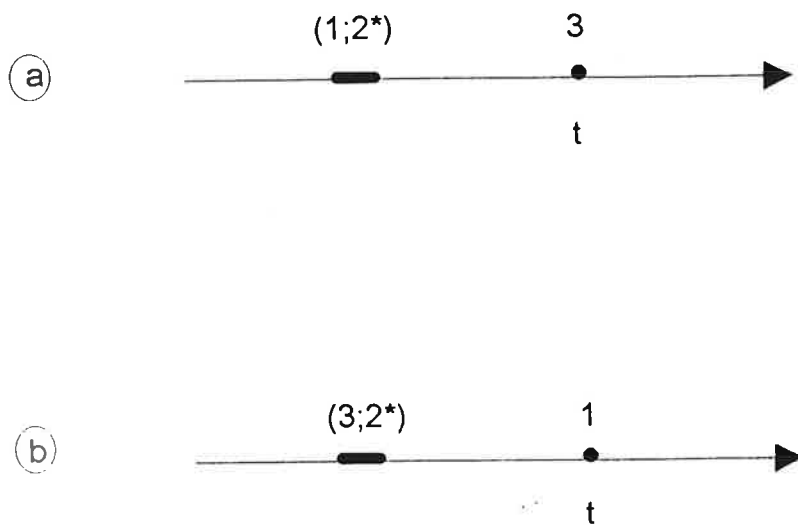


Figure 4.6: Mesure de  $T_1$ , diagrammes d'interaction

$\tilde{E}_{S_2}(t)$  des équations 4.33 et 4.34. Pour la seconde composante, le rôle des impulsions  $E_1$  et  $E_3$  est permuté. Elle regroupe les polarisations  $\tilde{E}_{S_3}(t)$  et  $\tilde{E}_{S_4}(t)$  des équations 4.35 et 4.36. Les diagrammes d'interaction des deux composantes  $\tilde{E}_{S_1}(t)$  et  $\tilde{E}_{S_3}(t)$  sont représentés sur les figure 4.6.a et 4.6.b respectivement. Sur ces diagrammes, la construction des réseaux de population est représentée par un curseur double, conséquence de l'inégalité  $T_2 \ll \tau_c$ . Autre conséquence de cette inégalité, les curseurs représentant la dernière interaction n'ont pas de liberté de mouvement par rapport à l'instant d'observation  $t$ . Ces diagrammes sont donc d'ordre  $T_1$ , en accord avec les expressions ci-dessus.

### 4.5.1 Mesures d'énergie

#### Mesure de l'énergie du signal MQOD

Deux configurations de corrélation entre les champs excitateurs permettent d'observer la relaxation des populations sur l'énergie du signal décrit ci-dessus. Une solution consiste à faire en sorte que les impulsions  $E_2$  et  $E_3$  soient corrélées et ordonnées de manière à ce que l'impulsion  $E_2$  précède l'impulsion  $E_3$ . L'impulsion  $E_1$  est décorrélée des deux autres. Dans ce cas, c'est l'énergie du signal  $E_{S_1}$  qui fera apparaître le terme pertinent. Le diagramme de corrélation correspondant est sur la figure 4.7.a. La corrélation entre les impulsions et oblige les curseurs 2\* et 3 d'une part, 2 et 3\* d'autre part, à se tenir à distance  $T$  l'un de l'autre. L'amplitude du terme décrit par ce diagramme est donc proportionnelle à  $\exp -2T/T_1$ , ce que l'on recherche. Le problème est que ce terme est petit par rapport au fond incohérent. Le fond incohérent est inévitable. Il résulte d'un diagramme qui dépend de la corrélation de chaque champ avec son conjugué. C'est un diagramme à lignes de corrélations verticales qui existe même si toutes les impulsions sont décorrélées. Ce type de diagramme a déjà été rencontré dans le cas de la mesure de  $T_2$ . Il est indépendant du décalage entre les impulsions excitatrices. Pour l'énergie du signal  $E_{S_1}$ , c'est le diagramme de la figure 4.7.b. Il est d'ordre  $T_1/\tau_c$  relativement au diagramme pertinent. Autrement dit, le terme modulé par le facteur  $\exp -2T/T_1$  est d'autant plus faible par rapport au fond incohérent que la résolution temporelle de l'expérience est bonne.

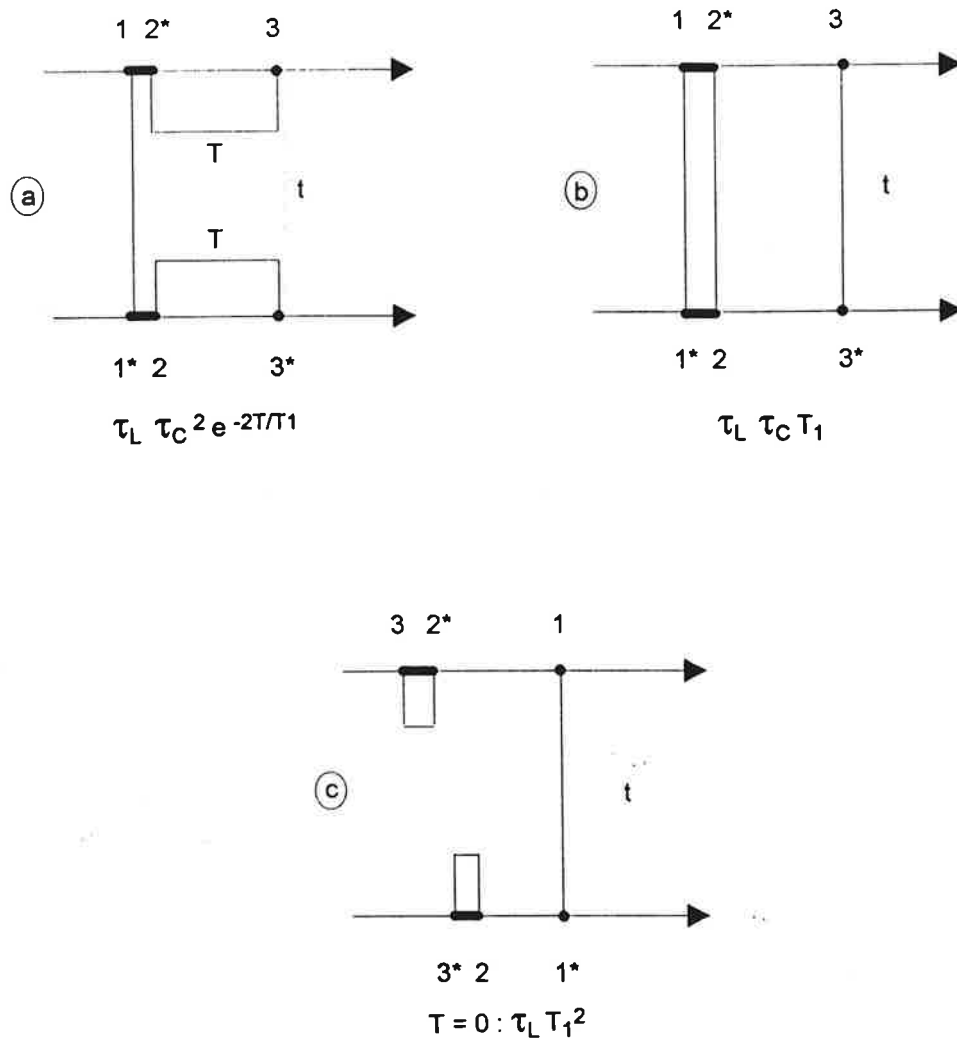


Figure 4.7: Mesure de  $T_1$  d'après l'énergie du signal MQOD. Principaux diagrammes de corrélation quand les impulsions  $E_2$  et  $E_3$  sont corrélées.

Un autre diagramme vient assombrir encore la situation. Il est sur la figure 4.7.c. Ce diagramme exprime la corrélation entre les impulsions  $E_2$  et  $E_3$  pour l'énergie du signal  $E_{S3}(t)$ . Il n'existe que pour  $T = 0$  car sur ce diagramme les champs des impulsions  $E_2$  et  $E_3$  sont portés par les curseurs doubles qui décrivent la construction des réseaux de population. Ce diagramme représente donc un pic cohérent. Mais ce pic est d'ordre  $\tau_1 T_1^2$ , c'est à dire qu'il domine le fond incohérent dans le rapport  $T_1/\tau_c$  et le terme pertinent dans le rapport  $(T_1/\tau_c)^2$ . C'est le terme le plus important, car il autorise sur les deux axes du diagrammes les mouvement d'ordre  $T_1$ , qui sont les plus amples. Remarquons que les corrélations exprimées sur ce diagramme sont les corrélations pertinentes pour la mesure de  $T_2$ . On retrouve ainsi le fait que dans la mesure de  $T_2$ , le terme pertinent est le terme dominant. Pour la mesure de  $T_1$ , ce pic cohérent est une difficulté supplémentaire. Sur le graphe la relaxation des populations apparaît dans l'aile de ce pic dans le rapport  $(\tau_c/T_1)^2$  et sur un fond incohérent dans le rapport  $\tau_c/T_1$ . Elle est donc très difficile à observer. Les autres diagrammes décrivant l'énergie du signal ne changent pas fondamentalement cette situation.

Il est possible de faire disparaître le pic précédent. La solution consiste à considérer les impulsions  $E_2$  et  $E_3$  comme décorréelées et les impulsions  $E_1$  et  $E_3$  comme corrélées. On mesure l'énergie du signal en fonction du décalage temporel  $T$  entre ces deux impulsions corrélées. Lorsque l'impulsion  $E_1$  précède l'impulsion  $E_3$ , le diagramme pertinent est un de ceux qui décrivent l'énergie du signal  $E_{S1}$ . Il est sur la figure 4.8.a. Ce diagramme est malheureusement là encore d'ordre  $\tau_c/T_1$  relativement au fond incohérent (figure 4.8.b). Sur ce diagramme en effet, les mouvements des deux curseurs doubles, qui représentent la construction des populations, sont nécessairement limités à des intervalles de longueur  $\tau_c$  alors que sur les diagrammes du fond incohérent, ces deux curseurs sont liés l'un à l'autre et l'ensemble des deux peut se déplacer sur un intervalle d'ordre  $T_1$ .

Par ailleurs, si cette configuration de corrélation fait disparaître le pic cohérent rencontré dans la situation précédente, elle n'empêche pas la présence d'un pic cohérent important. Il correspond au diagramme de la figure 4.8.c. Il est du même ordre de grandeur que le

4.5

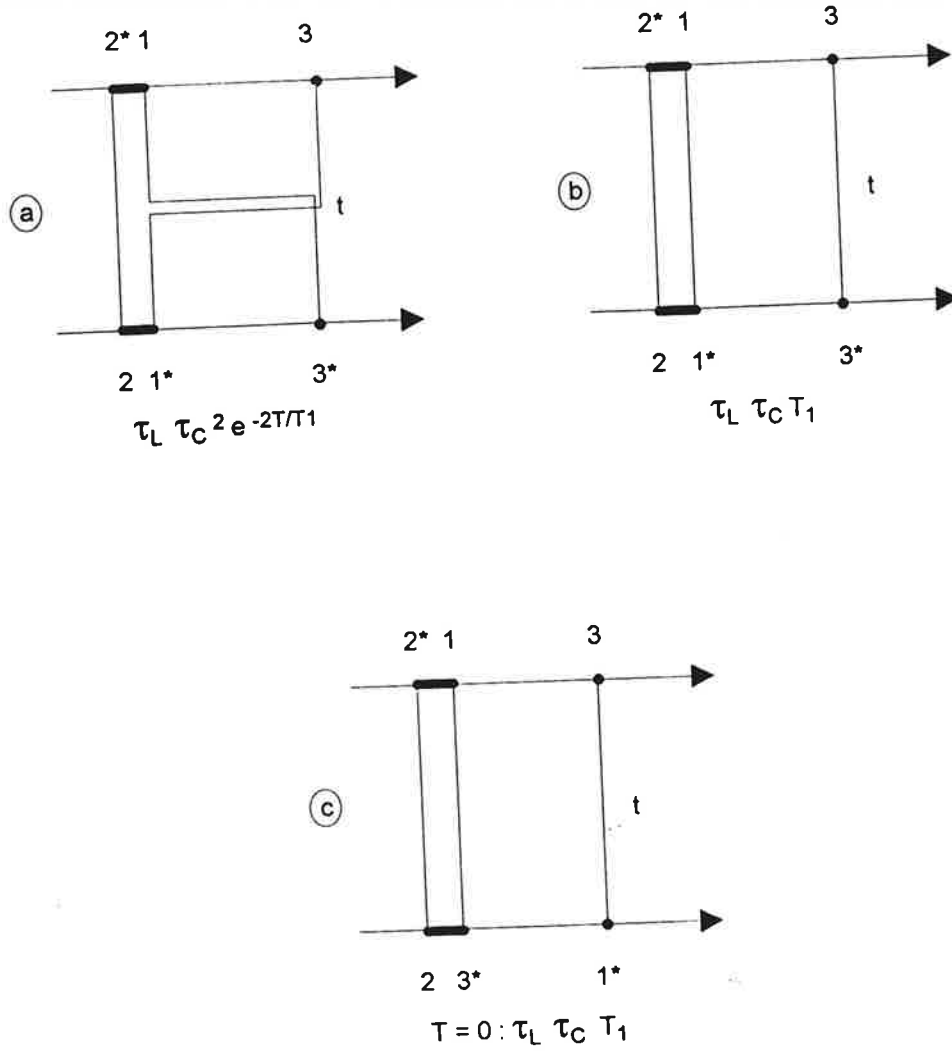


Figure 4.8: Mesure de  $T_1$  d'après l'énergie du signal MQOD. Principaux diagrammes de corrélation quand les impulsions  $E_1$  et  $E_3$  sont corrélées.

fond incohérent. La situation est donc légèrement plus favorable que la précédente mais n'est pas satisfaisante. En pratique la présence du pic et du fond oblige à choisir  $T_1/\tau_c < 10$  [37] et à déconvoluer le profil expérimental de la fonction d'autocorrélation des impulsions, ce qui nuit à la précision de la mesure.

### Pompe-sonde

Rappelons le principe d'une expérience pompe-sonde. Une impulsion pompe  $E_{pompe}$  de direction  $\vec{k}_{pompe}$  porte certains des atomes résonants du milieu sur le niveau supérieur de la transition. Une impulsion  $E_{sonde}$  de vecteur d'onde  $\vec{k}_{sonde}$  vient sonder la transmission du milieu. La variation de l'énergie transmise par l'échantillon, due au pompage, est décrite par le terme d'interférence entre la sonde et le signal MQOD construit par la pompe et la sonde:

$$\Delta W_{transmis} = \int \langle \tilde{E}_S(t) \tilde{E}_{sonde}^*(t) \rangle + c.c. \quad (4.56)$$

Le signal est la somme de deux termes dont les amplitudes sont décrites par les expressions 4.54 et 4.55 avec

$$\begin{aligned} \tilde{E}_2(t) &= \tilde{E}_1(t) = \tilde{E}_{pompe}(t) \\ \tilde{E}_3(t) &= \tilde{E}_{sonde}(t) \end{aligned} \quad (4.57)$$

Elles s'expriment explicitement comme

$$\tilde{E}_{S1}(t) = \tilde{E}_{sonde}(t) \int_0^\infty \tilde{E}_{pompe}(t-\tau) \tilde{E}_{pompe}^*(t-\tau) e^{-\tau/T_1} d\tau \quad (4.58)$$

$$\tilde{E}_{S2}(t) = \tilde{E}_{pompe}(t) \int_0^\infty \tilde{E}_{sonde}(t-\tau) \tilde{E}_{pompe}^*(t-\tau) e^{-\tau/T_1} d\tau \quad (4.59)$$

La variation  $\Delta W_{transmis}$  est donc la somme de deux termes  $\Delta W_1$  et  $\Delta W_2$ .

Les diagrammes correspondant sont sur la figure 4.9. L'axe supérieur de ces diagrammes représente le diagramme d'interaction du signal MQOD tandis que l'axe inférieur représente simplement le champ  $\tilde{E}_{sonde}^*(t)$ . La contribution à  $\Delta W_1(T)$  décrite par le diagramme 3.9.a est proportionnelle à  $\exp -T/T_1$ . Cette contribution est d'ordre  $\tau_1\tau_c$ . Le diagramme 3.9.b représente une contribution incohérente, indépendante de  $T$ , d'ordre  $\tau_1 T_1$ . Il existe une autre contribution au fond incohérent. Elle est décrite par le diagramme 3.9.c. Elle est



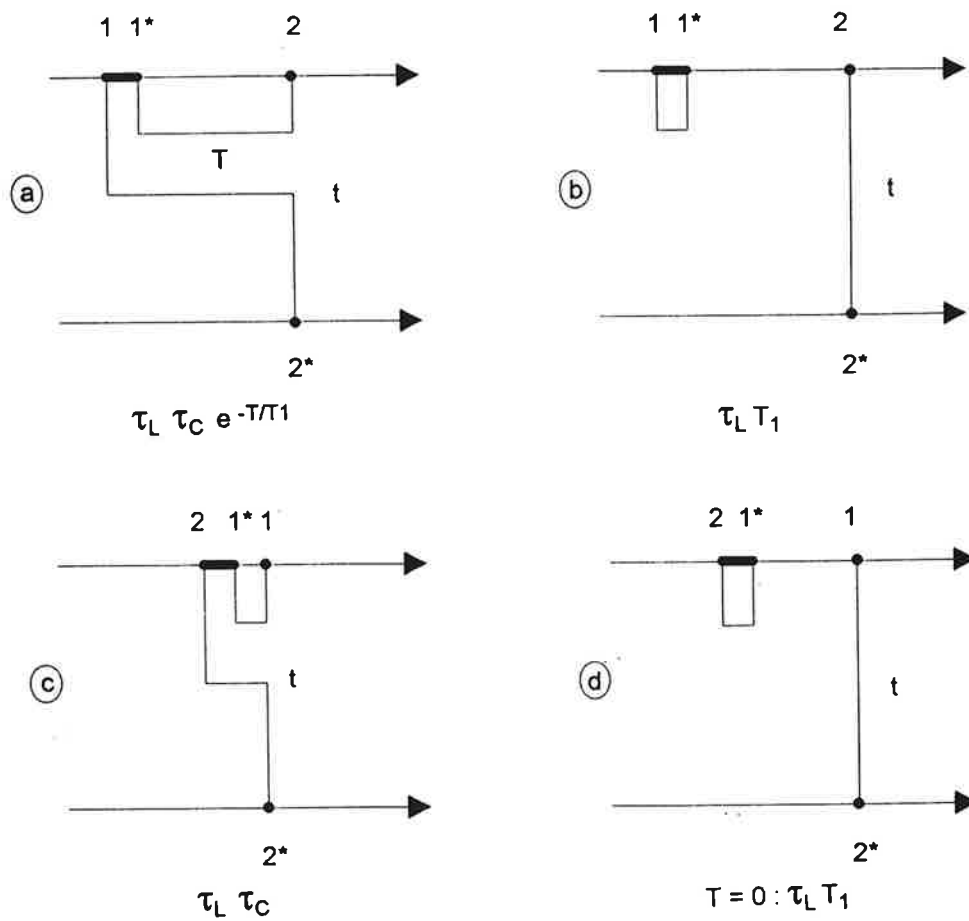


Figure 4.9: Diagrammes de corrélation d'une expérience pompe-sonde

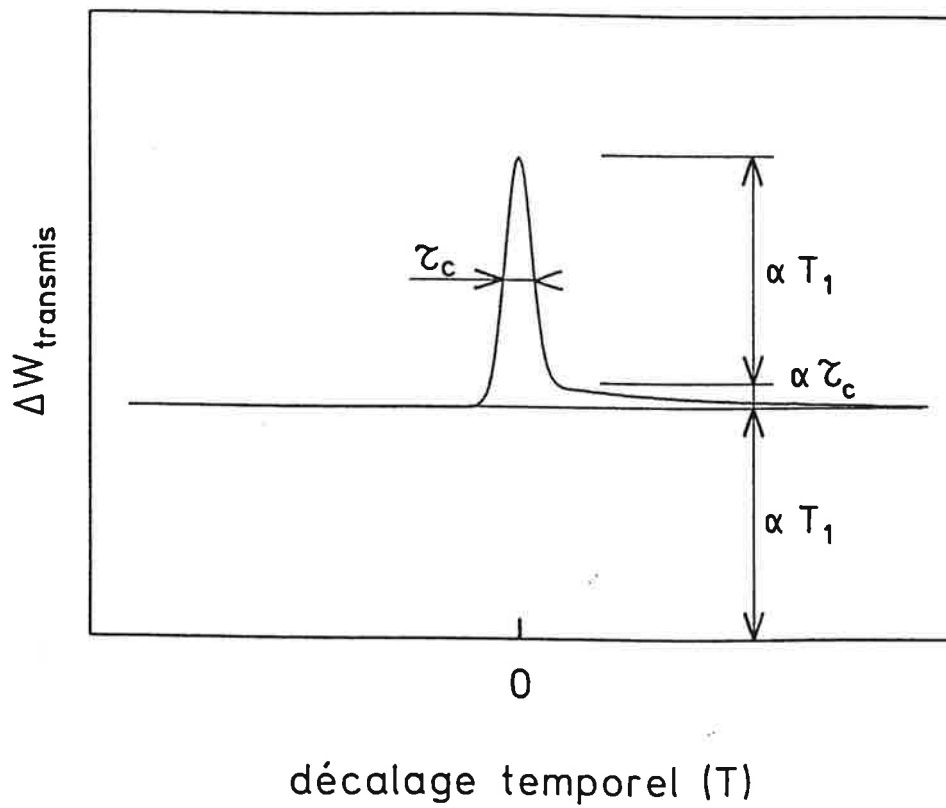


Figure 4.10: Expérience pompe-sonde. Variation de l'énergie de la sonde transmise par l'échantillon en fonction du décalage  $T$ .

d'ordre  $\tau_1\tau_c$ . Le terme correspondant au dernier diagramme (3.9.d), définit quant à lui un pic cohérent d'ordre  $\tau_1T_1$ .

Les caractéristiques du graphe  $\Delta W_{transmis}(T)$  sont résumées sur la figure 4.10. Comme pour l'expérience de mélange à quatre ondes précédente, la mesure de  $T_1$  est gênée par la présence d'un pic cohérent et d'un fond incohérent, dont l'importance est d'autant plus grande que la résolution temporelle de l'expérience est bonne. En pratique, la valeur du rapport  $T_1/\tau_c$  ne peut pas dépasser la dizaine. Pour extraire la valeur de  $T_1$  d'un profil expérimental il faut déconvoluer celui-ci de la fonction d'autocorrélation des champs. La mesure ne peut être très précise.

## 4.5.2 Mesures de corrélation d'amplitude

La section précédente montre l'inadéquation des techniques habituelles de mesure de  $T_1$ , quand on a affaire à de la lumière incohérente. Les diagrammes de corrélation présentés mettent en évidence les corrélations pertinentes et celles qui perturbent la sensibilité de la mesure. Des mesures de corrélation croisée entre un signal de mélange à quatre ondes et une référence bien choisie permettent de se débarrasser des corrélations non-pertinentes. Les expériences décrites dans cette section se distinguent des précédentes non par le signal produit, celui du mélange à quatre ondes, mais par la méthode de détection mise en oeuvre. C'est une énergie dans les expériences précédentes, la corrélation entre le signal et une référence dans le cas présent.

L'expérience de corrélation la plus simple à imaginer consiste à détecter la corrélation entre un signal MQOD et une référence linéaire constituée d'une réplique décalée dans le temps d'une des impulsions construisant le signal (figure 4.11). L'expérience met donc en jeu quatre impulsions de lumière incohérente  $E_1$ ,  $E_2$ ,  $E_3$  et  $E_4$ . Les trois premières impulsions construisent le signal de mélange de vecteur d'onde  $\vec{k}_1 - \vec{k}_2 + \vec{k}_3$  décrit par les équations 4.54 et 4.55. L'impulsion  $E_4$  est la référence.

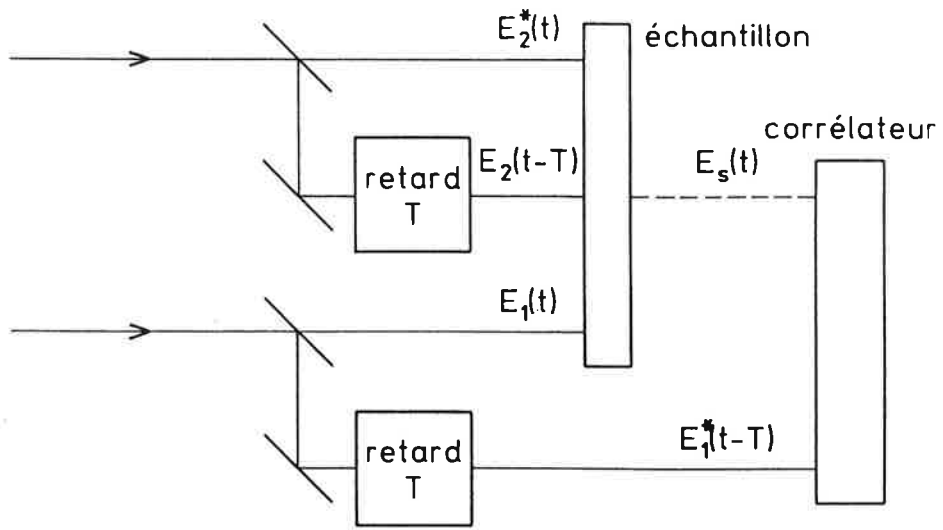


Figure 4.11: Détection de la corrélation entre le signal et une référence linéaire

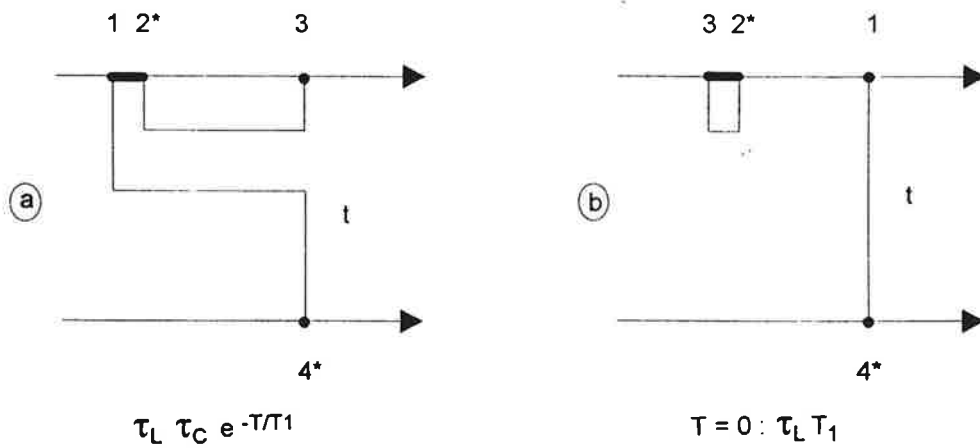


Figure 4.12: Diagrammes décrivant la corrélation du signal MQOD avec une référence linéaire

On se place dans la situation où les impulsions  $E_2$  et  $E_3$  d'une part,  $E_1$  et  $E_4$  d'autre part, sont corrélées et décalées dans le temps d'après

$$E_4(t) = E_1(t - T) \quad (4.60)$$

$$E_3(T) = E_2(t - T) \quad (4.61)$$

où le décalage  $T$  est supposé positif. On mesure la corrélation entre le signal et la référence, c'est à dire la quantité

$$G_{RS} = \int \langle \tilde{E}_S(t) \tilde{E}_4^*(t) \rangle dt \quad (4.62)$$

qui dépend de  $T$ , comme nous allons le voir.

Les diagrammes de corrélation qui décrivent cette quantité sont du même type que ceux rencontrés dans l'expérience pompe-sonde. Un des axes représente le diagramme d'interaction de la composante du signal mise en jeu, et l'autre la référence. Ils sont représentés sur la figure 4.12. La différence avec l'expérience pompe-sonde est qu'il n'y a que deux diagrammes au lieu de quatre. Ce sont les équivalents des diagrammes 4.9.a et 4.9.d de l'expérience pompe-sonde (figure 4.9). Le diagramme 4.12.a fait apparaître le facteur de relaxation recherché. L'autre correspond à un pic cohérent. On a éliminé le fond incohérent. Dans l'aile du pic cohérent, la relaxation des populations apparaît sur fond nul. Il demeure que le terme pertinent est d'amplitude  $\tau_c/T_1$  relativement au pic cohérent, ce qui n'est pas favorable. D'autres méthodes doivent être employées pour éliminer le pic cohérent.

Pour faire apparaître la relaxation des populations, sur fond nul, et sans pic cohérent nuisible à la sensibilité de la mesure, il faut avoir recours à des techniques de corrélation multidimensionnelle, dans laquelle chaque champ mis en jeu dans le processus MQOD est corrélé avec lui même. L'expérience la plus simple à imaginer consiste à comparer par corrélation le signal de mélange avec un autre signal de mélange, qui sert de référence (figure 4.13). Ce type de mesure est couramment utilisé en spectroscopie RMN incohérente [39]. L'équivalent en spectroscopie optique, pour la mesure de  $T_1$ , a été proposée par Blümich [40].

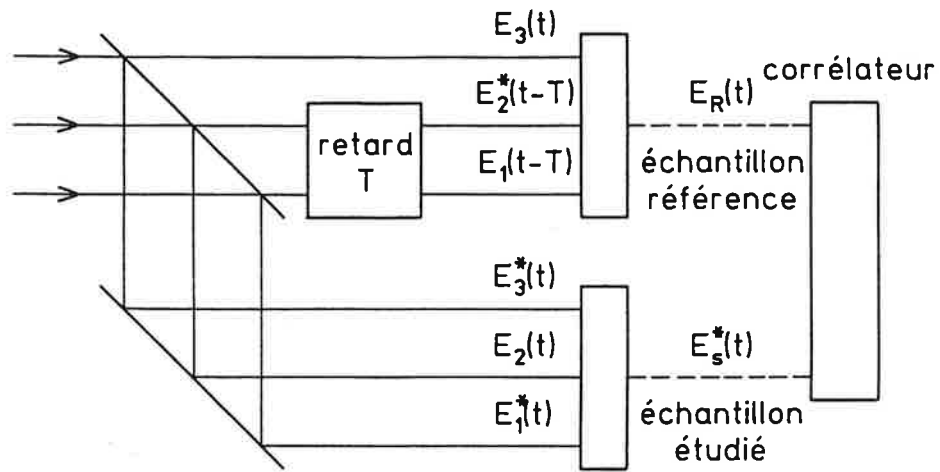


Figure 4.13: Détection de la corrélation entre le signal MQOD et une référence MQOD

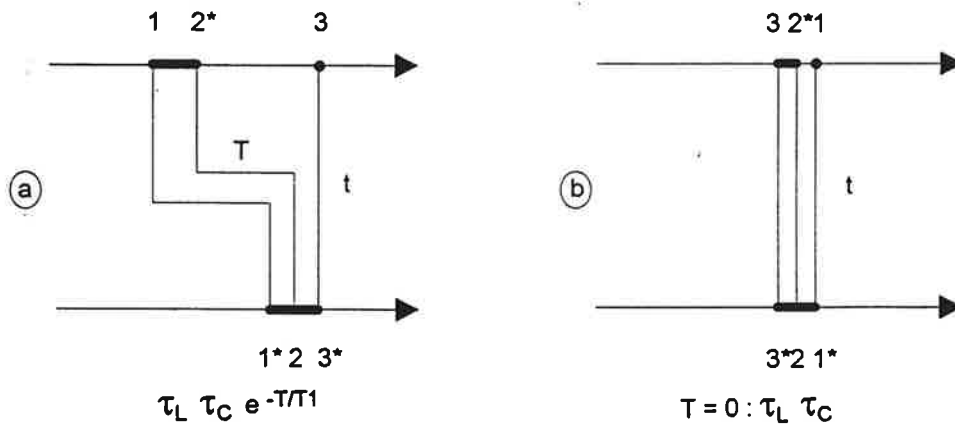


Figure 4.14: Diagrammes décrivant la corrélation entre le signal MQOD et une référence MQOD

Avec trois impulsions de lumière incohérente, décrites par les champs  $E_1(t)$ ,  $E_2(t)$  et  $E_3(t)$  respectivement, on construit dans le milieu à étudier le signal de mélange  $E_S(t)$ , décrit par l'équation 4.54. On suppose que les temps caractéristiques mis en jeu sont ordonnés selon les inégalités 4.53. Dans un autre milieu, qui sert de référence, on construit le signal  $E_R(t)$  d'amplitude complexe

$$\tilde{E}_R(t) = \tilde{E}_3(t)\tilde{E}_2^*(t-T)\tilde{E}_1(t-T) \quad (4.63)$$

Ce signal de référence est construit à l'aide de la réplique de l'impulsion  $E_3(t)$ , et des répliques décalées  $E_1(t-T)$  et  $E_2(t-T)$  des impulsions  $E_1(t)$  et  $E_2(t)$  respectivement. L'obtention d'une référence de cette forme suppose implicitement que les temps de relaxation du milieu, pour la fréquence  $\omega$ , sont beaucoup plus courts que les temps caractéristiques des champs excitateurs.

La quantité mesurée est la corrélation  $G_{RS}(T)$  entre le signal et la référence:

$$G_{RS}(T) = \int \langle \tilde{E}_S(t)\tilde{E}_R^*(t) \rangle dt \quad (4.64)$$

On suppose que les trois impulsions  $E_1(t)$ ,  $E_2(t)$  et  $E_3(t)$  sont décorréliées. Dans ce cas, la corrélation  $G_{RS}(T)$  est décrite par deux diagrammes, représentés sur la figure 4.14.

Sur l'axe inférieur de ces diagrammes, qui symbolise la formation de la référence, les trois curseurs ne forment qu'un, conséquence de l'instantanéité de la réponse du milieu. Ce curseur triple, par l'intermédiaire des lignes de corrélation, bloque le mouvement des curseurs de l'axe supérieur. Ainsi, sur le diagramme 4.14.a, le curseur double  $(1;2^*)$ , est bloqué à la distance  $T$  du curseur 3. Le terme correspondant à ce diagramme est donc proportionnel à  $\exp -T/T_1$ . Le terme correspondant au diagramme 4.14.b n'existe que pour  $T < \tau_c$ . Il correspond à un pic cohérent. Ce pic est du même ordre de grandeur que le terme pertinent  $(\tau_1\tau_c)$ . En définitive, le graphe représentant la corrélation  $G_{RS}(T)$  en fonction du décalage  $T$  fait apparaître la fonction caractéristique de la relaxation des populations, sur fond nul. Cette relaxation apparaît dans l'aile d'un pic cohérent de largeur  $\tau_c$ , dont l'amplitude, du même ordre de grandeur que l'aile, ne gêne pas la sensibilité de la mesure.

En ce qui concerne la sensibilité, il faut remarquer qu'une faible fraction seulement du signal, participe à la corrélation. Cette partie utile représente une fraction égale à  $\tau_c/T_1$  de l'énergie totale du signal. De ce point de vue, la situation est identique aux expériences de mesure d'énergie présentées dans la section précédente. Cependant, au niveau du détecteur, les deux situations ne sont pas équivalentes. Dans le cas d'une mesure d'énergie, le rapport  $T_1/\tau_c$  représente la dynamique minimale que doit posséder le détecteur. Pour une mesure de corrélation la dynamique minimale du détecteur est le contraste du terme d'interférence. Si une fraction  $\tau_c/T_1$  de l'énergie du signal participe au signal de corrélation, le contraste est d'ordre  $\sqrt{\tau_c/T_1}$ . Pour ce qui est de la dynamique du détecteur requise, la technique de corrélation présentée ci-dessus est donc avantageuse.

La méthode que nous avons expérimentée s'assimile plus à une mesure d'autocorrélation. Cette fois la référence comme le signal sont construits dans le même milieu. Le signal  $E_S(t)$ , construit par les champs non corrélés  $E_1(t)$ ,  $E_2(t)$  et  $E_3(t)$  est décrit comme précédemment par l'équation 4.34. La référence  $E_R(t)$  est engendrée par les champs  $E_1(t)$ ,  $E_2(t)$  et  $E_3(t - T)$ . C'est la somme de deux termes  $E_{R1}(t)$  et  $E_{R2}(t)$  d'amplitudes complexes

$$\tilde{E}_{R1}(t) = \tilde{E}_3(t - T) \int_0^\infty \tilde{E}_2^*(t - \tau) \tilde{E}_1(t - \tau) e^{-\tau/T_1} d\tau \quad (4.65)$$

$$\tilde{E}_{R2}(t) = \tilde{E}_1(t) \int_0^\infty \tilde{E}_2^*(t - \tau) \tilde{E}_3(t - T - \tau) e^{-\tau/T_1} d\tau \quad (4.66)$$

La quantité mesurée est la corrélation croisée entre la référence  $E_R(t)$ , et le signal décalé dans le temps  $E_S(t - T)$ :

$$G_{RS}(T) = \int dt \langle \tilde{E}_R(t) \tilde{E}_S^*(t - T) \rangle \quad (4.67)$$

Cette quantité est la somme de quatre termes. Elle est décrite par quatre diagrammes de corrélation, représentés sur la figure 4.15. Le diagramme 4.15.a représente la corrélation entre le champ référence  $\tilde{E}_{R1}(t)$  (axe inférieur) et le champ  $\tilde{E}_{S1}^*(t - T)$  du signal retardé (axe supérieur). Les curseurs doubles (1;2\*) et (1\*;2), liés par corrélation, peuvent se déplacer ensemble sur un intervalle de longueur  $T_1$ . Pour chaque position de ces curseurs, si la distance entre les curseurs (1;2\*) et 3 est  $\tau$ , la distance entre les curseurs (1\*;2) et 3\* est



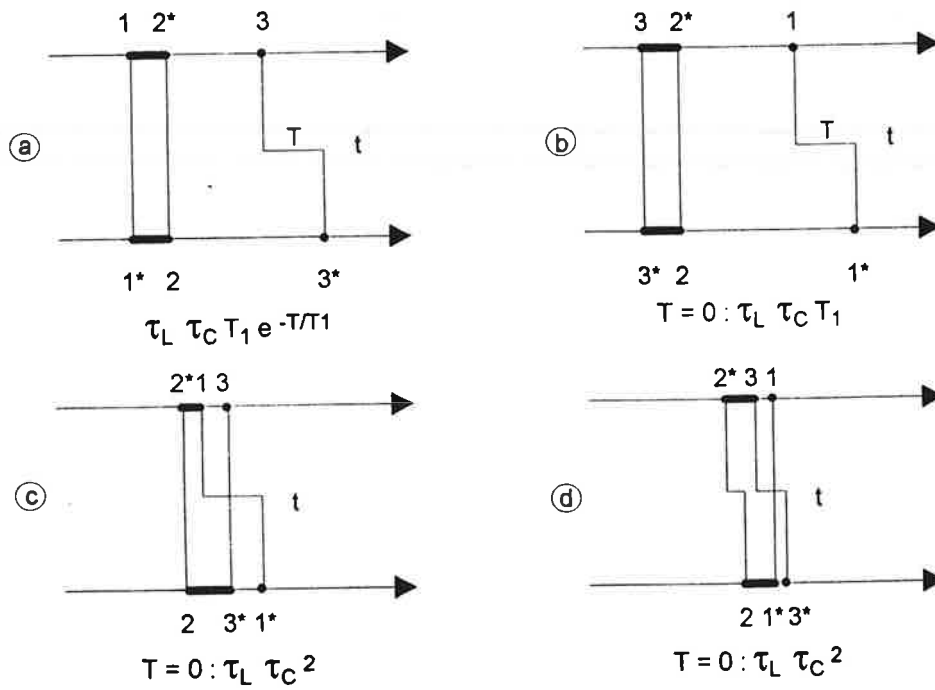


Figure 4.15: Diagrammes décrivant la corrélation entre deux signaux MQOD

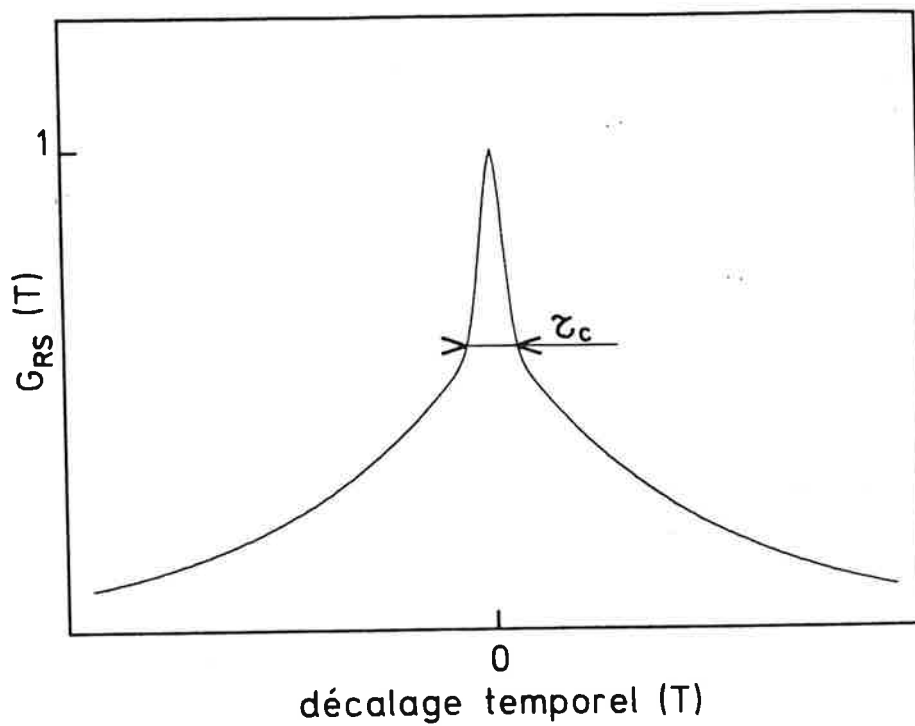


Figure 4.16: Corrélation entre deux signaux MQOD en fonction du décalage  $T$ .

$\tau + T$ . Il s'ensuit que le terme correspondant à ce diagramme fera apparaître l'intégrale  $\int \exp -\tau/T_1 \exp -(\tau + T)/T_1 d\tau$ , c'est à dire l'autocorrélation de la fonction de relaxation des populations. Cette intégrale est proportionnelle à  $\exp -T/T_1$ . Le terme décrit par ce diagramme reproduit donc la relaxation des populations.

Le diagramme 4.15.b correspond, pour la fonction  $G_{RS}(T)$ , à un pic cohérent. Il est du même ordre de grandeur que le terme décrit ci-dessus. Ce pic ne gêne donc pas la sensibilité de la mesure. Les autres diagrammes sont d'ordre  $\tau_c/T_1$  relativement aux deux précédents et donc négligeables.

Le graphe de la fonction  $G_{RS}(T)$  est décrit sur la figure 4.16. Il est symétrique par rapport à  $T = 0$ . On montre facilement à l'aide des diagrammes précédents que pour  $T$  négatif, le rôle des diagrammes 4.15.a et 4.15.b est permuté. Hormis cette parité, le graphe possède les mêmes caractéristiques que celui correspondant à l'expérience proposée par Blümich. En particulier, la relaxation s'observe sur un fond nul et avec un pic cohérent peu gênant. La différence entre ces deux types de mesures tient à deux choses. D'une part, avec notre méthode, toute l'énergie du signal participe à la corrélation. Ceci signifie que sur le détecteur du corrélateur, le contraste des interférences peut être de l'ordre de 1, alors qu'il est de l'ordre de  $\sqrt{\tau_c/T_1}$  avec la méthode proposée par Blümich. De ce point de vue, notre méthode est avantageuse car elle impose moins de restriction sur la dynamique du corrélateur. L'autre différence est la quantité spectroscopique à laquelle ces deux méthodes donne accès. C'est la fonction de relaxation elle même avec la méthode de Blümich. C'est sa fonction d'autocorrélation avec notre méthode. D'un point de vue spectroscopique, notre méthode est donc moins précise.

L'article présenté dans l'annexe C décrit l'expérience que nous avons réalisée afin d'étudier les possibilités de notre méthode. En raison de la faible sensibilité du détecteur utilisé pour mesurer la corrélation, les expériences ont du être menées en régime de saturation de la transition optique étudiée. Dans ces conditions, on s'écarte du domaine de validité du modèle théorique. La mesure du temps de vie à partir des profils expérimentaux n'a donc

que peu de signification. Les caractéristiques des profils observés doivent néanmoins être en accord avec les prévisions théoriques, ce que confirment les profils expérimentaux. Cette expérience démontre la validité du principe de la méthode proposée. Ses caractéristiques avantageuses par rapport aux autres méthodes de mesure de  $T_1$  en lumière incohérente, justifient son expérimentation avec un corrélateur plus sensible.

La sensibilité du corrélateur, mise en jeu dans ces expériences, est sa capacité à mesurer l'autocorrélation d'un signal de faible énergie. Par conséquent, des deux méthodes de mesure de la corrélation que nous avons étudiées dans le chapitre 2, la mieux adaptée à ce type d'expérience est la méthode dite "des interférences en quadratures".

## 4.6 Conclusion

Un signal MQOD contient de l'information sur l'évolution de la cohérence et des populations atomiques. L'analyse temporelle de ce type de signal permet d'observer l'une ou l'autre de ces évolutions. Si le signal est construit avec des impulsions de durée plus courte que les temps caractéristiques de l'évolution atomique, on peut contrôler l'intervalle de temps pendant lequel une quantité atomique évolue librement par l'intermédiaire du décalage temporel entre deux des impulsions excitatrices. La mesure de l'énergie du signal en fonction de ce décalage temporel reflète le carré la relaxation atomique sur fond noir. Pour l'observation de la relaxation des populations, la technique pompe-sonde, basée sur un processus MQOD, offre l'avantage de la détection hétérodyne, c'est à dire une sensibilité accrue. Sa mise en oeuvre est plus complexe.

L'extension des techniques de la spectroscopie MQOD avec impulsions courtes au cas de la lumière incohérente est possible. La limite de résolution temporelle est déterminée par le temps de cohérence  $\tau_c$  de la lumière. L'obtention de cette résolution requiert que certaines relations de corrélations soient vérifiées par les impulsions excitatrices. L'énergie du signal MQOD peut ainsi refléter la relaxation de la cohérence ou des populations atomiques. Cette relaxation apparaît toujours sur un fond incohérent et dans l'aile d'un pic cohérent dont

la largeur coïncide avec le temps de cohérence de la lumière. Dans le cas d'une expérience destinée à l'observation de la relaxation de la cohérence, le fond incohérent est d'ordre  $T_2/T_1$  par rapport au terme pertinent et donc négligeable. Quant au pic cohérent, il est du même ordre de grandeur que le terme pertinent. Par conséquent, ces artefacts ne gênent pas l'observation spectroscopique. De nombreuses mesures de temps de déphasage homogène ont été effectuées en lumière incohérente, avec une bonne précision. En revanche, le terme d'intérêt spectroscopique pour l'observation de la relaxation des populations atomiques est d'ordre  $\tau_c/T_1$  par rapport au fond incohérent et au pic cohérent. La même situation est rencontrée dans le cas d'une expérience pompe-sonde en lumière incohérente. La résolution temporelle de l'expérience est donc obtenue au détriment de la sensibilité. Les mesures de  $T_1$  obtenues de la sorte ne peuvent pas être fiables.

La mesure de la corrélation entre le champ du signal MQOD et un champ référence linéaire constitué d'une réplique décalée dans le temps d'un des champs exciteur permettrait d'éliminer le fond incohérent mais pas le pic cohérent. Si la référence était elle-même un signal MQOD construit dans un matériau avec des temps de réponse beaucoup plus courts que le temps de cohérence de la lumière, le signal de corrélation refléterait la relaxation des populations sur fond noir, et sans pic cohérent. Cette technique de corrélation multidimensionnelle permettrait plus généralement de contrôler les instants de formation des quantités atomiques de la même manière que des impulsions courtes. La contrepartie est qu'une petite partie de l'énergie du signal seulement participe à la corrélation. Le contraste des interférences caractéristiques de la corrélation est limité à  $\sqrt{\tau_c/T_1}$ . Les caractéristiques théoriques de cette technique demeurent avantageuses et son expérimentation reste à faire.

Nous avons imaginé une autre mesure de corrélation de champ multidimensionnelle dans laquelle toute l'énergie du signal participe au signal de corrélation [9]. Celui-ci fait apparaître la fonction d'autoconvolution de la fonction de relaxation des populations, sur fond noir, et avec un pic cohérent de même ordre de grandeur que le terme modulé par la fonction de relaxation. Nous avons vérifié expérimentalement ces caractéristiques et

démontré ainsi les avantages de la technique. En revanche, en raison de la faible sensibilité du corrélateur utilisé dans l'expérience, le profil expérimental, obtenu dans des conditions de saturation de la transition moléculaire (DODCI en solution), ne permet pas d'obtenir une valeur fiable de la durée de vie du niveau excité. Cette méthode de corrélation, qui consiste à mesurer l'autocorrélation des champs excitateurs, nécessite un corrélateur de sensibilité énergétique élevée. Le renouvellement de l'expérience avec les nouveaux corrélateurs que nous avons développés depuis devrait démontrer la fiabilité de la méthode de mesure.



...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

...the ... of ...

the 1990s, the number of people with a disability in the United States has increased by 25% (U.S. Census Bureau, 1997).

As a result of the increase in the number of people with disabilities, the need for accessible information has become more acute. The purpose of this study was to determine the information needs of people with disabilities.

The study was conducted in two phases. The first phase was a literature review.

The second phase was a survey of people with disabilities. The survey was conducted in two parts.

The first part of the survey was a questionnaire. The questionnaire was designed to collect information about the following:

1. The types of disabilities that the respondents had.

2. The types of information that the respondents needed.

3. The sources of information that the respondents used.

4. The barriers to information that the respondents encountered.

5. The ways in which the respondents used information.

6. The ways in which the respondents obtained information.

7. The ways in which the respondents shared information.

8. The ways in which the respondents evaluated information.

9. The ways in which the respondents stored information.

10. The ways in which the respondents accessed information.

11. The ways in which the respondents communicated information.

12. The ways in which the respondents presented information.

13. The ways in which the respondents displayed information.

14. The ways in which the respondents interacted with information.

15. The ways in which the respondents searched for information.

16. The ways in which the respondents organized information.

17. The ways in which the respondents managed information.

18. The ways in which the respondents protected information.

19. The ways in which the respondents transferred information.

20. The ways in which the respondents archived information.

21. The ways in which the respondents retrieved information.

22. The ways in which the respondents deleted information.

23. The ways in which the respondents restored information.



# Chapitre 5

## Corrélation de champ et MQOD appliqués au traitement optique de l'information

### 5.1 Introduction

Depuis sa première observation en 1974 [41,42] le phénomène de “hole-burning” spectral permanent (PSHB) fait l’objet de nombreux travaux [12,43,44]. Ce phénomène est observé dans certains matériaux dopés par des centres absorbants, et portés à basse température. C’est la possibilité de creuser par excitation laser, un trou spectral fin permanent dans la bande d’absorption inhomogène du matériau. Le “hole-burning” spectral permanent a de nombreuses applications spectroscopiques. Le trou spectral est déterminé par la forme de la raie homogène de la transition absorbante des centres dopants. C’est une sonde sensible pour l’observation de l’influence de perturbations extérieures sur la transition (champ électrique, température, pression...), ou pour l’étude de la dynamique du milieu (diffusion spectrale). Par ailleurs, le mélange à quatre ondes dans un matériau PSHB offre la possibilité de faire de l’holographie spectrale (ou encore temporelle). C’est l’analogie de l’holographie conventionnelle dans les domaines temporel et spectral, la bande d’absorption inhomogène jouant le rôle de la plaque photosensible. Cet aspect du mélange à quatre ondes

permet d'envisager un certain nombre d'applications pour le traitement et le stockage optique de l'information, d'autant plus que l'on peut combiner holographie spectrale et holographie spatiale. Dans ce cadre, la corrélation d'amplitude peut s'avérer utile, en particulier quand les ondes mélangées sont constituées de lumière incohérente.

La section 5.2 décrit brièvement le phénomène PSHB. J'analyse dans la section 5.3 le processus MQOD avec des impulsions courtes dans un matériau PSHB, où l'élargissement inhomogène de la transition conduit au phénomène d'écho de photon. La généralisation de ce phénomène à des impulsions de durée finie introduit la notion d'holographie spectrale, qui permet non seulement d'enregistrer des informations mais aussi d'effectuer sur ces informations certaines opérations mathématiques telles que la corrélation (section 5.4). Je montre ensuite (section 5.5) que l'utilisation de sources incohérentes permet de s'affranchir de toute condition sur la durée des impulsions. La section 5.6, à travers les techniques d'adressage déjà utilisées, aborde le problème du temps d'accès aux informations enregistrées. La section 5.7 présente une méthode originale qui devrait permettre de réduire sensiblement le temps d'accès. Elle tire parti des deux aspects "mémoire" et "traitement" de l'holographie spectrale, et des propriétés particulières des mesures de corrélation de champ. Elle peut être mise en œuvre en lumière incohérente. L'article présenté dans l'annexe D décrit plus précisément les aspects physiques de cette méthode. La section 5.8 conclut ce chapitre.

## 5.2 "Hole-burning" spectral permanent

On considère un cristal transparent dans lequel sont dispersés des centres absorbants. On les désigne par le terme générique de molécule. Si la concentration des molécules est suffisamment faible, on peut considérer qu'elles sont isolées les unes des autres dans le cristal. Les molécules interagissent avec leur environnement cristallin. Cette interaction déplace les niveaux d'énergies de la transition absorbante, et donc la fréquence d'absorption. Si le cristal est parfait, toutes les molécules sont dans des sites identiques, comme le montre la figure 5.1.a. Dans ce cas, elles absorbent toutes à la même fréquence. La bande

d'absorption du matériau est une raie étroite définie par la largeur homogène  $\Gamma_h$  de la transition moléculaire. Dans un cristal réel (figure 5.1.b), des défauts de toutes sortes perturbent localement la structure cristalline. Il s'ensuit que les molécules dispersées subissent des environnements légèrement différents ce qui se traduit par une distribution inhomogène des fréquences de résonance des molécules dans le cristal. La bande d'absorption du matériau peut alors être vue comme la superposition de raies homogènes étroites centrées à des fréquences différentes. Le résultat est un profil régulier dont la largeur  $\Gamma_i$  caractérise l'inhomogénéité du matériau. Le phénomène d'élargissement inhomogène existe aussi dans des matrices de type verre (sols-gels) ou polymère (polystyrène). L'inhomogénéité est une caractéristique même de la structure de ces matériaux.

La largeur homogène de la transition est l'inverse du temps de relaxation de la cohérence moléculaire. Cette relaxation (cf éq. 4.1) résulte de la relaxation du niveau supérieur de la transition, et des interactions déphasantes tels que les collisions élastiques avec les phonons. A la température de l'hélium liquide, les phénomènes déphasants sont considérablement réduits. La largeur homogène est proche de sa valeur limite déterminée par l'inverse du temps de vie du niveau supérieur de la transition. Elle peut donc être très étroite et le rapport de la largeur inhomogène à la largeur homogène très grand. Pour des ions dispersés dans une matrice cristalline, la largeur inhomogène est de l'ordre du GHz et la largeur homogène varie du KHz au MHz. Pour des molécules organiques dans une matrice polymère, les largeurs homogène et inhomogène sont respectivement de l'ordre du GHz et de la dizaine de THz. L'ordre de grandeur du rapport  $\Gamma_i/\Gamma_h$  varie donc de 10 à  $10^4$ .

Dans le volume définie par la tache de focalisation du laser, de l'ordre de  $1\mu\text{m}$  de diamètre au minimum, se trouve un grand nombre de molécules. Si la bande spectrale du laser est plus étroite que la raie homogène, seules sont excitées les molécules situées dans une bande de largeur  $\Gamma_h$  autour de la fréquence du laser. En faisant varier celle-ci, on excite sélectivement les différentes classes de molécules, chaque classe étant définie par sa fréquence de résonance. Le nombre de classes différentes est donné par le rapport  $\Gamma_i/\Gamma_h$ .

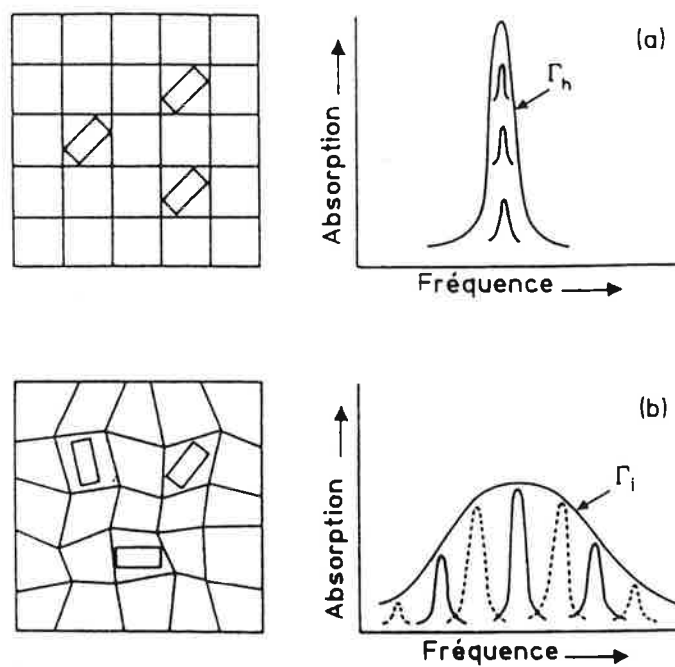


Figure 5.1: Élargissement homogène et inhomogène

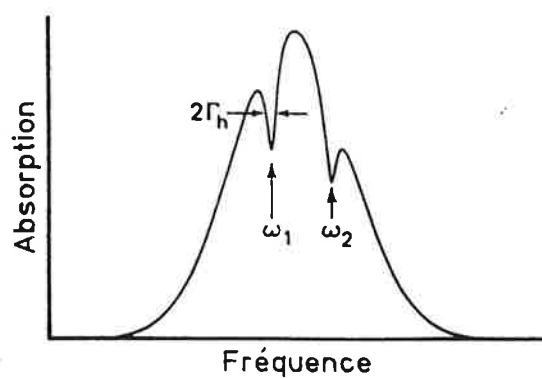


Figure 5.2: "Hole burning" spectral

Les molécules portées sur le niveau excité par le rayonnement laser peuvent subir une transformation (chimique, conformationnelle...) qui modifie leur fréquence d'absorption. La classe des molécules excitées par le laser se trouve alors dépeuplée. On a creusé un trou spectral dans la bande d'absorption du matériau, de largeur  $2\Gamma_h$ . C'est le phénomène de "hole burning" spectral (figure 5.2). Le trou spectral ne résulte pas de la présence de molécules sur le niveau excité. Il est gravé dans le niveau fondamental.

Dans certains matériaux maintenus à la température de l'hélium liquide, le trou spectral est permanent. On parle alors de "hole-burning" spectral permanent (PSHB). Les phénomènes conduisant à la modification de la fréquence de résonance des molécules sont divers. On les regroupe en deux classes. Si la molécule subit une transformation interne, on parle de processus photochimique. La transformation peut consister en un réarrangement de protons. C'est le cas de nombreuses molécules organiques dans des verres ou des polymères comme par exemple la porphine en matrice polystyrène. Il peut aussi s'agir d'une transformation isomérique (difluoroethane en matrice d'argon), d'une décomposition de la molécule (s-tétrazine en matrice polymère ou cristalline), ou d'une ionisation ( $F_3^+$  en cristal de NaF,  $Nd^{3+}$  en verre de silice,  $Sm^{2+}$  en cristal de  $CaF_2$ ). L'autre classe de phénomènes regroupe ceux qui consistent en un réarrangement de l'environnement de la molécule. On parle alors de processus photophysique. C'est le cas par exemple du pentacène en cristal d'acide benzoïque, ou de l'ion  $Eu^{3+}$  en verre de silice. La distinction entre les processus photochimiques et photophysiques n'est pas toujours très nette. Les deux processus peuvent se combiner. Il reste beaucoup à faire pour élucider les différents mécanismes du hole-burning spectral permanent. De nombreuses études y sont consacrées [44,45].

### 5.3 MQOD en présence d'élargissement homogène: écho de photon

Le chapitre 4 décrit la formation d'un signal de mélange à quatre ondes sur une transition à élargissement homogène et les applications spectroscopiques de ce type de signal. Le mélange à quatre ondes dans un matériau possédant la propriété de hole-burning spectral permanent, assimilable à un processus d'holographie spectrale, offre de nombreuses possibilités pour le traitement et le stockage optique de l'information. Avant de s'intéresser à ces applications, il convient de décrire ce qui différencie la formation d'un signal MQOD dans un matériau PSHB par rapport au cas traité dans le chapitre 4. On considère pour cela le cas simple d'un signal construit par des impulsions courtes séparées dans le temps.

On considère la transition optique d'un matériau montrant la propriété PSHB et tel que l'élargissement inhomogène de la transition est très important:

$$\Gamma_h \ll \Gamma_i \quad (5.1)$$

où  $\Gamma_i$  est la largeur caractéristique de la distribution inhomogène  $n(\omega_0)$  des fréquences de résonance des molécules actives du milieu. Dans le domaine temporel, l'inverse  $\Gamma_i^{-1}$  est le temps caractéristique du déphasage inhomogène des dipôles moléculaires, dû à leurs fréquences d'évolution différentes. L'inégalité précédente signifie que le déphasage inhomogène des dipôles est beaucoup plus rapide que la relaxation de la cohérence moléculaire.

On considère comme dans la section 4.2 l'interaction du matériau avec trois impulsions successives  $E_1$ ,  $E_2$  et  $E_3$ , limitées par transformée de Fourier, et se propageant dans les directions  $\vec{k}_1$ ,  $\vec{k}_2$  et  $\vec{k}_3$  respectivement. On se place en régime de champ faible (éq. 4.4) et on considère que l'échantillon est optiquement mince. Les impulsions sont décrites par leur champ électrique exprimé dans l'équation 4.2. La fréquence centrale des champs est accordée sur le centre de la raie inhomogène.

On suppose que les impulsions sont suffisamment courtes pour satisfaire la condition

$$\tau_l \ll \Gamma_i^{-1} \quad (5.2)$$

où  $\tau_i$  est la durée des impulsions. Les dipôles de fréquences différentes n'ont donc pas le temps de se déphaser les uns par rapport aux autres pendant l'interaction avec une impulsion. Cette inégalité signifie aussi que le spectre d'une impulsion est beaucoup plus large que la bande d'absorption du matériau. On peut donc le considérer comme constant sur toute la bande d'absorption. Par conséquent, l'impulsion excite toutes les classes de molécules, et de surcroît avec la même intensité et surtout la même phase.

L'impulsion  $E_1$  interagit avec le milieu autour de l'instant  $t_1$ . Elle induit une cohérence dans les molécules actives du milieu. C'est la première étape de la construction d'un signal MQOD. A la fin de l'interaction, tous les dipôles au point  $\vec{r}$  de l'échantillon sont en phase. La cohérence des dipôles de fréquence  $\omega_0$  s'écrit

$$\rho(\vec{r}; t_1; \omega_0) = \Theta_1 n(\omega_0) e^{-i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}} + c.c. \quad (5.3)$$

A part la distribution  $n(\omega_0)$ , cette expression est identique à l'équation 4.5 du chapitre 4.

Après l'interaction les dipôles excités évoluent librement. A un instant  $t$ , la cohérence s'écrit

$$\rho(\vec{r}; t; \omega_0) = \Theta_1 n(\omega_0) e^{-(t-t_1)\Gamma_h} e^{i(\omega_0 - \omega)(t-t_1)} e^{-i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}} + c.c. \quad (5.4)$$

Le désaccord de fréquence entre les dipôles et le laser, ignoré au chapitre 4, se traduit ici par le facteur  $\exp i(\omega_0 - \omega)(t - t_1)$  qui exprime le déphasage accumulé pendant l'intervalle de temps  $t - t_1$  par les dipôles de fréquence propre  $\omega_0$ , par rapport aux oscillations à la fréquence  $\omega$  prise comme référence. On reconnaît dans le facteur  $\exp -(t - t_1)\Gamma_h$  la relaxation de la cohérence moléculaire.

L'impulsion  $E_2$  excite l'échantillon autour de l'instant  $t_2$  tel que

$$\Gamma_i^{-1} < t_2 - t_1 < \Gamma_h^{-1} \quad (5.5)$$

Ces inégalités signifient qu'à l'instant de la seconde excitation les différentes classes de dipôles sont déphasées les unes par rapport aux autres, mais que chaque molécule conserve la relation de phase établie par la première excitation entre les états couplés par la

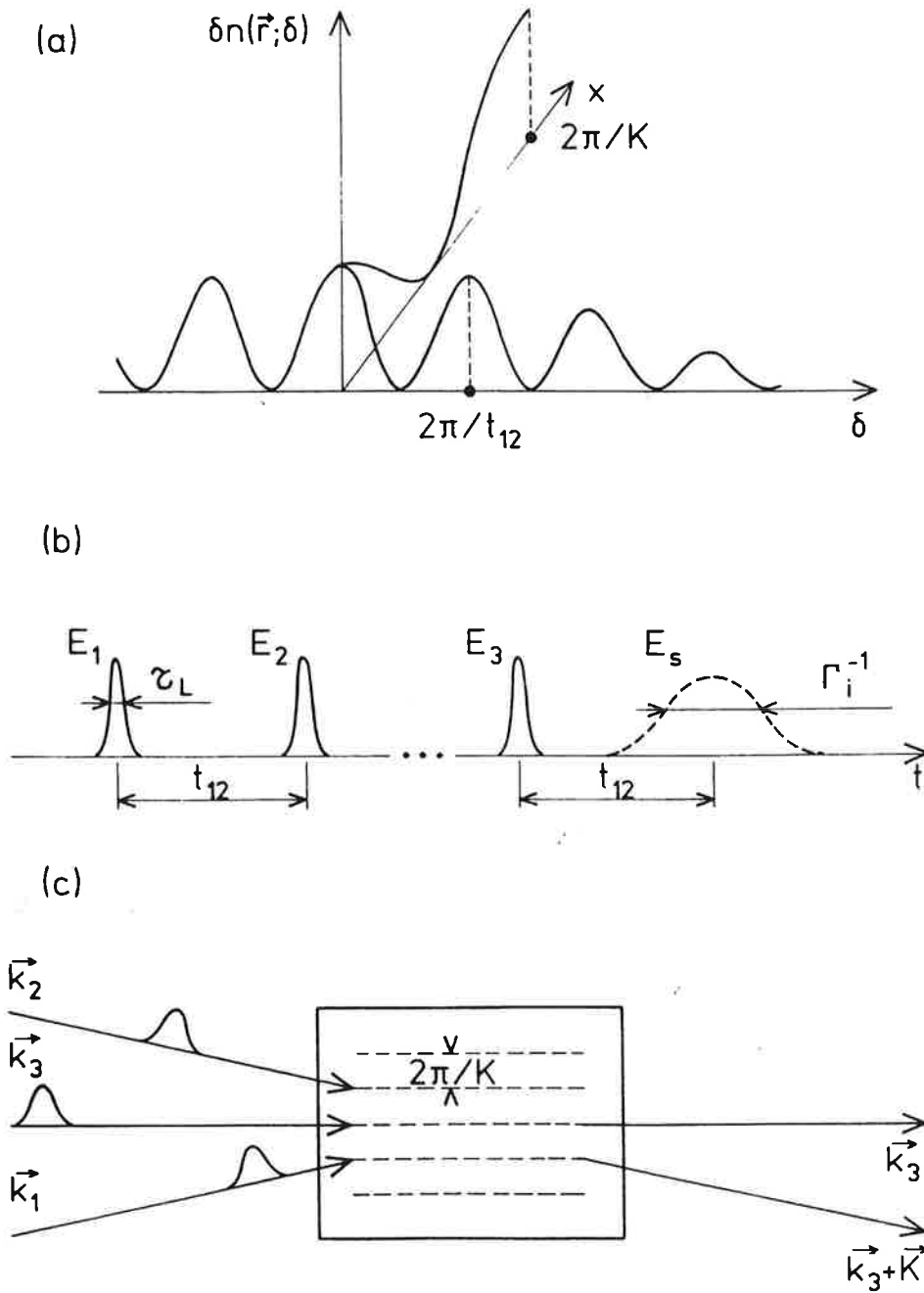


Figure 5.3: Écho de photon



transition optique. La perturbation des populations induite par cette seconde excitation s'écrit

$$\delta n_p(\vec{r}; t_2; \omega_0) = \Theta_2^* \Theta_1 e^{-(t_2-t_1)\Gamma_h} n(\omega_0) e^{i(\omega_0-\omega)(t_2-t_1)} e^{-i(\vec{k}_2-\vec{k}_1)\cdot\vec{r}} + c.c. \quad (5.6)$$

Cette expression peut se mettre sous la forme

$$\delta n_p(\vec{r}; t_2; \delta) = 2|\Theta_2||\Theta_1| e^{-t_{12}\Gamma_h} \cos(\delta t_{12} + \vec{K} \cdot \vec{r} + \varphi) \quad (5.7)$$

où  $\varphi$  est la différence de phase des deux impulsions,  $\delta$  est le désaccord variable  $\omega_0 - \omega$ , le vecteur  $\vec{K}$  est la différence  $\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ , et  $t_{12} = t_2 - t_1$ . On retrouve dans cette expression le réseau spatial sinusoidal de période  $2\pi/|\vec{K}|$  rencontré dans le chapitre 4. La différence est que la phase du réseau dépend maintenant de la classe de molécule considérée. Alternative-ment, on peut considérer qu'en tout point de l'échantillon, un réseau spectral sinusoidal de période  $2\pi/t_{12}$  s'inscrit dans les populations du système résonant, la phase du réseau dépendant de la position du point dans l'échantillon (figure 5.3.a).

Dans un matériau sans propriété de PSHB, le réseau disparaît par la relaxation des molécules excitées vers le fondamental. Dans le matériau que nous considérons, la modification subie par certaines des molécules excitées (et/ou leur environnement) transforme la perturbation  $\delta n_p(\vec{r}; t_2; \delta)$  en une modulation permanente  $\delta n(\vec{r}; \delta)$  de la distribution inhomogène de fréquence de l'état fondamental. Cette structure permanente mémorise la séparation angulaire et temporelle des impulsions  $E_1$  et  $E_2$ .

L'impulsion  $E_3$  illumine le matériau à l'instant  $t_3$  éventuellement longtemps après la formation du réseau. La réponse linéaire du milieu est la somme des réponses des molécules de toute la bande inhomogène. Elle contient une composante modulée par la fonction  $\delta n(\vec{r}; \delta)$ . C'est le signal de mélange à quatre ondes construit par les trois impulsions  $E_1$ ,  $E_2$  et  $E_3$ . Il s'écrit

$$E_S(\vec{r}; t) = \Theta_3 e^{-(t-t_3)\Gamma_h} e^{i\omega t} e^{-i\vec{k}_3\cdot\vec{r}} \int \delta n(\delta) e^{i\delta(t-t_3)} d\delta + c.c. \quad (5.8)$$

Le développement de  $\delta n(\delta)$  fournit alors l'expression

$$E_S(t) = e^{-(t-t_3)\Gamma_h} e^{-t_{12}\Gamma_h} [ \Theta_3 \Theta_2 \Theta_1^* e^{-i(\vec{k}_3+\vec{K})\cdot\vec{r}} \int \delta n(\delta) e^{i\delta(t-t_3-t_{12})} d\delta + \Theta_3 \Theta_2^* \Theta_1 e^{-i(\vec{k}_3-\vec{K})\cdot\vec{r}} \int \delta n(\delta) e^{i\delta(t-t_3+t_{12})} d\delta ] e^{i\omega t} + c.c. \quad (5.9)$$

Deux composantes apparaissent, l'une rayonnée dans la direction  $\vec{k}_3 + \vec{K}$  et l'autre dans la direction  $\vec{k}_3 - \vec{K}$ . Si  $t_{12}$  est positif, la première composante est produite par des dipôles dont la phase construite à partir de l'instant  $t_3$  vient se soustraire à la phase acquise pendant l'intervalle de temps  $t_{12}$  qui sépare les deux premières impulsions. Ces dipôles se retrouvent donc exactement en phase à l'instant  $t = t_3 + t_{12}$  et l'émission de l'ensemble de ces dipôles intervient autour de cet instant. Elle dure le temps pendant lequel les dipôles restent en phase, c'est à dire  $\Gamma_i^{-1}$  (figure 5.3.b). Au contraire, l'évolution libre des dipôles correspondant à la deuxième composante augmente leur déphasage relatif si bien que ces dipôles ne se retrouvent jamais en phase et aucun rayonnement macroscopique ne résultent de cet ensemble.

En conclusion, le mécanisme de déphasage et de remise en phase des dipôles dû à l'élargissement inhomogène de la transition se traduit par le décalage temporel de l'émission du signal d'écho par rapport à l'impulsion qui lui donne naissance et cette émission a lieu dans une seule des directions de diffraction du réseau spatial de population (figure 5.3.c). En s'appuyant sur ces propriétés on examine maintenant la formation d'un signal MQOD par des impulsions de durée quelconque.

## 5.4 MQOD et holographie spectrale

On écrit les champs des impulsions sous la forme

$$E_j(\vec{r}; t) = \tilde{E}_j(\vec{r}; t - t_j) e^{i(\omega t - \vec{k}_j \cdot \vec{r})} + c.c. \quad j = 1, 2, 3 \quad (5.10)$$

où la fonction  $\tilde{E}_j(\vec{r}; t - t_j)$  décrit la structure spatio-temporelle de l'impulsion, et  $t_j$  représente l'instant autour duquel l'impulsion interagit avec l'échantillon.

La modification permanente de la population du niveau fondamental produite par l'interaction avec les impulsions  $E_1$  et  $E_2$  s'écrit

$$\delta n(\vec{r}; \delta) = n(\delta) \int dt \tilde{E}_2(\vec{r}; t - t_2) \int dt' \tilde{E}_1^*(\vec{r}; t' - t_1) e^{-i\delta(t-t')} e^{-|t-t'|\Gamma_h} e^{-i\vec{K} \cdot \vec{r}} + c.c. \quad (5.11)$$

Cette expression est une généralisation de l'équation 5.6 au cas où la durée des impulsions n'est pas infiniment courte devant les temps de relaxation du système résonant.

Le signal émis dans la direction  $\vec{k}_3 + \vec{K}$  par diffraction de l'impulsion  $E_3$  sur cette structure a pour amplitude

$$\begin{aligned} \tilde{E}_s(\vec{r}; t) = & \int d\delta n(\delta) \int dt' Y(t-t') \tilde{E}_3(\vec{r}; t' - t_3) e^{-i\delta(t-t')} e^{-|t-t'|\Gamma_h} \\ & \times \int dt'' \tilde{E}_2(\vec{r}; t'' - t_2) \int dt''' \tilde{E}_1^*(\vec{r}; t''' - t_1) e^{-i\delta(t''-t''')} e^{-|t''-t'''|\Gamma_h} \end{aligned} \quad (5.12)$$

où  $Y(t-t')$  est l'échelon de Heaviside qui exprime la causalité dans l'émission du signal. Cette expression décrit une sommation sur les interactions élémentaires instantanées avec les champs des impulsions  $E_1$ ,  $E_2$  et  $E_3$ .

D'après la section précédente, pour que tout le signal soit émis dans la direction  $\vec{k}_3 + \vec{K}$ , il faut que l'interaction avec le champ  $E_1$  précède toujours l'interaction avec le champ  $E_2$ . Dans ce cas l'émission du signal débute toujours après l'extinction de l'excitation élémentaire par le champ  $E_3$  qui lui a donné naissance et le facteur de causalité  $Y(t-t')$  devient inutile. Cette condition est satisfaite si l'impulsion  $E_1$  précède l'impulsion  $E_2$  sans recouvrement temporel (figure 5.4).

Dans cette hypothèse, l'amplitude du signal peut s'exprimer simplement en fonction des amplitudes spectrales des champs:

$$\tilde{E}_s(\vec{r}; t) = \int n(\delta) [\hat{E}_3(\vec{r}; \delta) e^{i\delta(t-t_3)} \otimes h(\delta)] [\hat{E}_2(\vec{r}; \delta) \hat{E}_1^*(\vec{r}; \delta) e^{-i\delta t_{12}} \otimes h(\delta)] d\delta \quad (5.13)$$

où les amplitudes spectrales sont définies par

$$\tilde{E}_j(\vec{r}; t) = \int \hat{E}_j(\vec{r}; \delta) e^{i\delta t} d\delta \quad (5.14)$$

la fonction  $h(\delta)$  est la forme de la raie homogène:

$$h(\delta) = \frac{1}{2\pi} \int e^{-\Gamma_h |t|} e^{-i\delta t} dt = \frac{1}{\pi} \frac{\Gamma_h}{\delta^2 + \Gamma_h^2} \quad (5.15)$$

et le signe  $\otimes$  symbolise le produit de convolution. Par ailleurs, la structure  $\delta n(\vec{r}; \delta)$  peut elle aussi s'exprimer en fonction des amplitudes spectrales des champs:

$$\delta n(\vec{r}; \delta) = n(\delta) [\hat{E}_2(\vec{r}; \delta) \hat{E}_1^*(\vec{r}; \delta) e^{-i\delta t_{12}} \otimes h(\delta)] e^{-i\vec{K} \cdot \vec{r}} + c.c. \quad (5.16)$$

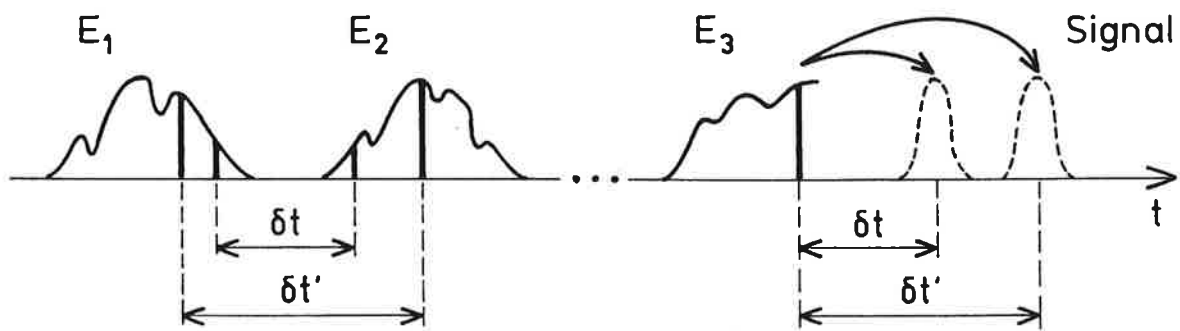


Figure 5.4: MQOD en présence d'élargissement inhomogène avec des impulsions séparées dans le temps

Ces expressions forment la base des applications du mélange à quatre ondes dans le domaine du traitement optique de l'information. Dans la perspective du stockage de données, deux situations particulières sont envisagées. Celle de l'enregistrement d'un hologramme spatial et spectral et celle de la reconnaissance d'une forme temporelle.

### 5.4.1 Enregistrement holographique

A la différence d'une photographie, qui enregistre une distribution spatiale d'intensité lumineuse, un hologramme est habituellement l'enregistrement de la distribution spatiale du champ lumineux, avec son amplitude et sa phase. Les matériaux conventionnels tels que les photoréfractifs [46], non-sélectifs en fréquence, ne peuvent pas mémoriser l'amplitude spectrale du champ. Un matériau PSHB offre cette possibilité [10]. D'après la propriété de la transformation de Fourier, ceci équivaut à mettre en mémoire la forme temporelle du champ.

Pour réaliser un tel enregistrement, on prend pour impulsion  $E_1$  une onde plane de durée beaucoup plus courte que  $\Gamma_i^{-1}$ . La structure gravée dans le matériau s'écrit alors

$$\delta n(\vec{r}; \delta) = n(\delta) [\hat{E}_2(\vec{r}; \delta) e^{-i\delta t_{12}} \otimes h(\delta)] e^{-i\vec{K} \cdot \vec{r}} + c.c. \quad (5.17)$$

Cette structure contient toute l'information sur le champ  $E_2(\vec{r}; t)$ , moyennant deux conditions. L'information spectrale s'inscrit par convolution avec la forme de la raie homogène. La largeur homogène  $\Gamma_h$  représente donc le plus petit détail spectral enregistrable. C'est l'équivalent du grain de l'émulsion en holographie conventionnelle. Dans le domaine temporel, l'inverse  $\Gamma_h^{-1}$  représente la durée maximale de l'impulsion  $E_2$ . La forme globale du hologramme est par ailleurs modulée par la forme de la raie inhomogène dont la largeur  $\Gamma_i$  est l'étendue spectrale maximale du hologramme. C'est l'équivalent de la dimension de la plaque photographique en holographie conventionnelle. Dans le domaine temporel, l'inverse  $\Gamma_i^{-1}$  est le plus petit détail temporel mémorisable. On suppose que la durée de l'impulsion  $E_2$  est inférieure à  $\Gamma_h^{-1}$  et que sa largeur spectrale est inférieure à  $\Gamma_i$ . Le hologramme s'écrit alors

$$\delta n(\vec{r}; \delta) = \hat{E}_2(\vec{r}; \delta) e^{-i\delta t_{12}} e^{-i\vec{K} \cdot \vec{r}} + c.c. \quad (5.18)$$

La lecture du hologramme est effectuée par une impulsion  $E_3$  possédant les mêmes propriétés spatio-temporelles que l'impulsion  $E_1$ . Le signal émis par l'échantillon restitue la forme de l'impulsion  $E_2$ :

$$\tilde{E}_s(\vec{r}; t) = \tilde{E}_2(\vec{r}; t - t_3 - t_{12}) \quad (5.19)$$

### 5.4.2 Reconnaissance de forme temporelle

Dans le domaine spatial, des opérations mathématiques telles que la convolution, la corrélation et la transformation de Fourier peuvent être effectués simplement et instantanément par certains processus optiques. Il en va de même dans les domaines conjugués temporel et spectral. L'opération de corrélation est bien adaptée à la reconnaissance de forme [8]. Cette opération apparaît dans l'équation 5.13 lorsque l'impulsion  $E_2$  est une onde plane de courte durée et que l'impulsion  $E_1$  n'excède pas les capacités de mémorisation du matériau. Dans ces conditions en effet, le signal prend la forme

$$\begin{aligned} \tilde{E}_s(t) &= \int \hat{E}_3(\vec{r}; \delta) \hat{E}_1^*(\vec{r}; \delta) e^{i\delta(t-t_3-t_{12}+\tau)} d\delta \\ &= \int \tilde{E}_3(\vec{r}; \tau) \tilde{E}_1^*(\vec{r}; t - t_3 - t_{12} + \tau) d\tau \end{aligned} \quad (5.20)$$

Si la forme temporelle de l'impulsion  $E_3$  contient la forme  $E_1$ , le signal montre un pic de corrélation à la position temporelle correspondante. L'analyse temporelle du signal permet d'identifier les portions de l'impulsion  $E_3$  qui reproduisent la forme de  $E_1$ . Il faut noter que si la durée de l'impulsion  $E_1$  est limitée à  $\Gamma_h^{-1}$ , aucune condition ne limite celle de l'impulsion  $E_3$ . La reconnaissance de forme peut s'effectuer en continu. Par ailleurs, la fonction de corrélation temporelle est calculée simultanément en tout point de l'échantillon, ce qui illustre le parallélisme inhérent à l'optique.

Dans cette application, le hologramme est utilisé comme un élément de calcul optique, et non plus comme un simple élément mémoire. On peut combiner l'aspect mémoire et l'aspect calcul pour réaliser des mémoires intelligentes. La section 5.6 en donne un exemple.

### 5.4.3 Mise en forme d'impulsions

Dans les expériences déjà réalisées, deux méthodes ont été employées pour façonner des formes temporelles. L'une d'elles consiste à moduler le faisceau d'un laser monochromatique, l'autre à filtrer spectralement une impulsion très courte. La première méthode repose sur l'utilisation de dispositifs acousto-optiques. Les références rapportent la réalisation de créneaux de 100 ns de large [9,47,48,49]. L'étendue spectrale du champ ainsi mis en forme ne dépasse donc pas quelques dizaines de MHz. Quant à la durée d'un train d'impulsions ainsi préparé, elle peut être aussi longue que désirée. De telles formes peuvent être stockées dans un cristal PSHB dont la largeur de la bande d'absorption inhomogène est de l'ordre de 100 MHz et le temps de vie des dipôles optiques atteint quelques dizaines de microsecondes.

La deuxième méthode met en oeuvre un dispositif proposé par C. Froehly [50] et intensivement développé par A. Weiner [51]. La figure 5.5 donne un schéma du dispositif. L'impulsion courte entrant dans le système est dispersée par un réseau. Le spectre de l'impulsion s'étale dans le plan focal d'une lentille convergente où est disposé un SLM. Celui-ci divise l'espace spectral en  $N$  tranches de même largeur. Un modulateur d'amplitude permet de contrôler la transmission de chaque tranche spectrale. Un modulateur de phase est préférable car il n'induit pas de perte d'énergie. Dans ce cas, on contrôle la phase relative des différentes tranches spectrales. On peut ainsi composer une forme de phase spectrale spécifique. Le spectre de l'impulsion mis en forme de la sorte est ensuite rassemblé par une lentille et un réseau, symétriques du système utilisé pour disperser l'impulsion. La forme temporelle de l'impulsion à la sortie du système est caractéristique de la modulation de phase spectrale imposée par le SLM. L'étendue spectrale du champ est fixée par la durée de l'impulsion incidente. Une impulsion initiale de 100 fs conduit à une étendue spectrale de 10 THz. La résolution spectrale accessible est de l'ordre de 10 GHz. Ces performances tombent dans le domaine des matériaux PSHB à matrice polymère.

Ce dernier exemple semble indiquer qu'une source ultra-brève est nécessaire pour tirer partie de la capacité de stockage d'un matériau PSHB à matrice polymère. La section

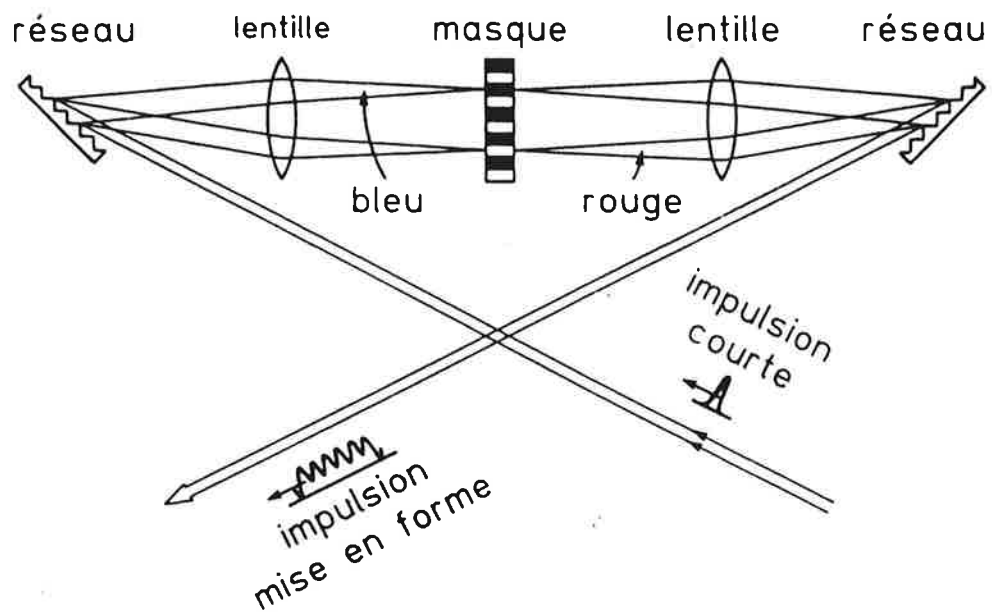


Figure 5.5: Mise en forme spectrale d'une impulsion



suivante montre qu'une source de lumière incohérente peut être avantageusement utilisée à la place.

## 5.5 Holographie spectrale en lumière incohérente

Des impulsions de lumière incohérente peuvent posséder des spectres très larges, en rapport inverse du temps de cohérence de la lumière. Ces spectres présentent des fluctuations aléatoires à l'échelle de l'inverse de la durée de l'impulsion, dues à la nature stochastique des impulsions. On peut néanmoins leur appliquer des formes spectrales spécifiques, tout comme on peut structurer une impulsion laser courte. En tirant parti des propriétés de la corrélation entre impulsions, déjà exposés dans la section 4.4, on peut graver ces formes spectrales dans un matériau PSHB, sans les fluctuations stochastiques des impulsions porteuses. La lecture du hologramme peut également être effectuée en lumière incohérente. L'analyse temporelle du signal à l'aide d'un corrélateur d'amplitude élimine les fluctuations stochastiques de l'impulsion de lecture.

On suppose que les impulsions  $E_1$  et  $E_2$  sont issues d'une même source de lumière incohérente. Les formes spectrales et spatiales spécifiques  $f_1(\vec{r}; \delta)$  et  $f_2(\vec{r}; \delta)$  que l'on désire inscrire dans le matériau sont des modulations des spectres de l'impulsion laser. On écrit les amplitudes spectrales des impulsions  $E_1$  et  $E_2$  sous la forme

$$\hat{E}_j(\vec{r}; \delta) = \hat{E}(\delta) \hat{f}_j(\vec{r}; \delta) \quad j = 1, 2 \quad (5.21)$$

où  $\hat{E}(\delta)$  est l'amplitude spectrale de la source, et  $\hat{f}_j(\vec{r}; \delta)$  le facteur de forme spectral et spatial appliqué à l'impulsion laser. La forme  $\hat{f}_j(\vec{r}; \delta)$  est cachée derrière les fluctuations stochastiques de  $\hat{E}(\delta)$  (figure 5.6).

L'expression 5.16 qui décrit la structure spectrale  $\delta n(\vec{r}; \delta)$  inscrite par deux impulsions  $E_1$  et  $E_2$  reste valable dans le cas présent. Mais il faut tenir compte du caractère incohérent des impulsions. L'enregistrement de  $\delta n(\vec{r}; \delta)$  met en jeu un grand nombre de séquences excitatrices. L'accumulation des séquences excitatrices est nécessaire pour inscrire une

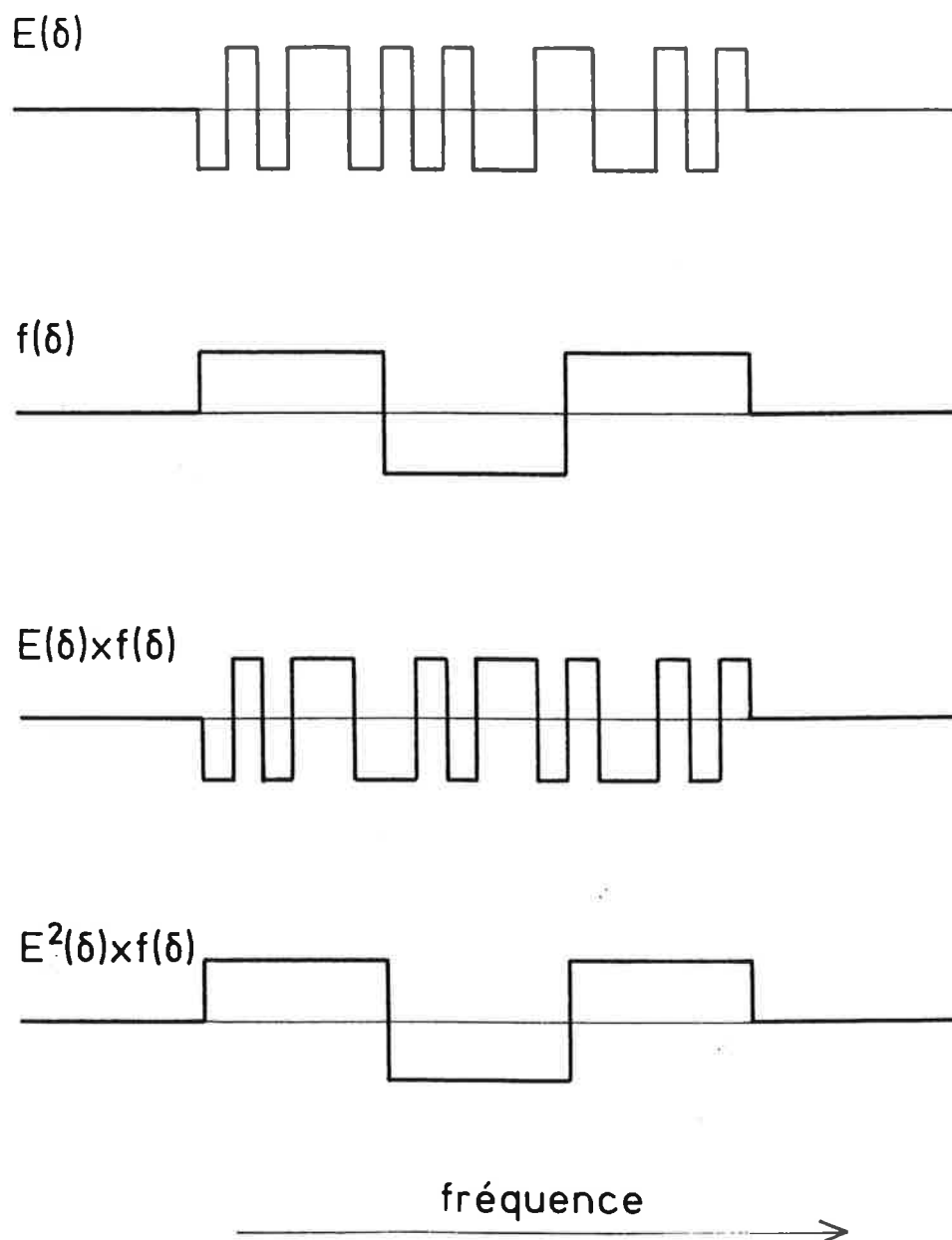


Figure 5.6: Facteur de forme spectral appliqué à une impulsion incohérente. Exemple simple où la structure de l'impulsion et le facteur de forme sont des fonctions de phase.

structure de bon contraste. Ceci résulte de la faible efficacité du processus de gravure, et de la condition de champ faible indispensable pour réaliser une gravure sans distorsion. La structure enregistrée est donc la moyenne de l'expression 5.16 sur toutes les séquences excitatrices:

$$\delta n(\vec{r}; \delta) = n(\delta) [\langle \hat{E}_2(\vec{r}; \delta) \hat{E}_1^*(\vec{r}; \delta) \rangle e^{-i\delta t_{12}} \otimes h(\delta)] e^{-i\vec{K} \cdot \vec{r}} + c.c. \quad (5.22)$$

où les signes  $\langle \rangle$  symbolisent la moyenne sur les fluctuations stochastiques des impulsions lasers. En développant les amplitudes spectrales des champs en fonction de leurs facteurs de formes, on fait apparaître le spectre moyen  $\langle |\hat{E}(\delta)|^2 \rangle$  des impulsions laser. Si ce spectre est beaucoup plus large que les facteurs de formes  $\hat{f}_j(\vec{r}; \delta)$ , il peut être considéré comme constant dans l'expression ci-dessus. Cette hypothèse revient à considérer que le temps de cohérence des impulsions est très court devant le temps caractéristique d'évolution des formes temporelles  $f_j(\vec{r}; t)$ . Moyennant cette hypothèse, on a

$$\delta n(\vec{r}; \delta) = \int n(\delta) [\hat{f}_2(\vec{r}; \delta) \hat{f}_1^*(\vec{r}; \delta) e^{-i\delta t_{12}} \otimes h(\delta)] d\delta + c.c. \quad (5.23)$$

Cette expression est l'équivalent de celle qui décrit la structure construite par des impulsions cohérentes. Les facteurs de formes  $\hat{f}_1(\vec{r}; \delta)$  et  $\hat{f}_2(\vec{r}; \delta)$  des impulsions incohérentes s'inscrivent dans le matériau comme les amplitudes  $\hat{E}_1(\vec{r}; \delta)$  et  $\hat{E}_2(\vec{r}; \delta)$  des impulsions non stochastiques considérées précédemment. On peut donc réaliser avec des impulsions de lumière incohérente les mêmes hologrammes qu'avec des impulsions courtes.

On considère maintenant la lecture de  $\delta n(\vec{r}; \delta)$  par l'impulsion longue de lumière incohérente  $E_3(\vec{r}; t)$ . L'amplitude spectrale de cette impulsion est décrite par

$$\hat{E}_3(\vec{r}; \delta) = \hat{E}'(\delta) \hat{f}_3(\vec{r}; \delta) \quad (5.24)$$

où  $\hat{f}_3(\vec{r}; \delta)$  est le facteur de forme caractéristique de l'impulsion, et  $\hat{E}'(\delta)$  l'amplitude spectrale de la source.

On fait l'hypothèse que les formes temporelles  $f_1(\vec{r}; t)$  et  $f_2(\vec{r}; t - t_{12})$  ne se recouvrent pas. C'est l'équivalent de l'hypothèse de séparation temporelle des impulsions  $\hat{E}_1(\vec{r}; t)$

et  $\tilde{E}_2(\vec{r}; t)$ , considérée dans la section précédente. Elle a les mêmes conséquences: d'une part la causalité interdit l'émission d'un signal dans la direction  $\vec{k}_3 - \vec{K}$  et d'autre part l'expression du signal 5.13 est valable. L'amplitude du signal émis s'écrit donc

$$\tilde{E}_S(\vec{r}; t) = \int n(\delta) [\hat{E}'(\delta) \hat{f}_3(\vec{r}; \delta) e^{i\delta(t-t_3)} \otimes h(\delta)] [\hat{f}_2(\vec{r}; \delta) \hat{f}_1^*(\vec{r}; \delta) e^{-i\delta t_{12}} \otimes h(\delta)] d\delta \quad (5.25)$$

Dans cette expression la forme spécifique  $\hat{f}_3(\vec{r}; \delta) \hat{f}_2(\vec{r}; \delta) \hat{f}_1^*(\vec{r}; \delta)$  est cachée derrière la structure incohérente de l'amplitude spectrale  $\hat{E}'(\delta)$  de l'impulsion de lecture. Pour analyser le résultat du produit des facteurs de forme, on mesure à l'aide d'un corrélateur la fonction de corrélation croisée de champ entre le signal et la référence  $E'(t - t_3)$ , c'est à dire une réplique de l'impulsion laser dont est issue l'impulsion de lecture  $E_3(\vec{r}; t)$ . La fonction de corrélation s'écrit:

$$G(\vec{r}; T) = \int \langle \tilde{E}_S(\vec{r}; t) \tilde{E}'^*(t - t_3 - T) \rangle dt \quad (5.26)$$

où  $\tilde{E}'(t - t_3 - T)$  est l'amplitude de l'impulsion de référence, décalée dans le temps de l'intervalle  $T$  et les signes  $\langle \rangle$  indiquent que l'on considère la moyenne de la fonction de corrélation sur les fluctuations de la lumière incohérente. On montre plus loin que lorsque l'impulsion de lecture est suffisamment longue, le signal de corrélation obtenu en une seule lecture est très proche de sa valeur moyenne. Dans cette expression,  $G(\vec{r}; T)$  est une fonction à deux dimensions spatiales (2D). La mesure de cette fonction nécessite un corrélateur temporel 2D. La méthode de mesure de la corrélation basée sur la détection d'interférences en quadratures (chapitre 3) peut être étendue à 2D.

Avec l'hypothèse que le spectre moyen  $\langle |\hat{E}'(\delta)|^2 \rangle$  de l'impulsion de lecture est très large par rapport à la forme  $\hat{f}_3(\vec{r}; \delta)$ , la fonction de corrélation  $G(\vec{r}; T)$  peut se mettre sous la forme

$$G(\vec{r}; T) = \int n(\delta) [\hat{f}_3(\vec{r}; \delta) e^{i\delta T} \otimes h(\delta)] [\hat{f}_2(\vec{r}; \delta) \hat{f}_1^*(\vec{r}; \delta) e^{-i\delta t_{12}} \otimes h(\delta)] d\delta \quad (5.27)$$

Cette expression est l'analogie de l'expression 5.13 qui décrit l'amplitude du signal formé par des impulsions séparées dans le temps. L'analyse par corrélation croisée de champ en lumière incohérente permet d'analyser le produit des facteurs de forme indépendamment des fluctuations de la lumière incohérente. Cette propriété peut être mise en œuvre pour la reconnaissance de forme ou pour le stockage d'informations, comme le montre la section 5.6.

On a discuté dans les sections précédentes des mécanismes de stockage/lecture, et de corrélation de formes temporelles. Dans le cadre du traitement optique de l'information, ces formes sont constituées d'informations distinctes auxquelles il faut pouvoir accéder. La section suivante présente les méthodes d'adressage déjà expérimentées et les évalue en fonction de la rapidité d'accès qu'elles autorisent.

## 5.6 Adressage de l'information stockée dans le domaine spectral

### 5.6.1 Adressage temporel: écho de photon

En holographie spectrale, la méthode d'adressage la plus triviale consiste à représenter l'information par un train d'impulsions courtes régulièrement espacées [10]. La position temporelle d'une impulsion dans le train constitue l'adresse de la donnée. C'est un adressage temporel. La présence ou l'absence d'une impulsion représente le bit 1 ou 0. La durée maximale du train d'information est déterminée par le temps de relaxation  $\Gamma_h^{-1}$  de la cohérence des molécules actives du milieu. Par ailleurs, la durée minimale des impulsions restituées par le hologramme est l'inverse  $\Gamma_i^{-1}$  de la bande d'absorption du matériau. La séparation temporelle entre les impulsions successives du train de données ne doit donc pas être inférieure à  $\Gamma_i^{-1}$ . Il s'ensuit que le nombre maximum d'impulsions du train de données est déterminé par le rapport  $\Gamma_i/\Gamma_h$ . On peut donc dans certains matériaux polymères stocker en principe jusqu'à  $10^4$  bits d'informations dans la même tache laser. Une équipe japonaise [52] a rapporté le stockage de 248 bits dans le même élément mémoire. Cette méthode permet également de stocker des images spatiales 2D [53,54,55].

### 5.6.2 Adressage spectral

Une autre méthode de stockage, distincte de l'holographie spectrale, consiste à associer une fréquence spécifique à chaque information [56]. Dans le cas où l'on désire stocker des informations binaires, le bit 1 est représenté par un trou creusé à l'aide d'un laser

monochromatique. L'absence de trou représente le bit 0. La fréquence à laquelle le trou est creusé est l'adresse de l'information. La lecture des informations consiste à sonder l'absorption du matériau en balayant la fréquence du laser sur toute la largeur inhomogène de la transition. C'est un adressage spectral. Le nombre de trous discernables que l'on peut creuser est en principe déterminé par le rapport  $\Gamma_i/\Gamma_h$ . Cette méthode d'adressage offre donc la même capacité de stockage que la méthode d'adressage temporel. Elle offre également la possibilité de stocker des images spatiales 2D [57]. Chaque image est inscrite par holographie spatiale à une fréquence spécifique de la bande d'absorption. Un certain nombre de groupes de recherche dans le monde se consacrent à l'étude de ce type de stockage [58,59].

### 5.6.3 Difficultés liées aux méthodes d'adressage

Le temps d'accès aléatoire à une image est fondamentalement limité par l'inverse  $\Gamma_h^{-1}$  de la largeur homogène de la transition, pour les deux méthodes d'adressage précédente. Il est en pratique considérablement limité par des difficultés d'ordre technologique. Pour l'adressage spectral, c'est le balayage en fréquence du laser qui constitue le facteur limitatif. Pour bénéficier de toute la capacité de stockage du matériau, le laser doit être spectralement plus fin que la largeur homogène  $\Gamma_h$  et être capable de balayer un intervalle spectral aussi large que  $\Gamma_i$ . Pour un matériau à grande capacité de stockage, où le rapport  $\Gamma_i/\Gamma_h$  est de l'ordre de  $10^4$ , le laser doit donc être capable de parcourir un domaine spectral de l'ordre de  $10^4$  fois sa largeur spectrale, avec une précision relative meilleure que  $10^{-4}$ . Ceci est difficilement réalisable avec les lasers actuels, et ne peut être effectué que lentement. La cadence de restitution des informations est en pratique très en deçà de la cadence vidéo. Pour l'adressage temporel, la difficulté provient de ce que tout le train d'images est restituée à chaque lecture de l'élément mémoire. Quand on utilise toute la capacité de stockage du matériau, l'accès aléatoire à une image spécifique nécessite l'emploi d'une porte temporelle de résolution meilleure que  $\Gamma_i^{-1}$ . Dans un cristal où la largeur inhomogène est de l'ordre du GHz, des modulateurs électro-optiques peuvent être utilisés. Cependant, l'emploi de tels dispositifs est difficilement compatible avec la restitution d'une information

spatiale. De plus ils ne s'appliquent pas aux matériaux de type verre ou polymère pour lesquels la largeur inhomogène est de l'ordre du THz. Il faut alors avoir recours à des techniques optiques d'échantillonnage de type corrélation pour restituer les données [60]. Ces techniques impliquent le déplacement d'un élément mécanique, nécessairement lent et encombrant.

Ces difficultés technologiques seront peut être surmontées ou contournées dans les prochaines années. Il demeure que l'investigation de nouvelles méthodes d'adressage de l'information stockée spectralement est nécessaire.

## 5.7 Adressage par codage de phase spectral

Cette section décrit le principe d'une méthode originale d'adressage des informations stockées dans un matériau PSHB par holographie spatio-temporelle. Elle repose sur la possibilité d'utiliser le hologramme spectral comme un élément mémoire intelligent et sur les propriétés particulières des mesures de corrélation de champ. Elle permet de réaliser un accès aléatoire aux informations beaucoup plus rapide que les méthodes décrites ci-dessus. De plus, elle peut être mise en œuvre avec des impulsions de lumière incohérente. Son développement est rendu possible par les progrès réalisés dans le domaine des modulateurs spatiaux de lumière et par la bonne sensibilité des corrélateurs que nous avons développés.

Dans cette méthode, les différentes images sont enregistrées séquentiellement. On superpose donc dans l'échantillon les hologrammes des différentes images. Pour l'enregistrement d'un hologramme, on part d'une onde plane de lumière incohérente  $E(t)$  qui est divisée pour former les impulsions "image" et "adresse"  $E_{1,l}(\vec{r}; t)$  et  $E_{2,l}(\vec{r}; t)$  (figure 5.7). Sur le trajet "image", on interpose une image 2D. La distribution spatiale du champ résultant sur l'élément mémoire est le facteur de forme  $\hat{f}_{2,l}(\vec{r})$  qui représente l'information. Sur le trajet "adresse", un dispositif de mise en forme spectral utilisant un SLM applique un code de phase spectral spécifique  $\hat{f}_{1,l}(\delta)$  à l'impulsion de référence. Ce code représente l'adresse

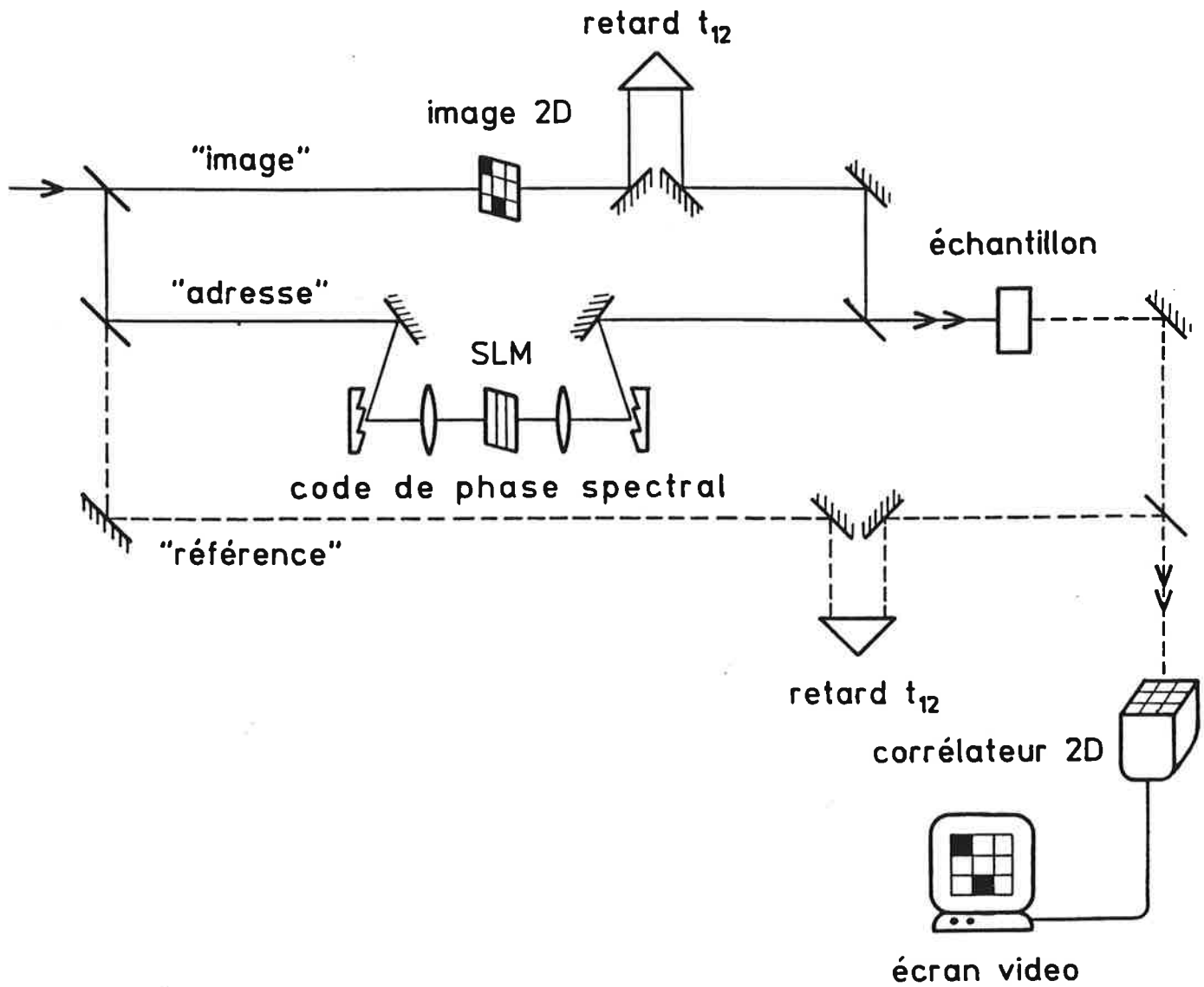


Figure 5.7: Adressage des images par codage de phase spectral



de l'image.

Dans cette configuration, aucune forme temporelle particulière n'est appliquée à l'impulsion "image", c'est à dire que la forme temporelle de  $f_{2,l}(\vec{r})$  est infiniment courte. La durée de la forme  $f_{1,l}(t)$  est quant à elle déterminée par l'inverse de la largeur  $\delta_{SLM}$  de la tranche spectrale du SLM. La condition de séparation temporelle des formes temporelles des impulsions  $E_{1,l}(\vec{r}; t)$  et  $E_{2,l}(\vec{r}; t - t_{12})$  se réduit donc à la condition  $t_{12} > \delta_{SLM}^{-1}$ .

Les hologrammes des différentes images sont enregistrés avec le même décalage  $t_{12}$  entre les impulsions "image" et "adresse". Ce sont les codes de phases  $\hat{f}_{1,l}(\delta)$  qui distinguent les différents hologrammes. L'ensemble des codes sont choisis de telle sorte qu'ils forment un ensemble orthogonal:

$$\int \hat{f}_{1,l}(\delta) \hat{f}_{1,m}^*(\delta) d\delta = 0 \quad l \neq m \quad (5.28)$$

Plusieurs ensembles de fonctions peuvent réaliser cette condition [61].

La superposition des hologrammes est décrite par

$$\delta n(\vec{r}; \delta) = \sum_{l=1}^N \int n(\delta) [\hat{f}_{2,l}(\vec{r}) \hat{f}_{1,l}^*(\delta) e^{-i\delta t_{12}} \otimes h(\delta)] d\delta + c.c. \quad (5.29)$$

où  $N$  est le nombre de hologrammes superposés.

Pour restituer l'image  $\hat{f}_{2,m}(\vec{r})$ , on excite le hologramme avec une impulsion  $E_3(\vec{r}; t)$  qui contient le même code de phase spectral que la référence utilisée pour enregistrer cette image:

$$\hat{f}_3(\delta) = \hat{f}_{1,m}(\delta) \quad (5.30)$$

et on mesure avec un corrélateur la corrélation  $G(\vec{r}; T = t_{12})$  définie dans la section 4.3.3. D'après les équations 5.29 et 5.27, elle s'écrit

$$G(\vec{r}; t_{12}) = \hat{f}_{2,l}(\vec{r}) \sum_{l=1}^N \int \hat{f}_3(\delta) \hat{f}_{1,l}^*(\delta) d\delta \quad (5.31)$$

où on a omis les formes des raies homogène et inhomogène pour simplifier. Dans cette expression, l'intégrale sur  $\delta$  est la valeur de la fonction de corrélation  $f_3(t) \otimes f_{1,l}(t)$  en

$t = 0$ . Cette opération est effectuée par le hologramme, utilisé comme un élément mémoire intelligent. Elle effectue la reconnaissance de forme, c'est à dire dans notre cas la reconnaissance d'adresse, ce qui permet d'accéder à l'image recherchée. D'après l'équation 5.30, l'expression ci-dessus peut en effet se mettre sous la forme

$$G(\vec{r}; t_{12}) = \hat{f}_{2,m}(\vec{r}) \int |\hat{f}_{1,m}(\delta)|^2 d\delta + \sum_{l \neq m=1}^N \hat{f}_{2,m}(\vec{r}) \int \hat{f}_{1,l}(\delta) \hat{f}_{1,m}^*(\delta) d\delta \quad (5.32)$$

qui, avec la relation d'orthogonalité 5.28, se réduit à

$$G(\vec{r}; t_{12}) = \hat{f}_{2,m}(\vec{r}) \int |\hat{f}_{1,m}(\delta)|^2 d\delta \quad (5.33)$$

La valeur de la corrélation restitue l'image  $\hat{f}_{2,m}(\vec{r})$  indépendamment des autres images stockées. On a ainsi un accès aléatoire aux différentes images stockées.

La corrélation  $G(\vec{r}; t_{12})$  considérée ci-dessus est la moyenne statistique sur les fluctuations de la lumière incohérente. La valeur de la corrélation obtenue avec une seule lecture est proche de cette valeur moyenne. On peut en effet montrer que la dispersion relative des valeurs de corrélation  $C$  mesurées avec une seule impulsion de lecture s'exprime comme

$$\frac{\langle |C|^2 \rangle - |\langle C \rangle|^2}{|\langle C \rangle|^2} = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{2\pi N}{\Delta_{holo} \tau_l} \quad (5.34)$$

où  $N$  est le nombre de données stockées,  $\Delta_{holo}$  est la largeur spectrale des formes  $\hat{f}_{1,l}(\delta)$ , c'est à dire la largeur des hologrammes, et  $\tau_l$  est la durée des impulsions. Par conséquent, la dispersion reste très inférieure à 1 si les impulsions sont beaucoup plus longues que  $N$  fois l'étendue  $\Delta_{holo}^{-1}$  des formes temporelles  $f_{1,l}(t)$ . Cette condition est facilement réalisable. Avec des impulsions de 10 ns de durée, et des hologrammes de 1 THz de large, le produit  $\Delta_{holo} \tau_l$  est de  $10^4$ . On peut donc stocker plusieurs milliers d'images et les relire séparément en coup unique sans ambiguïté.

La méthode d'adressage décrite ci-dessus permet de réaliser un accès aléatoire aux informations sans déplacement d'élément mécanique. Une fois le retard  $T$  ajusté à la valeur  $t_{12}$ , la restitution d'une image spécifique ne demande que deux opérations, c'est à dire la composition de son adresse par le modulateur de phase, et la mesure de la valeur  $G(\vec{r}; t_{12})$ . On peut alors espérer atteindre la cadence vidéo pour la restitution des images.

La présentation ci-dessus de la méthode d'adressage fait un certain nombre d'hypothèses simplificatrices. On n'a pas tenu compte des formes des raies d'absorption homogène et inhomogène, des formes des spectres des champs, de la densité optique de l'échantillon mémoire. Il va de soi que la prise en compte de ces paramètres réduit la sélectivité effective de la méthode d'adressage, c'est à dire induit de la diaphonie entre les différentes images stockées. L'article présenté dans l'annexe D mène une étude détaillée de l'influence de ces paramètres sur la diaphonie. Il ressort de cette étude que la principale cause de diaphonie est la non-uniformité de la distribution spectrale des champs et des chromophores. Cependant, les résultats de la simulation numérique effectuée dans cette étude, avec des paramètres réalistes, montre que la diaphonie reste négligeable: si les pixels des images sont des bits 0 ou 1, il n'y a aucun recouvrement entre les valeurs de la corrélation correspondant aux bits 0 et 1.

L'expérimentation de la méthode d'adressage dans le cas où l'information est binaire et sans dimension spatiale est en cours. Il semble que la principale source de difficultés réside dans la précision du codage spectral, qui dépend de manière cruciale de la dimension de la tache focale dans le plan du SLM. Un travail expérimental soigné sera probablement nécessaire pour optimiser le rapport signal sur bruit. La bonne sensibilité des corrélateurs que nous avons développés sera un outil précieux. L'exploitation des résultats expérimentaux apportera certainement des éléments intéressants pour la compréhension des mécanismes physiques de l'holographie spectrale. L'étape suivante est l'extension au traitement d'images 2D. Il faudra pour cela développer un corrélateur temporel 2D.

## 5.8 Conclusion

Le mélange à quatre ondes dans les matériaux PSHB est assimilable à un processus d'holographie spectrale et spatiale. L'holographie spectrale est l'analogue de l'holographie spatiale dans les domaines spectral et temporel. L'holographie spatio-temporelle possède de nombreuses applications potentielles pour le stockage et le traitement optique de l'information. La plupart de ces applications n'en sont aujourd'hui qu'au stade de

la démonstration. Leur développement est limité par la nécessité, avec les matériaux PSHB disponibles aujourd'hui, de travailler à basse température. Dans l'attente de matériaux plus faciles d'emploi, l'investigation de méthodes de stockage permettant d'utiliser au mieux toute la capacité de stockage d'un support PSHB est nécessaire.

Pour le stockage optique de l'information dans la bande d'absorption des matériaux PSHB, essentiellement deux approches sont utilisées. La première consiste à attribuer une fréquence spécifique à chaque image. C'est un adressage spectral. Selon l'autre approche, l'information est stockée par holographie spatio-temporelle. Dans la méthode la plus triviale l'information a la forme d'un train d'impulsions, chacune transportant une image. La position d'une image dans le train constitue son adresse. On parle d'adressage temporel. Avec ces deux méthodes, la cadence de restitution des images est limitée par des difficultés d'ordre technologique et est très inférieure à la cadence vidéo. Nous avons imaginé une nouvelle méthode pour adresser les informations stockées par holographie spectrale. Elle contourne les difficultés liées à l'adressage temporel, et permet d'envisager un accès aléatoire aux images à la cadence vidéo. Elle peut être mise en œuvre en lumière incohérente. Cette méthode est basée sur la possibilité d'utiliser un hologramme spectral comme un élément mémoire intelligent, et sur les propriétés de la détection par corrélation de champ. Dans cette méthode, les images sont enregistrées séquentiellement avec un code de phase spectral spécifique pour chaque image. Ce code de phase représente l'adresse de l'image. Il est appliqué à l'aide d'un modulateur spatial de lumière selon une technique bien établie. Pour accéder à une image, on relit le hologramme avec le code de phase correspondant à l'adresse de l'image désirée. Le hologramme effectue la reconnaissance d'adresse. La mesure de la corrélation du signal holographique avec une réplique de l'impulsion de lecture restitue l'image désirée et elle seule. L'étude théorique de cette méthode montre sa validité dans un contexte expérimental. Son expérimentation est rendue possible grâce aux progrès réalisés dans le domaine des modulateurs spatiaux de lumière et à la bonne sensibilité des corrélateurs que nous avons développés. Les expériences, dans le cas d'informations binaires sans dimension spatiale sont en cours. Le projet de recherche comprend le développement de la méthode au traitement d'images bidimensionnelles.





# Chapitre 6

## Conclusion

Je me suis intéressé à deux aspects de la corrélation de champ et du mélange à quatre ondes: la spectroscopie résolue en temps en lumière incohérente et le traitement optique de l'information. L'étude menée en spectroscopie a été motivée par la faible sensibilité des techniques déjà expérimentées pour la mesure de  $T_1$  en lumière incohérente. J'ai examiné ces méthodes à l'aide d'une technique diagrammatique, afin de mettre en évidence les raisons de leur inadéquation. Cette étude montre, d'une part que la fraction utile du signal pour la mesure de  $T_1$  est faible, et d'autre part que les techniques employées ne permettent pas d'isoler cette fraction utile. Ces techniques reposent sur la détection de l'énergie du signal. On montre dans ce mémoire qu'une détection par corrélation croisée avec un champ référence permet d'isoler la fraction pertinente du signal, et d'observer la relaxation des populations sur fond noir. Plusieurs configurations sont possibles, qui diffèrent par la nature du champ référence. J'ai expérimenté la configuration qui offre la meilleure sensibilité, et vérifié ainsi les prédictions théoriques.

L'expérience de spectroscopie a été limitée par la faible sensibilité du corrélateur disponible. Cette constatation a motivé le développement d'un nouvel appareil dont la sensibilité est 400 fois supérieure à celle du précédent. Ce corrélateur fonctionne selon le principe de l'analyse de Fourier électronique d'une figure d'interférence, formée sur une barrette de photodétecteurs. Un autre corrélateur a été réalisé, fonctionnant selon le principe de la détection simultanée de deux états d'interférence en quadrature. La caractérisation de ces

corrélateurs a permis de dégager les facteurs déterminant leur sensibilité dans une situation expérimentale. Par ailleurs, l'étude de la sensibilité comparée des deux méthodes de mesure fait apparaître qu'un dispositif à photodétecteurs multiples est plus favorable dans une situation de faible corrélation quand on dispose d'un éclairage suffisant, tandis qu'un corrélateur à détecteur unique est mieux adapté à une situation de forte corrélation mais de faible éclairage.

La réflexion sur la corrélation de champ et le mélange à quatre ondes nous a conduit à imaginer une nouvelle méthode pour adresser les informations dans les mémoires holographiques haute-densité. L'approche proposée doit permettre d'accéder aux images à la cadence vidéo, et fonctionne en lumière incohérente. Elle exploite l'opération de corrélation de champ interne du mélange à quatre ondes comme technique de reconnaissance de forme temporelle. Cette opération est réalisée dans le matériau mémoire, utilisé comme processeur optique. La détection des images met en œuvre un corrélateur d'amplitude utilisé comme porte optique. L'étude théorique de cette méthode démontre sa validité dans un contexte expérimental. Son expérimentation dans le cas d'informations binaires sans dimension spatiale est en cours. Les enseignements tirés de cette expérience seront utiles pour la suite du projet, qui concerne l'extension de la technique au traitement d'images bidimensionnelles.







# Annexe A

## Aspects techniques du corrélateur à franges spatiales

Cette appendice traite des aspects techniques du dernier prototype de corrélateur AF que j'ai réalisé. Ce prototype a été développé dans le but principal d'obtenir un appareil plus sensible que le premier. On commence par donner un aperçu général du fonctionnement des deux prototypes avant de présenter les particularités du premier et les objectifs qui ont guidé la réalisation du second. Puis on donne les caractéristiques techniques du dernier prototype.

### A.1 Les deux prototypes

Ces appareils réalisent l'échantillonnage du module  $|g_{12}(T)|$  de la fonction de corrélation croisée de deux champs  $E_1(t)$  et  $E_2(t)$ , telle qu'elle est définie dans le chapitre 2. La figure A.1 présente un schéma de ces prototypes. Les champs  $E_1(t)$  et  $E_2(t)$  sont décalés dans le temps l'un par rapport à l'autre à l'aide d'une ligne à retard optique variable motorisée et on forme les franges d'interférences des deux champs décalés  $E_1(t)$  et  $E_2(t - T)$  sur une barrette de photodétecteurs. Un système informatique d'acquisition et de traitement du signal convertit le signal vidéo de la barrette en code digital, calcule la transformée de Fourier de la distribution spatiale d'énergie sur la barrette et en extrait le contraste  $C(T)$  des franges qui est directement proportionnel au module  $|g_{12}(T)|$  de la corrélation des deux

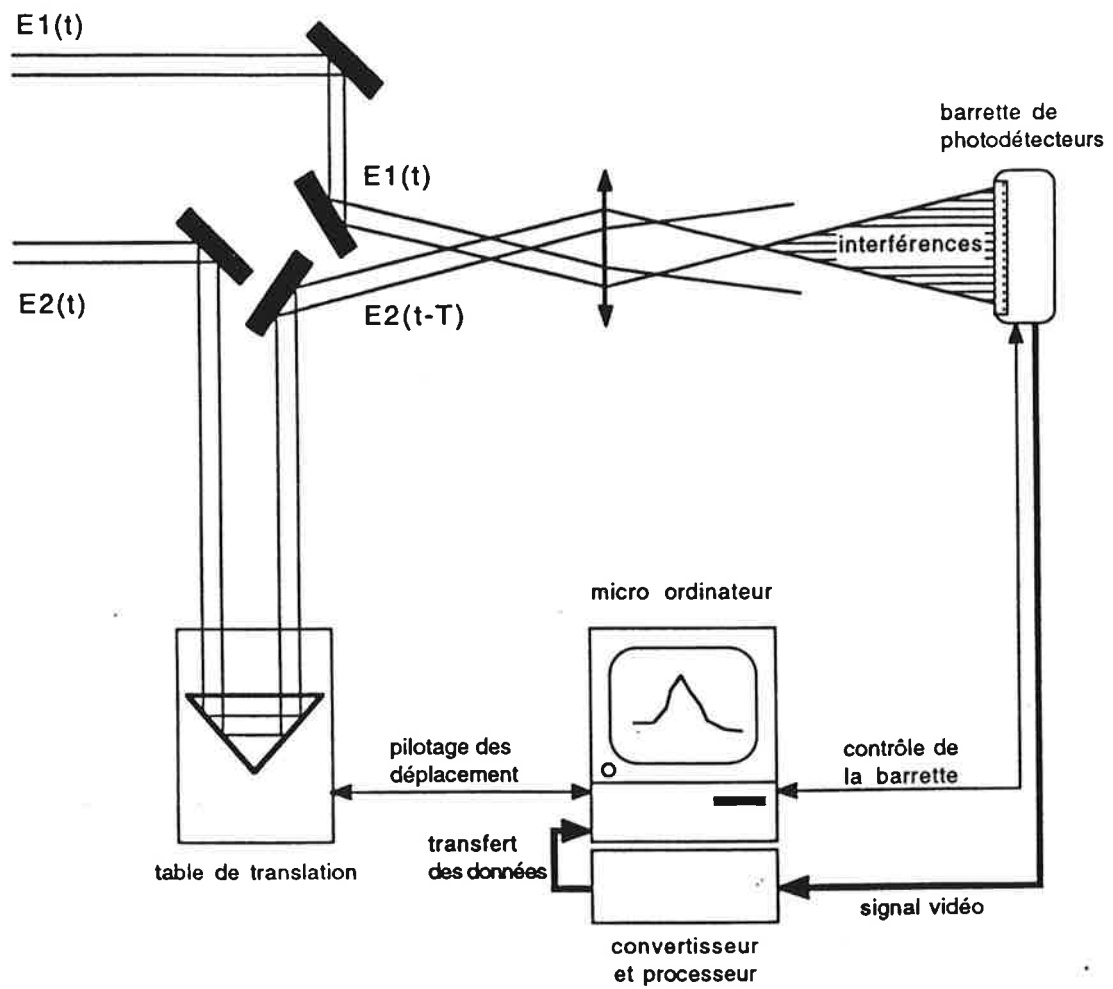


Figure A.1: Schéma des corrélateurs

champs. Le micro-ordinateur (PC) qui contrôle le déroulement des cycles d'échantillonnage affiche à l'écran la fonction  $|g_{12}(T)|$  au fur et à mesure de son échantillonnage.

## A.2 Le premier prototype

Le premier prototype fut réalisé en 1989 [62]. Il fonctionne avec un laser nanoseconde large-bande tirant à la cadence de 15 Hz. Les tirs laser sont déclenchés par le micro-ordinateur. Chaque échantillon est acquis avec une impulsion laser, pendant le déplacement de la ligne à retard. La barrette de photodétecteurs est un système à transfert direct de charge (CCD). L'acquisition et le traitement du signal vidéo sont effectués par deux éléments différents. Le transfert des données entre ces éléments passe par l'intermédiaire du PC. Ce fonctionnement est lent et limite la fréquence du cycle d'échantillonnage à 15 Hz, compatible cependant avec le laser utilisé. D'autre part, la dynamique de la chaîne de détection (barrette et convertisseur) est de 8 bits. Ceci limite la sensibilité de l'appareil et constitue une source de difficultés dans certaines expériences de spectroscopie (voir chapitre 4). Ces considérations ont motivé la réalisation d'un nouvel appareil avec comme objectif principal d'obtenir une dynamique supérieure à 1000. L'obtention d'une cadence d'échantillonnage aussi élevée que possible est le second objectif du nouveau prototype. Celui-ci est prévu pour être utilisé avec un laser à colorant picoseconde.

## A.3 Le nouveau prototype

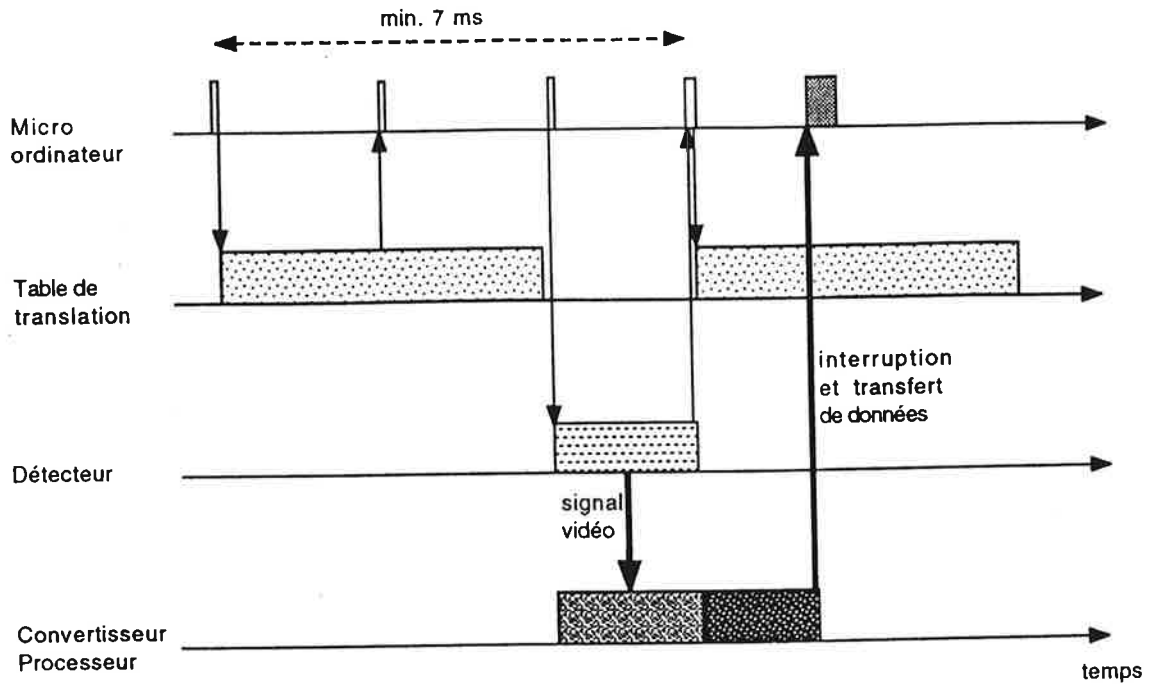
### A.3.1 Éléments constitutifs

Les performances de la chaîne de détection fixent la limite des performances du corrélateur. Le premier élément de cette chaîne est la barrette de photodétecteurs qu'il faut considérer avec son électronique de commande et de mise en puissance du signal. Nous avons acquis une barrette de photodiodes (EG&G Reticon série S, 512 pixels) avec son électronique. La dynamique de l'ensemble à température ambiante est de 12 bits avec une cadence de lecture pouvant aller jusqu'à 450 KHz. L'élément suivant de la chaîne est

le module d'acquisition et de traitement du signal. Nous avons choisi une carte (Datel PC430C) constitué d'un convertisseur analogique-digital 12 bits-1MHz et d'un processeur arithmétique 32 bits-40 MHz (Texas-instrument 320C30) capable d'effectuer une opération de transformée de Fourier (FFT) sur 1024 points en 1,7 ms. La carte s'insère dans le micro-ordinateur (AST série 386) qui contrôle le déroulement des cycles d'échantillonnage. La carte comme le PC sont programmés en langage C, le langage de haut niveau le mieux adapté au développement des applications en temps réel. La réunion du convertisseur et du processeur sur une seule carte présente l'avantage d'accélérer la transmission des données entre ces deux éléments et de donner à l'ensemble une plus grande souplesse d'utilisation. Le dernier élément du corrélateur, la ligne à retard optique, est constituée d'une table de translation motorisée en pas à pas (Micro-contrôle UE71PP), surmontée de rétroreflecteurs. Les déplacements de la table se font par pas de  $1 \mu\text{m}$  à la vitesse maximale de 5 KHz. La table est munie d'une logique interne (Micro-contrôle ITL09) programmable par l'intermédiaire du PC. Une fois les paramètres du déplacement programmés, le déclenchement d'un déplacement se fait par un simple signal électronique.

### A.3.2 Cadencement de la mesure

La figure A.2 présente le diagramme de cadencement d'un cycle d'échantillonnage du nouveau prototype. Le micro-ordinateur (PC) envoie un signal à la table de translation qui réagit en effectuant le déplacement préprogrammé et avertit le PC à la fin du déplacement. Celui-ci, après un temps d'attente nécessaire pour que le montage optique atteigne une stabilité mécanique interférométrique, envoie un signal à la barrette. Ceci déclenche la lecture des pixels de la barrette et la conversion simultanée du signal vidéo résultant en code digital. Le processeur calcule immédiatement la valeur de la corrélation et avertit le PC à la fin du calcul afin que celui-ci récupère cette valeur et l'affiche à l'écran. Dès que la séquence de lecture des pixels est terminée, la barrette envoie un signal électronique au PC. Celui-ci déclenche alors un nouveau déplacement de la table de translation. Ainsi le cycle suivant est initié avant la fin du cycle courant, ce qui est rendu possible par l'autonomie des différents éléments du corrélateur. Cette autonomie résulte d'un choix délibéré et



- : signaux électroniques
- : déplacement et stabilisation de la table
- : lecture des pixels du détecteur.
- : récupération de la valeur du contraste et affichage à l'écran du point (C;T) correspondant
- : envoi/réception de signaux électroniques par le PC
- : conversion du signal vidéo en code digital à la cadence de lecture des pixels du détecteur
- : calcul du contraste C et interruption du PC

Figure A.2: Diagramme de cadencement

constitue une nouveauté importante par rapport au fonctionnement du premier prototype. Elle réduit la communication entre les éléments à l'échange de signaux électroniques. Elle simplifie le programme du PC qui synchronise le déroulement des cycles. Ce programme peut par conséquent facilement être adapté à de nombreuses situations expérimentales.

Dans le fonctionnement normal du corrélateur, les pixels de la barrette sont illuminés par la figure d'interférences pendant au moins  $\sim 3$  ms. Le dispositif doit avoir une stabilité mécanique interférométrique pendant cet intervalle de temps. Dès les premiers essais du corrélateur, il apparaît que le temps de stabilisation de la table de translation après un déplacement est de l'ordre de la centaine de millisecondes, alors qu'il était estimé par les ingénieurs de Micro-Contrôle à quelques millisecondes seulement. Ceci limite la fréquence du cycle d'échantillonnage à la dizaine de Hertz, la plus longue partie du cycle étant dévolue à l'attente de la stabilisation. Le constructeur s'avère incapable de réduire ce temps de manière significative. Un obturateur acousto-optique est alors mis en place afin de contrôler la durée pendant laquelle la figure d'interférence se forme sur le détecteur. Avec une ouverture de  $10 \mu\text{s}$ , la fréquence d'échantillonnage peut être portée à sa valeur maximale de 150 Hz. Avec cette ouverture, la source lumineuse doit avoir une puissance moyenne de 1,6 mW pour atteindre le niveau de saturation du détecteur. Cette puissance n'est pas accessible au laser à colorant picoseconde dont nous disposons. Cependant, le fonctionnement avec l'obturateur acousto-optique ajoute à l'étendue du champ d'utilisation du corrélateur. De plus, il nous a été utile pour caractériser le laser picoseconde (cf chapitre 3).





the 1990s, the number of publications on the topic has increased steadily, and the number of authors has increased from 1 to 100.

There are a number of reasons for this increase. First, the topic has become more prominent in the public eye. Second, the topic has become more prominent in the academic community. Third, the topic has become more prominent in the business community.

The first reason for this increase is that the topic has become more prominent in the public eye. This is due to a number of factors, including the following:

1. The topic has become more prominent in the media. This is due to a number of factors, including the following:

1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1.1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

1. The topic has become more prominent in the news. This is due to a number of factors, including the following:

# **Annexe B**

## **Article 1**



FIELD CROSS-CORRELATOR  
FOR ANALYSIS OF ULTRAFAST SIGNALS

K. Dou\*, A. Débarre, J.-L. Le Gouët, I. Lorgeré, and P. Tchério

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II,  
Bâtiment 505, 91405 Orsay Cedex, France

ABSTRACT

The cross-correlation function between two light fields is recorded with the help of a new device. The proposed correlator exhibits ultrashort time resolution. The optical path difference between the two interfering beams has not to be known with interferometric precision. The experimental dynamic range proves to be as large as  $10^5$ . The device features imaging capabilities which could be applied to the analysis of two-dimensional images with ultrashort time resolution.

keywords: ultrashort time resolution, optical sampling, imaging interferometry

Correspondence to: J.-L. Le Gouët, Laboratoire Aime Cotton, CNRS II,  
Batiment 505, 91405 Orsay Cedex, France

\*Permanent address: K.Dou, Changchun Institute of Physics, Chinese  
Academy of Sciences, 1, Yan'an Road, Changchun 130021, China

## 1. INTRODUCTION

This paper is devoted to the description and the demonstration of a field cross-correlation device which has been designed for the time-resolved analysis of ultrafast optical processes.

Cross-correlators are commonly used in optical sampling experiments, where the temporal shape of an ultrafast signal is sampled by scanning the delay between an optical probe pulse, which gives rise to signal emission, and an optical reference pulse which triggers a detection gate [1].

Optical gating can be achieved by mixing the signal with the delayed replica of the probe pulse in a nonlinear crystal and detecting the sum-frequency emission. This is known as intensity cross-correlation [2-4]. The time resolution is given by the duration of the reference pulse.

Optically gated detection can also be accomplished by field cross-correlation [5-14]. Then the signal amplitude is derived from the contrast of the fringes which result from interference with the reference field. While the time resolution of intensity correlation is determined by the reference pulse duration, the relevant parameter in field correlation is the coherence time of light. This makes the latter technique attractive when broadband pulses are used, with coherence time much smaller than the pulse duration.

Two standard ways have been used for the detection of an interference term. The first one is well represented by the Michelson interferometer. Interference is revealed by the light intensity oscillation on the detector when the delay between the interfering beams is scanned [5]. The envelope of the oscillatory component coincides with the correlation function. Extraction of this function from the data requires fulfillment of two conditions. At any recording time, the length of the scan, with respect to the initial position of the device, has to be known with a precision much better than an optical wavelength. In

addition, the same condition applies to the stability of the optical delay during the time needed to record one data point. The other classical approach to observe the interference term was first demonstrated by Thomas Young in 1801. It relies on the detection of the fringes which are built when the two beams of light are made to cross each other. The correlation function is related to the contrast of the spatial interference pattern. Less stringent conditions have to be met. Indeed the required precision on the optical path variation is given by  $c\tau_c$ , where  $\tau_c$  is the coherence time of the light. This quantity is usually much larger than the optical wavelength. The drastic condition on the delay precision is released at the expense of the resolution on the correlation function analysis. While an optical period resolution is attained in the Michelson configuration, this parameter is multiplied by the number of recorded fringes in the case of the crossed beam configuration.

The Young fringes can be recorded as a transient grating in a nonlinear material. The diffraction efficiency of a probe pulse on this grating is related to the fringe contrast, and thus to the correlation function [ 6- 10 ]. The interference pattern can also be detected directly on a photodiode array. The correlation function is then obtained by numerical calculation of the Fourier transform of the energy distribution on the detector [11- 13]. Weak signals can be detected in this way, without the spectral range limitation which applies in the nonlinear optical procedure. It is accomplished at the expense of the time consuming numerical processing. Those both methods are incompatible with imaging interferometry [ 14 ] since each point of the source gives rise to a space extended interference pattern.

Another approach should be mentioned, which does not require the observation of field-interference features but which preserves  $\tau_c$  resolution. It is derived from the intensity interferometry, also known as two-photon interferometry, which has been extensively studied by Handbury Brown and

Twiss [15 ]. The limit on time resolution, which was determined by the detector response time, has been overcome recently [16, 17 ]. However, due to the complex electronic photon-correlation procedure which should be needed to process each pixel, this technique does not seem to be appropriate to imaging interferometry.

The present paper proposes a correlator with imaging capabilities, which does not require any interferometric control of the optical path difference. In this device each point of the source gives rise to an interference signal which is received on a point photodetector, just as in a Michelson interferometer. But the interference term can be separated from the unmodulated background without varying the delay between the beams, just as in the Young configuration. Finally, the signal processing is much faster than Fourier transform.

In section 2, autocorrelation and cross-correlation functions are defined and the new correlator is described. In section 3 an experimental test of the device is presented and discussed.

## 2. THEORETICAL DESCRIPTION

### A. Autocorrelation Function

The light pulse is represented by a classical electric field which reads:

$$E(r,t) = E(t) \exp[i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})] + \text{c.c.} \quad (1)$$

where  $\mathbf{k}$  is wavevector, and  $E(t)$  is a slowly varying function of time, as compared with the optical period. The normalized autocorrelation function of the light field  $E(t)$  is defined as:

$$G(T) = \frac{\left| \int dt E(t) E^*(t - T) \right|}{\int dt |E(t)|^2} \quad (2)$$

The correlation time is given by:

$$\tau_C = \int dt G(t) \quad (3)$$



The autocorrelation function is obtained by detecting the interference between the field and its delayed replica. For that purpose the initial field is split into two parts, and the delay is adjusted by varying the geometrical length of the optical paths before recombining the two fields on a detector. This interference term reads :

$$\int dt E(t) E^*(t - T) \exp \{ i \varphi(T) \} \quad (4)$$

where  $\varphi(T)$  stands for the relative phase shift between the two optical paths. According to the slowly-varying envelope assumption the coherence time  $\tau_c$  is much larger than the optical period  $2\pi/\omega$ . As a function of  $T$ , the interference term thus behaves as a slowly varying envelope  $\int dt E(t) E^*(t - T)$  which is modulated by the fast varying phase factor  $\exp(i\varphi(T))$ . In a device such as the Michelson interferometer, where the delay  $T$  can be scanned with interferometric stability, the phase factor exhibits an oscillatory variation as a function of  $T$  and it can be removed easily by mere filtering [ 5 ].

## B. Field-cross Correlation

In the frame of the linear response theory, a sample which is illuminated by a probe field  $E(t)$  radiates a signal  $E_S(t)$  which is given by :

$$E_S(t) = \int_0^{\infty} d\tau E(t - \tau) L(\tau) \quad (5)$$

where  $L(\tau)$  is the response function of the sample. To be specific, diffraction on a light-induced transient grating can be described in this way. Then, the response function  $L(\tau)$  can be expressed as the frequency-to-time Fourier transform of the grating diffraction efficiency [12]. In materials where the width of the inhomogeneously broadened absorption band is much larger than the homogeneous linewidth, the response is not instantaneous. It spreads over an interval given by the lifetime of the optical dipoles. The signal is made to

interfere with its parent field,  $E_R(t) = E(t - T)$ . The interference between these two fields is characterized by the cross correlation function:

$$g(T) = \frac{\left| \int dt E_S(t) E_R^*(t) \right|}{\left[ \int dt |E_S(t)|^2 \int dt |E_R(t)|^2 \right]^{1/2}} \quad (6)$$

which can be expressed in terms of the response function  $L(\tau)$ , and of the autocorrelation function  $G(\tau)$  of the probe field  $E(t)$ :

$$g(T) = \left| \int_0^\infty d\tau G(T - \tau) L(\tau) \right| \quad (7)$$

When experimental conditions are such that the coherence time  $\tau_c$  is much smaller than the characteristic time constant of  $L(\tau)$ , then  $g(T)$  reduces to  $L(T)$  and the field cross correlation function gives direct access to the response function of the sample [ 12, 13 ]. In the reverse situation,  $g(T)$  coincides with the autocorrelation function  $G(T)$

### C. Dual-channel Field Cross-Correlator

The principle diagram for the dual-channel field cross-correlator is shown in fig.1. The reference field R and the signal field S have linear orthogonal polarizations. The interference phenomenon is detected on the photodiodes A and B, after splitting and mixing of the two fields on a half transparent plate BS. P and  $\lambda/4$  stand for an analyser and a quarterwave plate. Fig.1(b) shows the angular configuration of the signal and reference fields and of the analyser and quarterwave plate optical axes.

This setup is designed to achieve the simultaneous detection of the two quadratures of the interference pattern of the signal and the reference fields. It is derived from the so-called sigma-meter [18], a dual-channel Michelson

interferometer which is used for the spectral calibration of monochromatic lasers.

On detector A, the transmitted part  $t_1R$  of the reference beam and the reflected part  $r_1S$  of the signal beam are combined together through a polarizer. The detected quantity, which is a function of the delay  $T$ , is denoted A. It reads:

$$A = \int dt' |t_1R(t') + r_1S(t')|^2 \quad (8)$$

If no phase shift were introduced by the beam splitter, a  $90^\circ$  dephasing between interference pattern detection A and B would be conveniently achieved by inserting a quarterwave plate before detector B, with its optical axis aligned along the polarization of either R or S field. A more refined configuration is needed to get rid of unavoidable phase shifts caused by the splitter.

Before reaching detector B, the transmitted part  $t_2S$  of the signal and the reflected part  $r_2R$  of the reference field go through a quarterwave plate, and then are recombined on a polarizer. The fixed optical axis of the  $\lambda/4$  plate is set at  $45^\circ$  from the directions of both fields. The angle between the  $\lambda/4$  plate and the polarizer is denoted  $\theta$ . Then, the detected quantity on B reads

$$B = \int dt' \left| [r_2R(t') - t_2S(t')] \sin\theta + i [r_2R(t') + t_2S(t')] \cos\theta \right|^2 \quad (9)$$

Let  $\varphi_1$  and  $\varphi_2$  be the phase shifts produced by the beam splitter. They are defined in following way:

$$\exp(i\varphi_1) = \frac{t_1r_1^*}{|t_1r_1|} \quad (10)$$

$$\exp(i\varphi_2) = \frac{t_2r_2^*}{|t_2r_2|} \quad (11)$$

Let  $\phi$  denote the phase shift between the signal and the reference. The corresponding phase factor can be expressed as:

$$\exp(i\phi) = \frac{\int dt R(t) S^*(t)}{\left| \int dt R(t) S^*(t) \right|} \quad (12)$$

Thus Eqs. (8, 9) can be rewritten as:

$$\begin{aligned} A &= A_0 + A_1 + 2 (A_0 A_1)^{1/2} g(T) \cos(\varphi_1 + \phi) \\ B &= B_0 + B_1 + 2 (B_0 B_1)^{1/2} g(T) \sin(\varphi_1 + \phi) \end{aligned} \quad (13)$$

where:

$$\begin{aligned} A_0 &= \int dt' |r_1|^2 |R(t')|^2 \\ A_1 &= \int dt' |r_1|^2 |S(t')|^2 \\ B_0 &= \int dt' |r_2|^2 |R(t')|^2 \\ B_1 &= \int dt' |r_2|^2 |S(t')|^2 \end{aligned} \quad (14)$$

The analyser has been adjusted in such a way that  $\theta$  satisfies the equation:

$$\varphi_2 - 2\theta = \varphi_1 + \pi/2 \quad (15)$$

Combining Eqs.(13), one obtains the correlation function in following form:

$$g(T) = [ (A - A_0 - A_1)^2 / 4A_0A_1 + (B - B_0 - B_1)^2 / 4B_0B_1 ]^{1/2} \quad (16)$$

which is expressed in terms of experimentally detected quantities and which does not depend on the phase shift  $\phi$ . The calibration parameters  $A_0, B_0, A_1, B_1$  have to be measured in a preliminary stage by successively occulting the reference and the signal beams. It is thus impossible to simultaneously record those parameters and the cross-correlation-affected quantities  $A$  and  $B$ . This degrades the efficiency of calibration due to the light source intensity fluctuation. This defect is overcome by the permanent monitoring of the intensity on a third detector, labeled  $C$ , and by the normalization of  $A$  and  $B$  by  $C$ . Then, the normalized quantities  $a = A/C, b = B/C, a_i = A_i/C, b_i = B_i/C$  ( $i = 0,1$ ) which are unaffected by intensity fluctuation, are substituted into the expression of  $g(T)$ , which finally

reads:

$$g(T) = [ ( a - a_0 - a_1 )^2 / 4a_0a_1 + ( b - b_0 - b_1 )^2 / 4b_0b_1 ]^{1/2} \quad (17)$$

In the above calculation, the dispersive effect of the transparent media has not been taken into account. Dispersion could affect the time resolution of the correlator. However, the two interfering beams essentially proceed along the same paths. The only imbalance is due to the glass plate which bears the beam-splitting coating. A compensating plate can be inserted to restore perfect balance between the different paths. Then the time resolution should be as small as an optical period, to be compared with that of correlators based on Young interference [ 6-13 ].

### 3. RESULTS AND DISCUSSION

#### A. Experimental

This section is devoted to the experimental evaluation of the cross-correlator. In that simple test, the signal field does not result from the interaction of a probe pulse with a sample. Instead, an attenuated laser beam plays the role of the optical signal. This situation is described by Eq.5, provided the Dirac peak  $\delta(\tau)$  is substituted to the response function  $L(\tau)$ . As depicted on Fig. 1, the field cross-correlator includes two beam splitters, two Glan polarizers, a quarter wave plate, and three photodiodes. The experimental set up is sketched on Fig. 2. The signal and the reference fields are obtained by splitting a primary light beam issuing from a dye laser which is pumped by the second harmonic of a mode-locked YAG laser ( Coherent Antares 76-YAG ), at a repetition rate of 76 MHz. The dye laser pulse duration amounts to a few picoseconds. The optical signals are detected on UDT455 photodetectors, which incorporate a silicon photodiode chip and an

operational amplifier. The response time of those detectors is adjusted to be about 5  $\mu$ s. The electric signals are fed to three Boxcar gated integrators ( Stanford Research System 250 ) which work in the single sample mode. The gate width is 15  $\mu$ s. A translation stage is used to vary the delay between the "reference" and the "signal" pulses. It is driven by a stepping motor which varies the phase  $\phi(T)$  in an uncontrolled way from step to step. Each step is 1  $\mu$ m which corresponds to a delay of 6.67 fs. A fine adjustment of the delay is provided by a piezo actuator, which is able to continuously vary the optical path length on sub-micrometer scale. The maximum rate of acquisition is limited by the computer processing time to about 200 Hz. However, most of data have been recorded at a rate of 10 Hz, with 6 steps of the translation stage in the interval between two acquisitions.

## B. Correlation Measurements

Two kinds of investigations have been undertaken. First, single scan characteristics have been explored in the case when the "signal" beam is approximately as intense as the "reference" beam and results have been compared with those obtained with a single-channel correlator. Second one has looked for the detectivity limit for multiple scan recording.

The experimental procedure first requires to determine the constant background contributions  $a_0$ ,  $b_0$ ,  $a_1$  and  $b_1$ . These quantities, respectively measured by cutting off the signal and the reference beams, are averaged over 100 acquisitions. Fig.3(a) displays the variation of the single-channel detected quantity  $\frac{|a - a_0 - a_1|}{2\sqrt{a_0 a_1}}$  when the piezo ceramic continuously scans the optical delay  $T$  between the "reference" and the "signal" pulses over an interval of about 6.5 fs. In Fig.4(a) is displayed the variation of the same single-channel function when the translation stage is scanned over 4000 steps which correspond to a delay of 26.7 ps . The noise which affects the profiles of the field autocorrelation

function is due to the fluctuations of the phase shift  $\phi(T)$ . They result from the mechanical unstability of the set up. They also reflect the uncontrolled jump which is accomplished by  $\phi(T)$  at each step of the translation stage.

The dual-channel detection is then installed. The orientation of the analyser on channel B is adjusted. Voltage on the piezo is set so that minimum intensity is detected on photodiode A. The analyser is rotated so that minimum intensity is simultaneously detected on photodiode B. A  $\pi/2$  phase shift between the two channels is then achieved by an additional  $45^\circ$  rotation. In Fig.3(b) is displayed the variation of the dual-channel signal

$$[ (a - a_0 - a_1)^2 / 4a_0a_1 + (b - b_0 - b_1)^2 / 4b_0b_1 ]^{1/2}$$

when the delay is varied over the same 6.5 fs interval as in Fig.3(a). In Fig.4(b) is presented the variation of the same quantity when the delay T is scanned over 26.7 ps, as in Fig.4(a). Those pictures demonstrate that the interference term has been conveniently rid of fluctuations due to phase variations. All those recordings have been obtained in a single scan of the delay line.

Averaging over 6 scans leads to the autocorrelation profile which is represented on Fig.5(a). Satisfactory agreement is observed between experiment and the hyperbolic secant model of the laser field [19, 20]. From this fit a coherence time of  $6.7 \pm 0.5$  ps is deduced, which is consistent with the 7 ps value simultaneously measured by using the Fourier transform technique that we have previously developed [11].

A neutral density filter is inserted in the signal path in order to investigate the dynamical range of the device. Fig.5(b) shows experimental data obtained with various  $10^{-D}$  attenuations. As D is increased the profiles get more noisy with a larger background. However, for  $D = 5.0$ , the correlation profile is still successfully measured by averaging over 20 scans. The possible origin of the noise will be considered and discussed in the next section.

### C. Discussion

Most of intensity and phase fluctuations have been removed by the above described procedure. However when the signal is weak, the interference term is more difficult to separate from noise. A model of this noise is proposed, which helps to elucidate its origins. We assume that the detected quantities  $a$  and  $b$  differ from their expectation value by some uncorrelated, zero-average, stochastic processes which are defined by:

$$\begin{aligned} X &= (a - \langle a \rangle) / a_0 \\ Y &= (b - \langle b \rangle) / b_0, \end{aligned} \quad (18)$$

where  $\langle a \rangle$  and  $\langle b \rangle$  stand for the expectation values of  $a$  and  $b$ . As a result, the recorded data, which is given by :

$$I(T) = [ (a - a_0 - a_1)^2 / 4a_0a_1 + (b - b_0 - b_1)^2 / 4b_0b_1 ]^{1/2} \quad (19)$$

can be expressed in the following form

$$\begin{aligned} I(T) &= \{ g(T)^2 + g(T) [ X \sqrt{a_0/a_1} \cos(\Psi) + Y \sqrt{b_0/b_1} \sin(\Psi) ] \\ &+ [ X^2 a_0/a_1 + Y^2 b_0/b_1 ] / 4 \}^{1/2} \end{aligned} \quad (20)$$

where  $\Psi = \varphi_1 + \phi$ . In the absence of fluctuation ( $X = Y = 0$ ),  $I(T)$  exactly equals  $g(T)$ . For sake of simplicity we consider the statistical variable  $S = I(T)^2$  instead of  $I(T)$ . The standard deviation for  $S$  is defined as:

$$\sigma_S^2 = \langle S^2 \rangle - \langle S \rangle^2. \quad (21)$$

The stochastic processes  $X$  and  $Y$  are assumed to be gaussian. The standard quadratic deviations are denoted:

$$\begin{aligned} \langle X^2 \rangle &= \sigma_X^2 \\ \langle Y^2 \rangle &= \sigma_Y^2. \end{aligned} \quad (22)$$

Then, the first two statistical moments of  $S$  read:

$$\begin{aligned} \langle S \rangle &= g^2 + (1/4) [ \sigma_X^2 a_0/a_1 + \sigma_Y^2 b_0/b_1 ] \\ \langle S^2 \rangle &= g^4 + g^2 [ \sigma_X^2 (\cos^2(\Psi) + 1/2) a_0/a_1 + \sigma_Y^2 (\sin^2(\Psi) + 1/2) b_0/b_1 ] \end{aligned} \quad (23)$$



$$\begin{aligned}
& + (3/16) [ \sigma_X^4 (a_0/a_1)^2 + \sigma_Y^4 (b_0/b_1)^2 ] \\
& + (1/8) \sigma_X^2 \sigma_Y^2 a_0 b_0 / (a_1 b_1)
\end{aligned} \tag{24}$$

The standard deviation can be expressed in terms of  $\langle S \rangle$  in the following way:

$$\sigma_S^2 = k_1 \langle S \rangle - k_0, \tag{25}$$

where:

$$k_1 = \sigma_X^2 \cos^2(\Psi) a_0/a_1 + \sigma_Y^2 \sin^2(\Psi) b_0/b_1 \tag{26}$$

$$\begin{aligned}
k_0 = (1/4) [ \sigma_X^2 \cos^2(\Psi) a_0/a_1 \\
+ \sigma_Y^2 \sin^2(\Psi) b_0/b_1 ] [ \sigma_X^2 a_0/a_1 + \sigma_Y^2 b_0/b_1 ] \\
- (1/8) [ \sigma_X^4 (a_0/a_1)^2 + \sigma_Y^4 (b_0/b_1)^2 ]
\end{aligned} \tag{27}$$

When the time delay is scanned, the  $\Psi$  phase angle fluctuates. Thus  $\cos^2\Psi$  and  $\sin^2\Psi$  can be replaced by their average value 1/2 in the above equations, so that  $k_0$  and  $k_1$  are reduced to:

$$k_1 = (1/2) [ \sigma_X^2 a_0/a_1 + \sigma_Y^2 b_0/b_1 ] \tag{28}$$

$$k_0 = (1/4) [ \sigma_X^2 \sigma_Y^2 a_0 b_0 / a_1 b_1 ] \tag{29}$$

The standard-deviation  $\sigma_S^2$  appears to be a linear function of  $\langle S \rangle$ . Experimental data are in good agreement with this prediction as shown in fig.6 for  $D = 5.0$ . Best fit is obtained for  $k_1 = 0.30$  and  $k_0 = 0.005$ .

The expression of  $\langle S \rangle$  ( Eq.(23) ) indicates that in the far wings of the correlation function, where  $g \rightarrow 0$ , the quantity  $\langle S \rangle$  tends to a residual background  $\langle S_0 \rangle$  which reads:

$$\langle S_0 \rangle = (1/4) [ \sigma_X^2 a_0/a_1 + \sigma_Y^2 b_0/b_1 ]. \tag{30}$$

The slope  $k_1$  is related to the background  $\langle S_0 \rangle$  by

$$k_1 / \langle S_0 \rangle = 2. \tag{31}$$

This property can be checked on the experimental profiles. For  $D = 5$ , the background measured on fig.7 is  $\langle S_0 \rangle = 0.15$ , while according to fig.6,  $k_1 = 0.0.29$ . Thus  $k_1 / \langle S_0 \rangle = 1.93$ , which is close to the expected value of this ratio. When  $D = 5$ , the ratios  $a_0/a_1$ , and  $b_0/b_1$  are respectively measured to be  $a_0/a_1 = 1.26 \times 10^5$ ,  $b_0/b_1$

$= 6.94 \times 10^5$ , and with eqs.(24) and (25) we obtain  $\sigma_X = 1.2 \times 10^{-3}$  and  $\sigma_Y = 8 \times 10^{-4}$ . Let us remind that parameters a and b include normalisation of A and B signals by the laser intensity detected on C. It has been checked that the fluctuations of a and b are not correlated with the laser intensity fluctuations. When the channel A and C gated integrators are fed with the single signal issuing from photodiode A, the residual standard deviation on A/C is measured to be  $7 \times 10^{-4}$ . The same result applies to parameter b. Those quantities correspond to the noise which is only due to the boxcar integrators. Values obtained for  $\sigma_X$  and  $\sigma_Y$  with  $D = 5$  are very close to this electronic limit which appears to be the main source of noise.

#### 4. CONCLUSION

A new method for measuring the field-cross correlation has been demonstrated theoretically and experimentally. The response time of the detectors and of the electronics does limit the time resolution of the proposed device. Picosecond pulses have been used to check it. However the correlator should work, without any change, in the femtosecond range. Despite of the interference nature of the recorded signal, the optical path difference between the correlated beams has not to be controlled with interferometric precision. Processing of the data does not require lengthy computing and it takes only a few seconds to record a correlation profile on 640 points. Finally, the two point detectors used in the present demonstrator could be substituted with photodetector matrices, opening the way to the analysis of two-dimensional images with ultrashort time resolution.

## REFERENCES

- (1 ). E. P. Ippen and C. V. Shank, "Techniques for Measurement", in *Ultrashort Light Pulses: Picosecond Techniques and Applications*, S. L. Shapiro ed.(Springer-Verlay , Berlin, 1977 ), pp.83-122.
- (2 ). M. A. Duguay, J. W. Hansen, *Appl. Phys. Lett.* 13 , 178 (1968).
- (3 ). J. E. Rothenberg, D. Grischkowsky, A. C. Balant, *Phys. Rev. Lett.* 53, 552 (1984).
- (4 ). A. Rebane, J. Aaviskoo, and J. Kuhl, *Appl. Phys. Lett.*54, 93 (1989).
- (5 ). C. Joubert, M.-L. Roblin, R. Grousseau, *Appl. Opt.* 28, 4604 (1989).
- (6 ) H. J. Eichler, U. Klein, and D. Langhans, *Appl. Phys. Lett.* 21, 215 (1980).
- (7 ) R. Trebino, E. K. Gustafson, and A. E. Siegman, *J. Opt. Soc. Am.* B3, 1295 (1989).
- (8 ) W. L. Nighan, T. Gong, L. Liou, and P. M. Fauchet, *Opt. Commun.* 69, 339 (1989).
- (9 ). A. S. L. Gomes, L. H. Acioli, C. de Araujo, J. Rios leite, *Opt. Commun.*, 73, 475 (1989).
- (10 ) V. Dominic, X. S. Yao, R. M. Pierre, and J. Feinberg, *Appl. Phys.* 56, 521(1990).
- (11 ) A. Débarre, J. C. Keller, J. L. Le Gouët, A. Richard, and P. Tchénio, *Opt. Commun.* 73, 309 (1989).
- (12 ) A. Débarre, J. C. Keller, J. L. Le Gouët, and P. Tchénio, *J. Opt. Soc. Am.* B8, 153 (1991).
- (13 ) M.A.Bouchene, A.Débarre, J.C.Keller, J.L.Le Gouët, and P.Tchénio, *J. Opt. Soc. Am.* B9, 281 (1992).
- (14 ) J.P.Maillard and D.Simons, *Proceedings of an ESA Workshop on Solar Physics and Astrophysics at Interferometric Resolution*, Paris 17-19 Feb. 1992, PP205.

- ( 15 ). R. Hanbury Brown, R. Q. Twiss, Nature (London) 177, 27, (1956).
- (16 ) Z.Y.Ou, E.C.Gage, B.E.Magill, and L.Mandel, J. Opt. Soc. Am. B6, 100 (1989).
- (17 ). Y. Miyamoto, T. Kuga, M. Baba, M. Matsuoka, Opt. Lett. 18, 900 (1993).
- (18 ). P. Juncar, J. Pinard, Opt. Commun. 14, 438 (1975).
- (19 ) H.A.Haus, IEEE J. of Quantum Electronics, QE-11, 736 (1975).
- (20 ) H.A.Haus, C.V.Shank and E.P.Ippen, Opt. Communs. 15, 29 (1975).

## Figure Captions

Fig.1: Schematic diagram of the dual-channel field-cross correlator. S, R: signal and reference light fields with orthogonal polarization directions, BS: beam splitter; P: analyser;  $\lambda/4$ : quarterwave plate, A, B: UDT-455 photoelectric detectors.

Fig. 2: Scheme of the test set up. The optical delay line on the path "R" is adjusted with the help of a motorized translation stage.

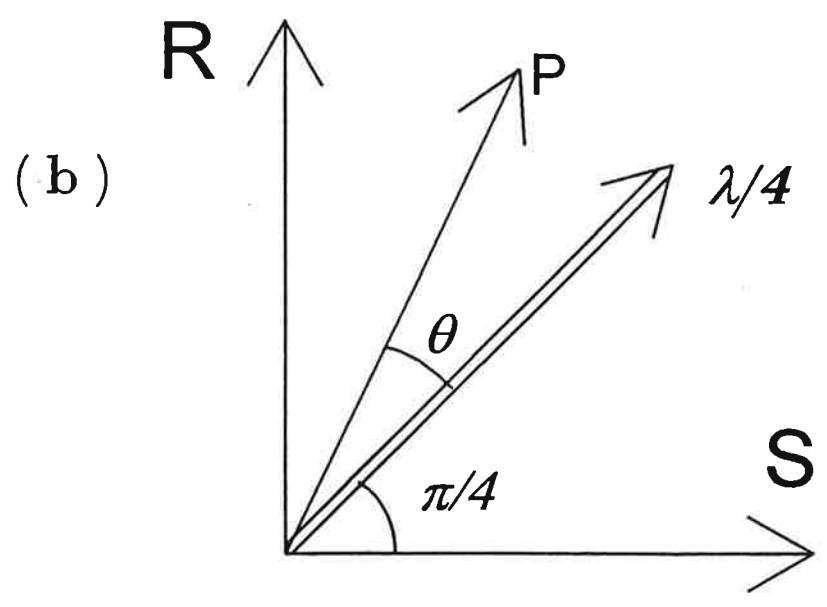
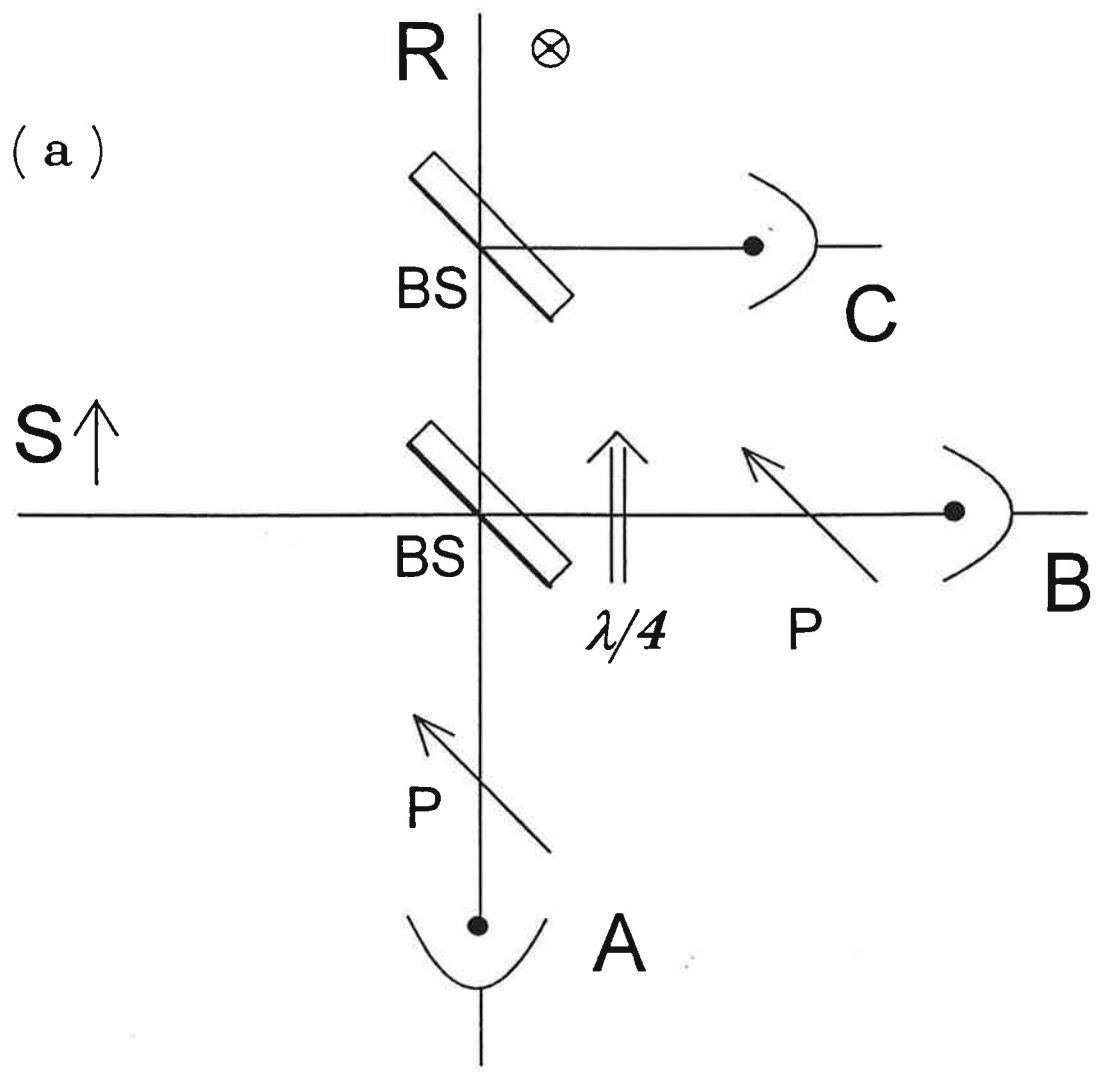
Fig. 3: Continuous scan of the optical delay by the piezo actuator. A path-difference variation of one wavelength leads to a  $2\pi$  change in the phase shift between the "signal" and the "reference" pulses. It can also be expressed as a delay variation of  $\lambda/c = 2,07$  fs (a) Oscillatory behavior of the correlation signal when a single detector is used. (b) Elimination of the fluctuations by dual channel detection.

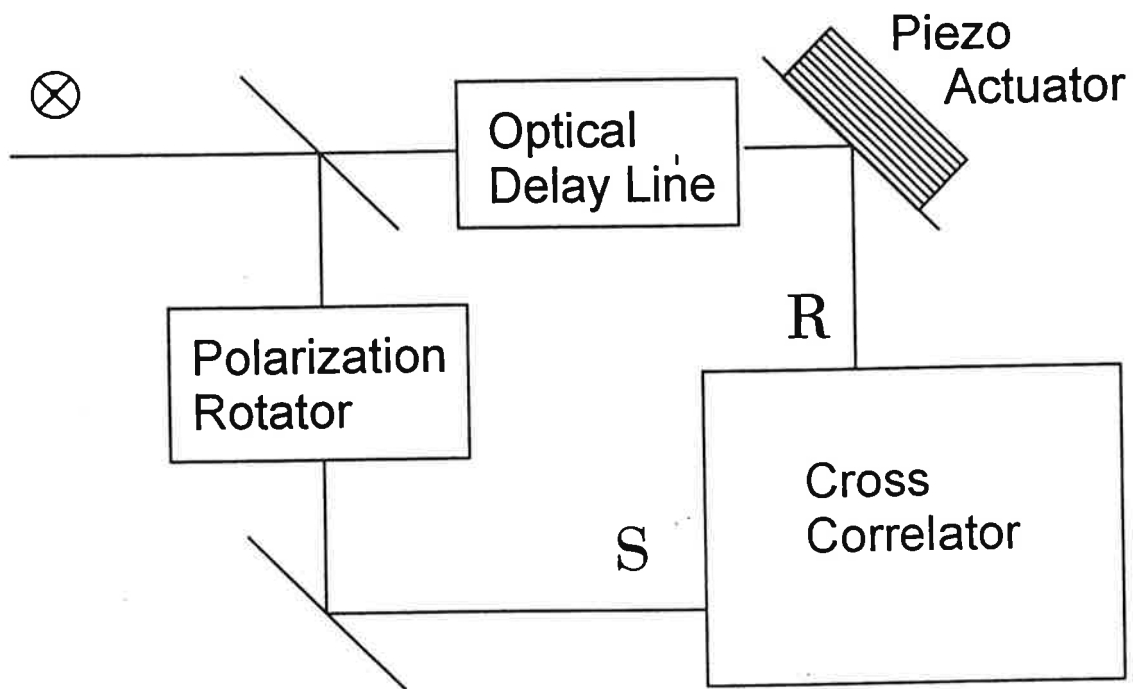
Fig. 4: Autocorrelation profiles obtained in a single scan of the translation stage, without any average. (a): single channel detection. (b): dual channel detection.

Fig. 5: Averaged correlation profiles for different values of the optical density inserted on the signal path. (a): Experimental (solid) and theoretical (dashed) curves for  $D = 0$  are plotted together. Average is performed over 6 scans. (b) Signals of the field-cross correlation are averaged over about 20 times for (1)  $D=2$ , (2)  $D = 4$  and (3)  $D = 5$ .

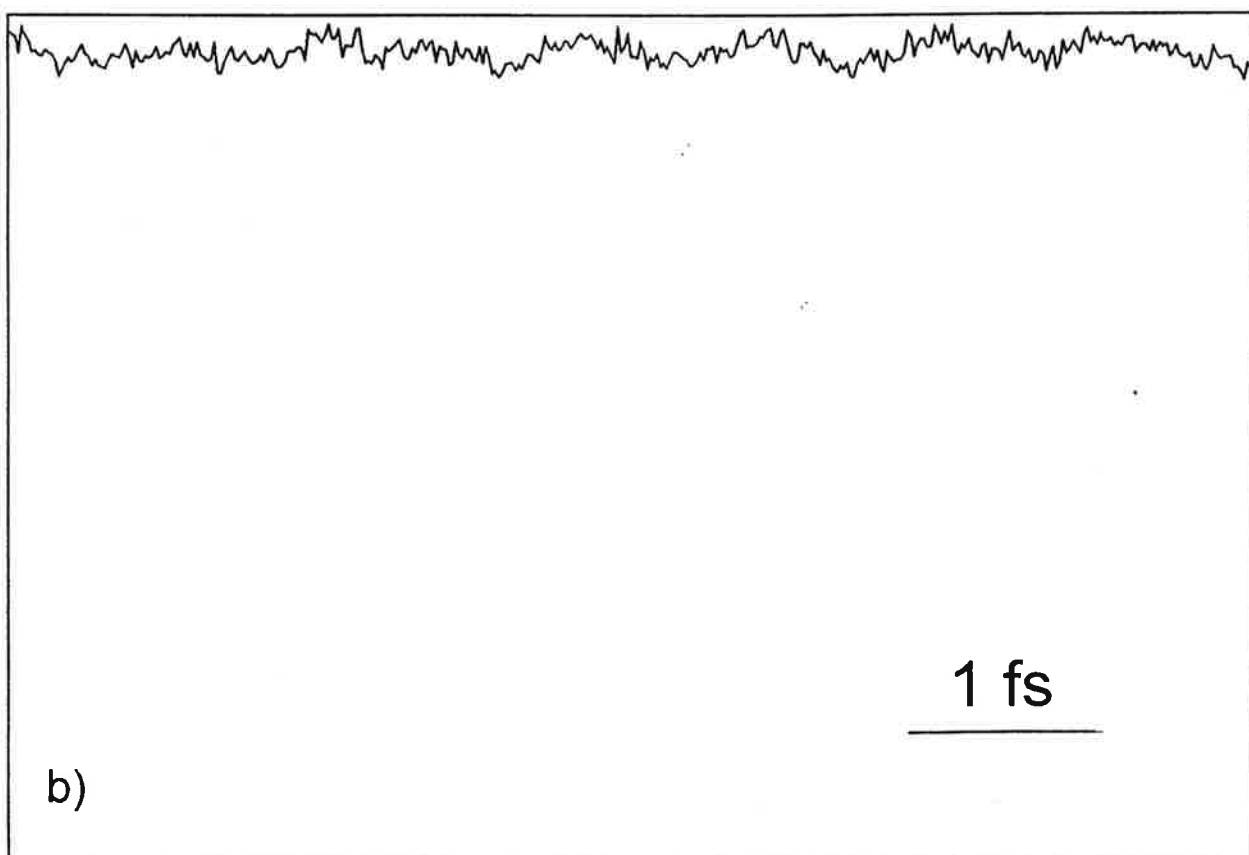
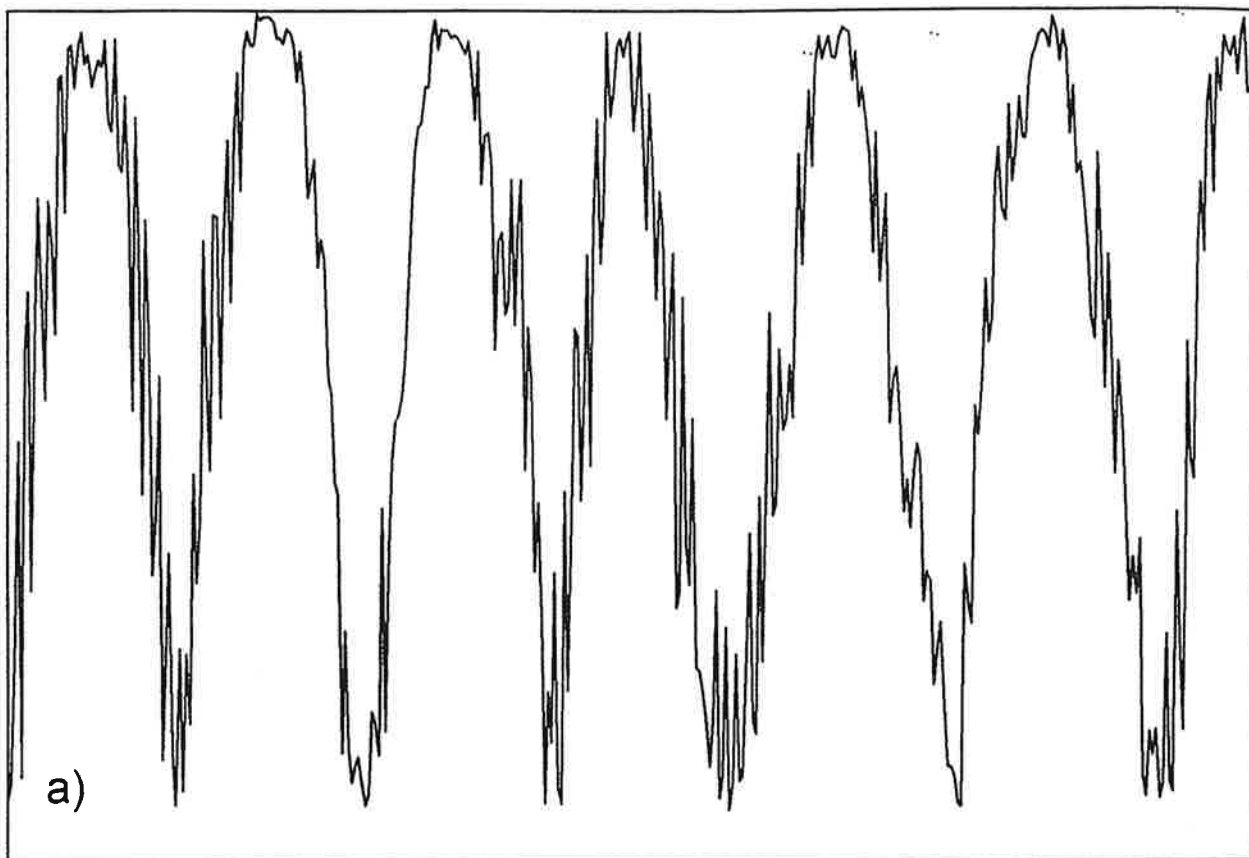
Fig. 6: Dependence of the square deviation  $\sigma_S^2$  on the average intensity  $\langle S \rangle$  is linear and the slope is obtained to be  $k_1 = 0.29$ .

Fig. 7: The background of the average intensity  $\langle S \rangle$  versus the relative time delay is measured to be  $\langle S_0 \rangle = 0.15$





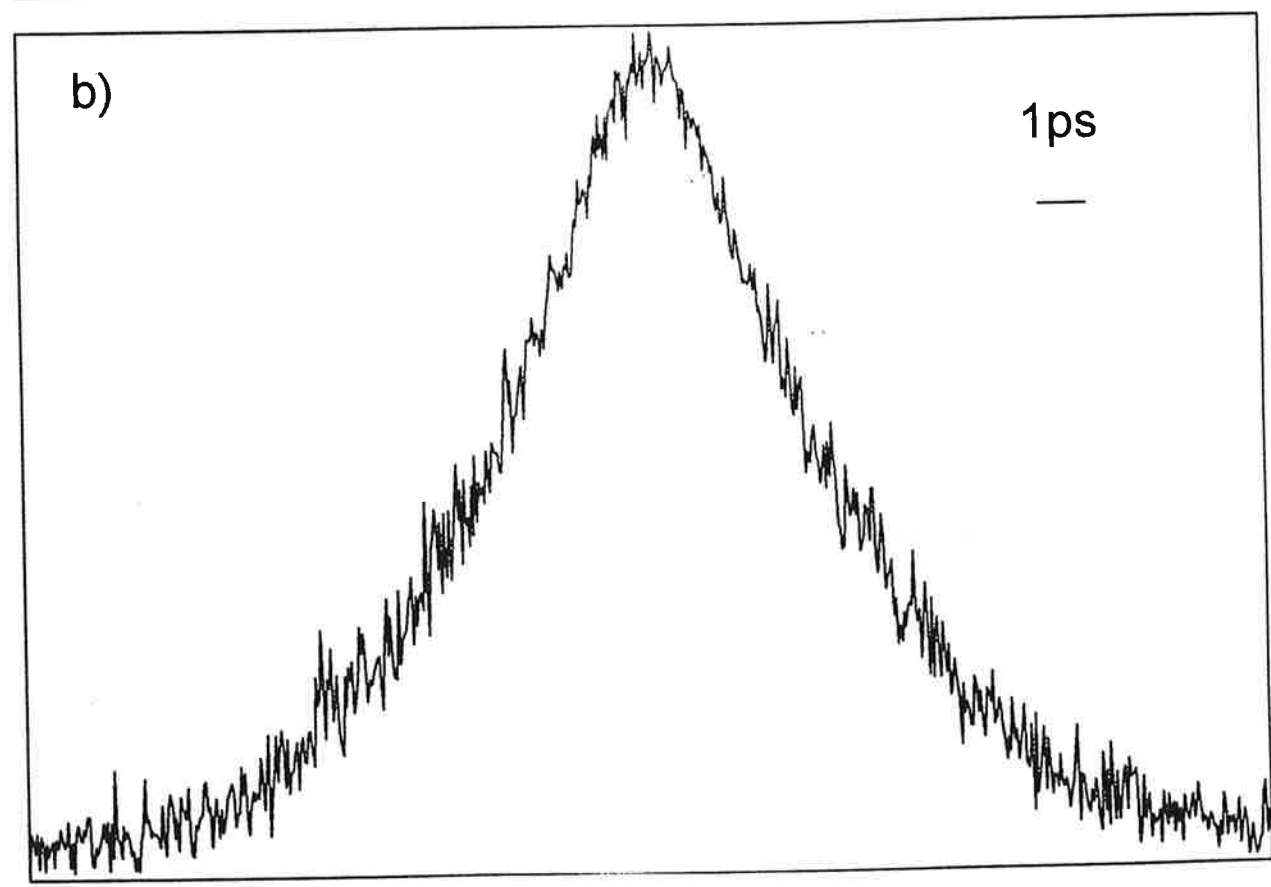
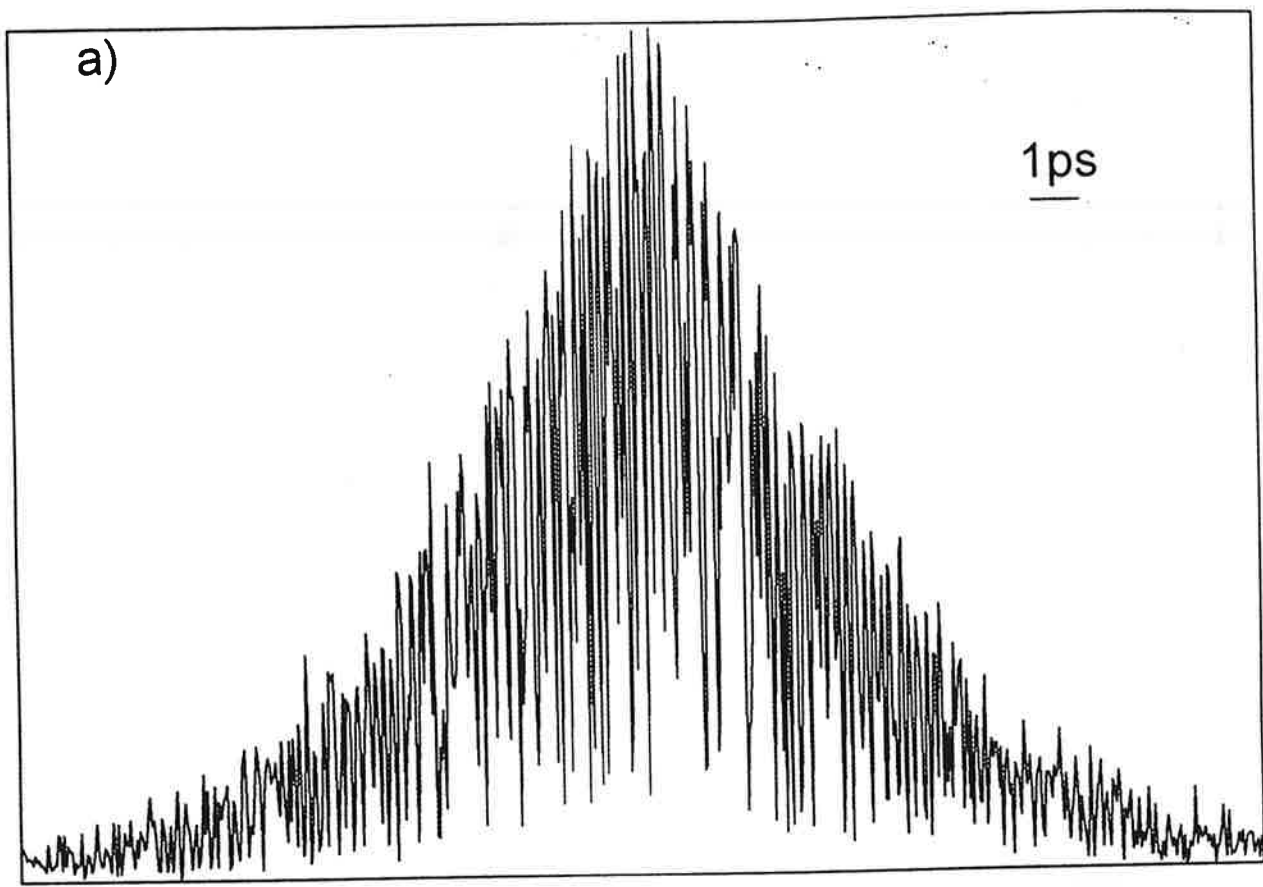
DETECTED SIGNAL INTENSITY



RELATIVE DELAY

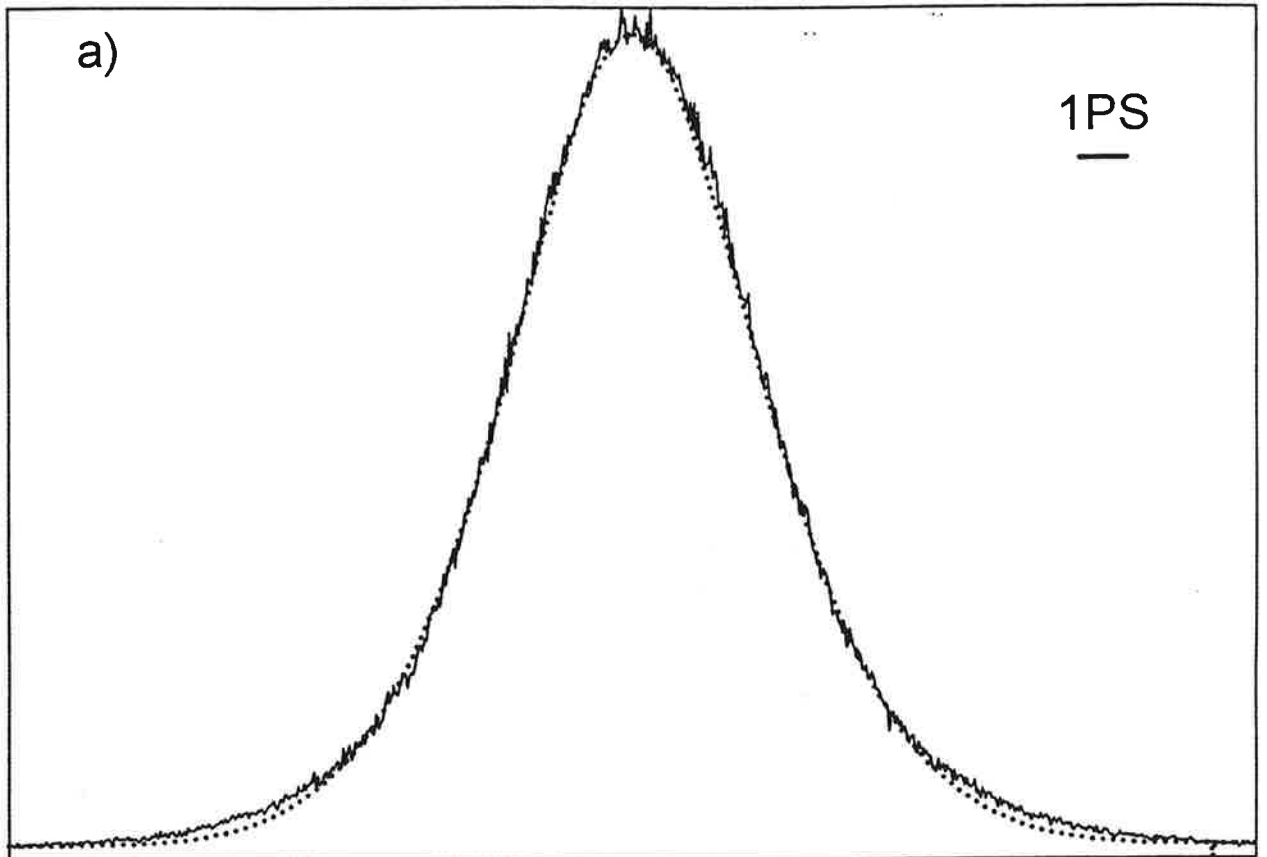


DETECTED SIGNAL INTENSITY

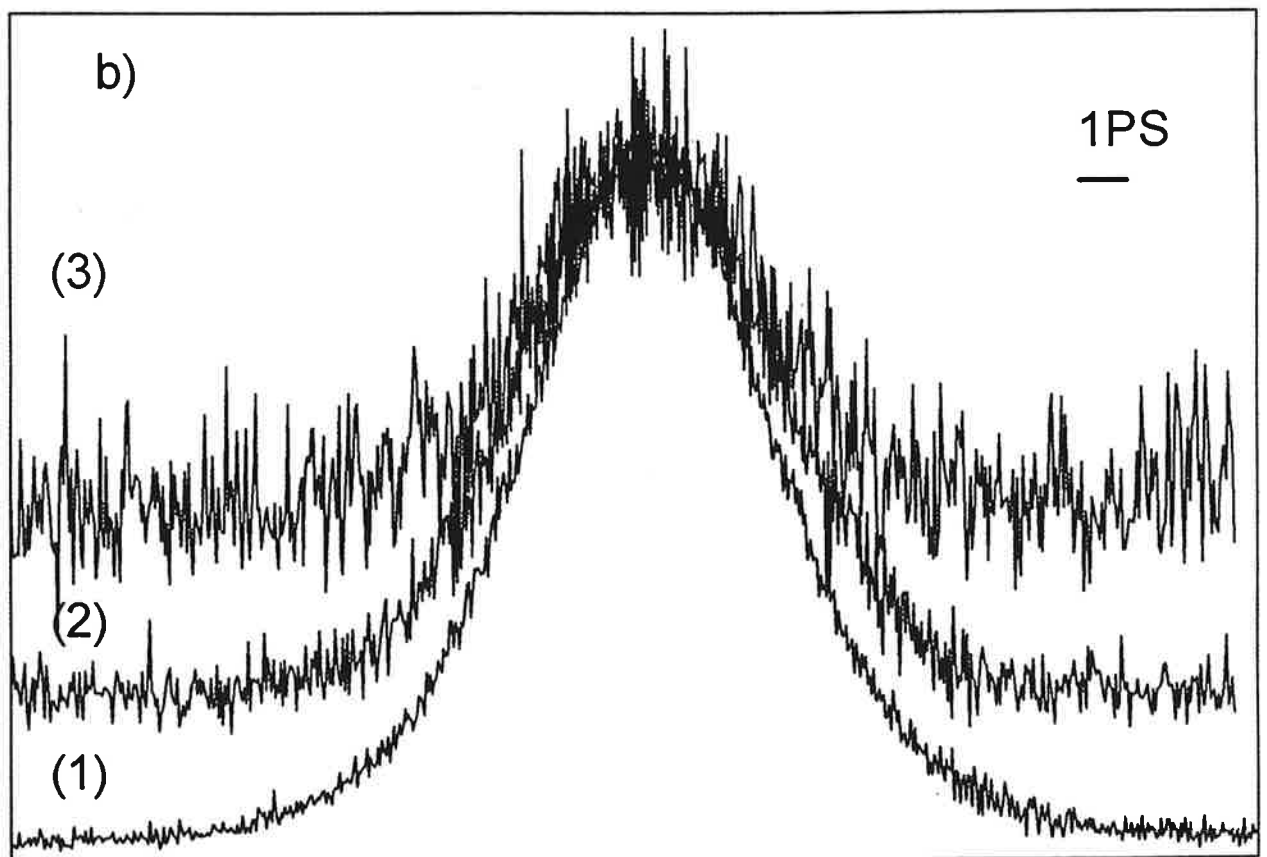


RELATIVE DELAY

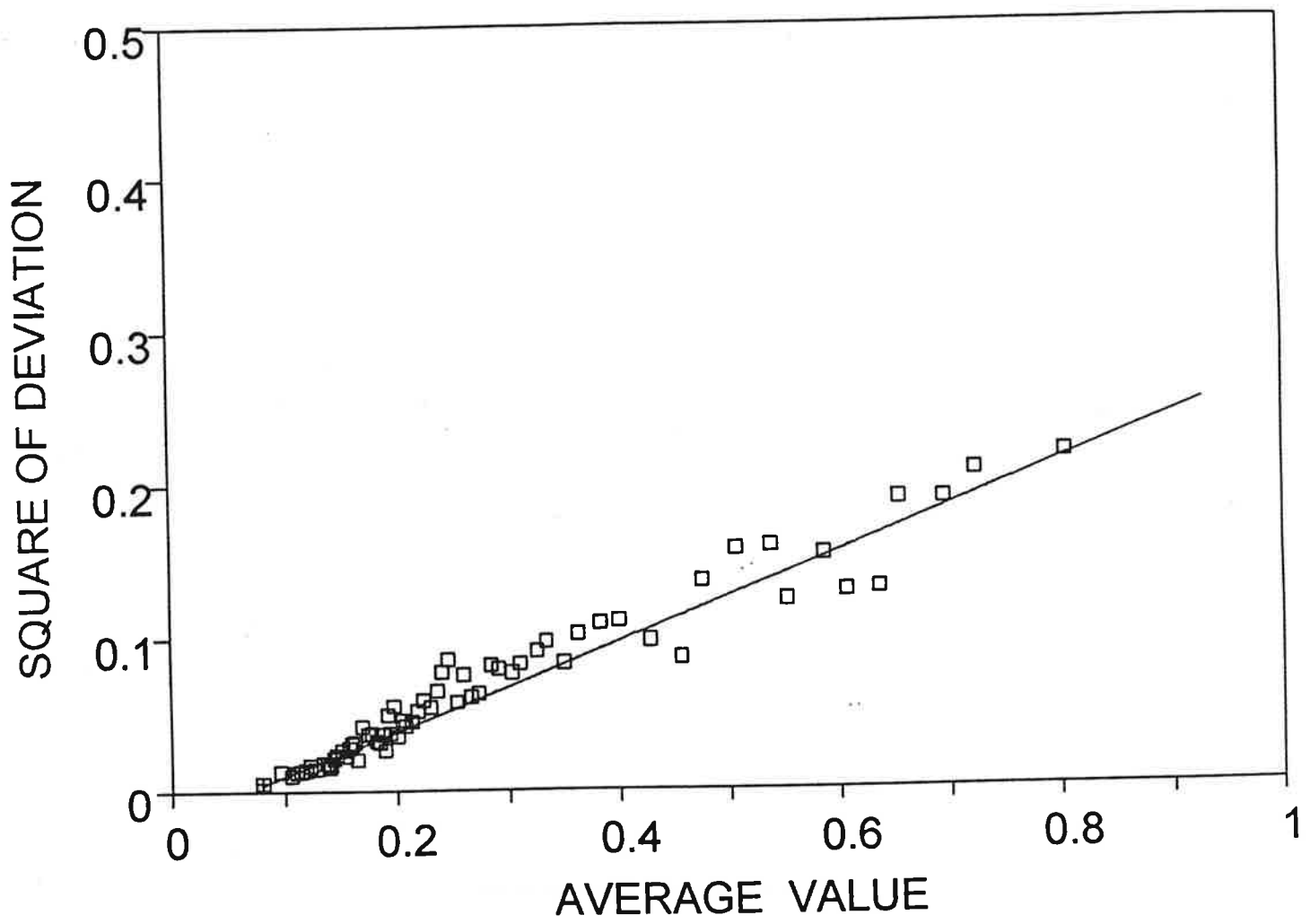
CORRELATION INTENSITY

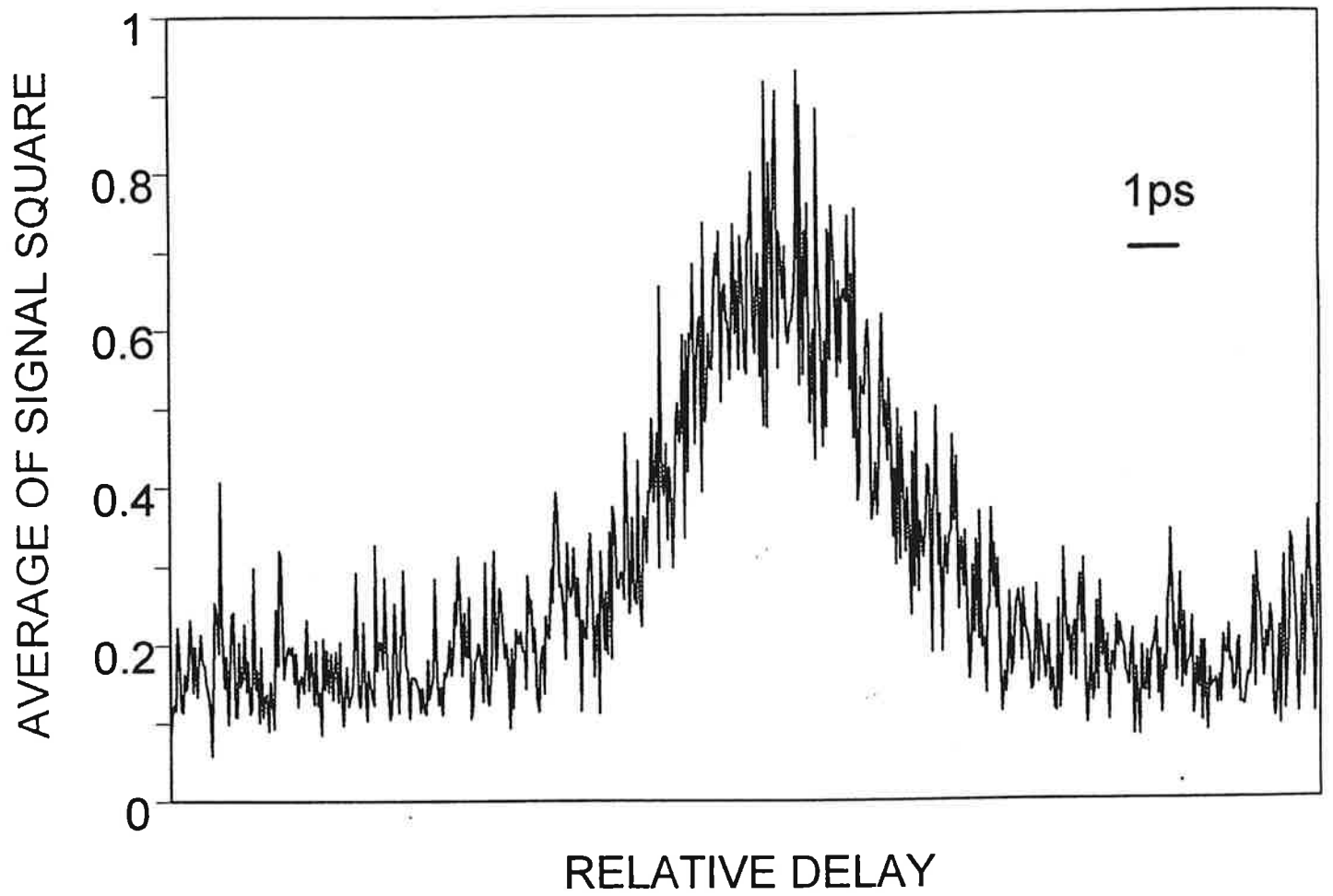


CORRELATION INTENSITY



RELATIVE DELAY















# **Annexe C**

## **Article 2**



## Field cross-correlation of time-delayed DFWM signals for population lifetime measurement with incoherent light

A Débarre, J-L Le Gouët, I Lorgeré and P Tchério

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

Received 25 March 1993

**Abstract.** Two techniques are proposed for measurement of population lifetime with incoherent light, based on the recording of the field cross-correlation between two time-delayed DFWM signals. Theoretical calculations predict that such records exhibit the decay of the population with a resolution given by the coherence time of the light, and against a zero background. An experiment is reported, demonstrating the main theoretical predictions. The features and possibilities of the methods are discussed.

### 1. Introduction

During the past few years, several groups have demonstrated that long pulses of temporally incoherent light, instead of short Fourier-transform limited pulses, can be used for the study of ultrafast phenomena. The key point is that in some time-resolved optical experiments, it is the coherence time of the light pulses, not their duration, that determines the ultimate resolution. Several non-linear spectroscopic techniques with stochastic pulses have been investigated for the study of relaxation processes [1]. Degenerate four-wave mixing (DFWM) experiments have proved to be really efficient for measurement of electronic dephasing times [2–7]. As to the study of population decay process, DFWM [8], pump-probe [9] and Kerr-shutter techniques [10, 11] have been investigated. Thus, measurement of longitudinal relaxation times as short as 70 ps could be performed with ns pulses. However, with these techniques, a large constant background and/or a strong coherence spike spoil the signal-to-noise ratio. As an alternative for the study of population relaxation processes with incoherent light, it has been recently proposed to use field cross-correlation techniques with non-linear optical signals [12]. These techniques are commonly used in NMR spectroscopy with stochastic excitation [13]. Their application to the analysis of linear optical processes with incoherent light, has been investigated and demonstrated in an experiment devoted to the study of coherent propagation effects in a vapour [14]. In this experiment, the recorded quantity was the field cross-correlation function between the signal modulated by the propagation effects, and the initial broadband ns pulse, used as a reference. The results showed ps resolution and the signal-to-background ratio was several orders of magnitude larger than that observed in an intensity correlation experiment [15]. In this paper, we present two techniques for measurement of population lifetime by means of field cross-correlation analysis of DFWM signals with incoherent light. We first describe the theoretical aspects of the techniques. Then the features and results of the experiment we have performed are reported and discussed. As a conclusion, we compare the techniques with the other methods for measurement of population lifetime with incoherent light.

## 2. Theory

In a DFWM experiment, three input beams with wavevectors  $k_1$ ,  $k_2$  and  $k_3$  respectively, resonantly excite an optical transition of a sample. A signal is radiated by the sample with wavevector  $k_S = k_1 - k_2 + k_3$  when the phase matching condition is fulfilled. The signal contains information about both the dephasing and the energy decay of the optical dipoles it is built on. Our matter in this paper is to retrieve information about the energy decay time, when the exciting beams consist of long stochastic laser pulses.

We consider a material which contains an ensemble of two-level systems corresponding to the same molecular optical transition. The transverse and longitudinal relaxation times of the two-level systems are denoted  $T_2$  and  $T_1$  respectively, and we assume that  $T_2$  is much shorter than  $T_1$ , which is most often the case in condensed matter. Excitation is provided by three mutually uncorrelated stochastic laser pulses of duration  $\tau_j$ , which are described by their electric field

$$E_j(t) = \tilde{E}_j(t) \exp i(\omega t - \mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r}) + \text{CC} \quad j = 1, 2, 3 \quad (1)$$

where  $\omega$  is the central frequency of the light and  $\tilde{E}_j(t)$  is the pulse amplitude. The latter carries the statistical properties of the light. The autocorrelation function of the laser emission is defined as

$$g(T) = \langle \tilde{E}_j(t) \tilde{E}_j^*(t+T) \rangle / \langle \tilde{E}_j(t) \tilde{E}_j^*(t) \rangle \quad (2)$$

where the brackets stand for the ensemble statistical average. The width of this function gives the coherence time  $\tau_c$  of the radiation, which is also the characteristic evolution time of the pulse amplitude fluctuations. For broad-band stochastic pulses,  $\tau_c$  is much shorter than  $\tau_j$ . In order to make use of the specific properties of stochastic excitation, we consider the case where the relaxation time  $T_1$  is such that

$$\tau_c \ll T_1 \ll \tau_j. \quad (3)$$

In addition, we assume that the dephasing time  $T_2$  is much shorter than  $\tau_c$ . This inequality means that the light fields do not evolve on the time scale of the optical dipole lifetime, and that the excitation bandwidth does not exceed the homogeneous width of the molecular optical transition. Two implications result from this assumption. First, in a perturbative interaction picture, the dipoles are simultaneously built up and converted into a population term. Second, no inhomogeneous phaseshift can develop during the dipole lifetime.

Under these conditions, the total DFWM signal amplitude  $\tilde{E}_S(t)$  in the direction  $k_S$  can be expressed as a sum of two terms:

$$\tilde{E}_S(t) = \tilde{E}_s(t) + \tilde{E}_{s'}(t) \quad (4)$$

with

$$\tilde{E}_s(t) = \tilde{E}_3(t) \int_0^\infty \tilde{E}_2^*(t-\tau) \tilde{E}_1(t-\tau) R(\tau) d\tau \quad (5)$$

and

$$\tilde{E}_{s'}(t) = \tilde{E}_1(t) \int_0^\infty \tilde{E}_2^*(t-\tau) \tilde{E}_3(t-\tau) R(\tau) d\tau \quad (6)$$

$R(\tau)$  being the relaxation function of the population, expressed as

$$R(\tau) = e^{-\tau/T_1}. \quad (7)$$

In the following, we present two possible high-order field cross-correlation techniques for retrieving information about the relaxation function out of a given signal component, for instance  $\bar{E}_s(t)$ . In order to gain physical insight, it is convenient to regard the signal amplitude given by (5) as a sum of mutually incoherent elementary signals, with duration  $\tau_c$ . The amplitude of one elementary signal is given by

$$\delta \bar{E}_s(t; \tau) = \bar{E}_3(t) \bar{E}_2^*(t - \tau) \bar{E}_1(t - \tau) R(\tau) \quad (8)$$

which corresponds to the following excitation chronology: simultaneous excitations by fields  $\bar{E}_1$  and  $\bar{E}_2^*$  at time  $(t - \tau)$  induces a perturbation in the population equilibrium; this perturbation relaxes exponentially with characteristic time  $T_1$  until a third excitation by field  $\bar{E}_3$  at time  $t$  builds a signal out of this perturbation. Thus,  $\bar{E}_s(t)$  is the sum of the elementary signals  $\delta \bar{E}_s(t; \tau)$  built by  $\bar{E}_3(t)$  out of all the second-order perturbations induced by  $\bar{E}_1$  and  $\bar{E}_2^*$  before  $t$ . The number of elementary contributions is of the order of  $T_1/\tau_c$  and since the exciting pulses are uncorrelated stochastic fields, all the elementary signals are mutually incoherent.

The population decay can be monitored by cross-correlating the signal  $\bar{E}_s(t)$  with a third-order reference with amplitude

$$\bar{E}_r(t) = \bar{E}_3(t) \bar{E}_2^*(t - T) \bar{E}_1(t - T) \quad (9)$$

where  $T$  is a variable positive delay. This reference field should be generated in a material with an optical transition in the same spectral region as the studied one, and with relaxation times much shorter than  $\tau_c$ . Then, exciting this reference material with a replica of pulse  $\bar{E}_3(t)$  and with the delayed replicas  $\bar{E}_1(t - T)$  and  $\bar{E}_2(t - T)$  of pulses  $\bar{E}_1(t)$  and  $\bar{E}_2(t)$  respectively, one can build the above DWFDM reference. The field cross-correlation function of the signal with this reference is defined as

$$\langle C_{rs}(\sigma) \rangle = \int \langle \bar{E}_r(t) \bar{E}_s^*(t - \sigma) \rangle dt \quad (10)$$

where the brackets stand for the ensemble statistical average. Since  $\bar{E}_r(t)$  and  $\bar{E}_s(t)$  are third-order fields, this function involves a sixth-order statistical moment. Calculation of this moment is a complicated matter when the exciting pulses have some degree of mutual correlation, and implies that hypothesis be made on the light statistics. In our case, as the three exciting pulses are mutually uncorrelated, this moment reduces to a product of three moments of order two and  $\langle C_{rs}(\sigma) \rangle$  reads as

$$\langle C_{rs}(\sigma) \rangle = \int dt \int_0^\infty d\tau R(\tau) \langle \bar{E}_3(t) \bar{E}_3^*(t - \sigma) \rangle \langle \bar{E}_2^*(t - T) \bar{E}_2(t - \sigma - \tau) \rangle \times \langle \bar{E}_1(t - T) \bar{E}_1^*(t - \sigma - \tau) \rangle. \quad (11)$$

Then, since  $\tau_c \ll T_1 \ll \tau_l$ , one readily finds out that the cross-correlation function  $\langle C_{rs}(\sigma) \rangle$  is non-zero only for the value  $\sigma = 0$ , for which it reads

$$\langle C_{rs}(0) \rangle \propto R(T). \quad (12)$$

Hence, monitoring the evolution of  $\langle C_{rs}(0) \rangle$  as the delay  $T$  varies, one performs sampling of the population relaxation function. Let us point out that the delay should be positive. When  $T$  becomes negative, the correlation  $\langle C_{rs}(0) \rangle$  vanishes in an interval of width  $\tau_c$ .

According to the description of  $\tilde{E}_s(t)$  in terms of elementary signals, physical interpretation of the above results is the following. The reference at time  $t$  is correlated to the single elementary signal

$$\delta \tilde{E}_s(t; T) = \tilde{E}_3(t) \tilde{E}_2^*(t - T) \tilde{E}_1(t - T) R(T). \quad (13)$$

Hence, the correlation  $\langle \tilde{E}_r(t) \delta \tilde{E}_s^*(t; T) \rangle$  is simply proportional to  $R(T)$ . Summation of these contributions over the pulse duration gives  $\langle C_{rs}(0) \rangle$ . The fraction of the signal amplitude that contributes to the measurement is of the order of  $\tau_c/T_1$ .

So far we have only considered the signal component  $\tilde{E}_s$ . In an experimental situation, the measured cross-correlation would read as

$$\langle C_{RS}(0) \rangle = \langle C_{rs}(0) \rangle + \langle C_{rs'}(0) \rangle \quad (14)$$

where  $\langle C_{rs'}(0) \rangle$  is the cross-correlation between  $\tilde{E}_r(t)$  and the signal component  $\tilde{E}_{s'}(t)$ . Carrying out the calculation of  $\langle C_{rs'}(0) \rangle$ , one finds that this term is zero for all  $T$  except in an interval of width  $\tau_c$  around  $T = 0$ , where it is of the same order of magnitude as  $\langle C_{rs}(0) \rangle$ . Therefore, this additive term does not spoil the sampling of  $R(T)$ .

To be effective, the technique requires fulfilment of some conditions. First, one needs a reference material well adapted to the studied one. Second, only a small part of the signal energy is used in the cross-correlation measurement, so that one should use very long pulses in order to get enough energy in the signal and/or have a very sensitive detection device. Though these difficulties are not insuperable, it is possible to get rid of the problem of the reference material and to make use of a greater part of the signal energy for the measurement, by building the reference in another sample of the very material to be studied. This is the situation we are now considering, and which will be referred to as the homogeneous technique, as opposed to the heterogeneous measurement discussed above which makes use of a reference built in a material different from the studied one.

We then assume that we have two samples of the same material. One is used to build the signal, as was previously discussed. The other one is excited by replicas of pulses  $E_1(t)$  and  $E_2(t)$ , and by the delayed replica  $E_3(t - T)$  of pulse  $E_3(t)$ , where  $T$  is a variable positive delay. Thus, one generates the following DFWM reference

$$\tilde{E}_R(t) = \tilde{E}_r(t) + \tilde{E}_{r'}(t) \quad (15)$$

$$\tilde{E}_r(t) = \tilde{E}_3(t - T) \int_0^\infty \tilde{E}_2^*(t - \tau) \tilde{E}_1(t - \tau) R(\tau) d\tau \quad (16)$$

$$\tilde{E}_{r'}(t) = \tilde{E}_1(t) \int_0^\infty \tilde{E}_2^*(t - \tau) \tilde{E}_3(t - \tau - T) R(\tau) d\tau. \quad (17)$$

The leading term in the correlation between  $\tilde{E}_R$  and  $\tilde{E}_S$  is due to that between  $\tilde{E}_r$  and  $\tilde{E}_s$ . It reads as

$$\begin{aligned} \langle C_{rs}(\sigma) \rangle &= \int dt \int_0^\infty d\tau R(\tau) \int_0^\infty d\tau' R(\tau') \langle \tilde{E}_3(t - T) \tilde{E}_3^*(t - \sigma) \rangle \\ &\quad \times \langle \tilde{E}_2^*(t - \tau') \tilde{E}_2(t - \sigma - \tau) \rangle \langle \tilde{E}_1(t - \tau') \tilde{E}_1^*(t - \sigma - \tau) \rangle. \end{aligned} \quad (18)$$

Taking  $\langle C_{rs}(\sigma) \rangle$  at  $\sigma = T$ , one readily obtains the expression

$$\langle C_{rs}(T) \rangle \propto \int_0^{\infty} d\tau R(\tau)R(\tau + T) \quad (19)$$

which, with the specific form of  $R(\tau)$  given in (7) becomes

$$\langle C_{rs}(T) \rangle \propto e^{-T/T_1}. \quad (20)$$

Thus, measuring the cross-correlation between the reference  $\bar{E}_r(t)$  and the delayed signal  $\bar{E}_s(t - T)$ , as a function of the delay  $T$ , one samples the autocorrelation function of  $R(\tau)$ , which allows measurement of the population decay time.

Interpretation of the above equation is the following. Each elementary signal

$$\delta \bar{E}_s(t - T; \tau) = \bar{E}_3(t - T) \bar{E}_2^*(t - \tau - T) \bar{E}_1(t - \tau - T) R(\tau) \quad (21)$$

is correlated to the elementary reference

$$\delta \bar{E}_r(t; T + \tau) = \bar{E}_3(t - T) \bar{E}_2^*(t - \tau - T) \bar{E}_1(t - \tau - T) R(\tau + T) \quad (22)$$

which is built by the same fields, but which corresponds to a relaxation during the time interval  $(\tau + T)$  instead of  $\tau$ , due to the delay that separates  $\bar{E}_3(t)$  and  $\bar{E}_3(t - T)$ . The correlation  $\langle \delta \bar{E}_r(t; T + \tau) \delta \bar{E}_s^*(t - T; \tau) \rangle$  is thus modulated by the product  $R(\tau)R(\tau + T)$ . The cross-correlation  $\langle C_{rs}(T) \rangle$  is the sum of the contributions from all the pairs of correlated elementary signal and reference.

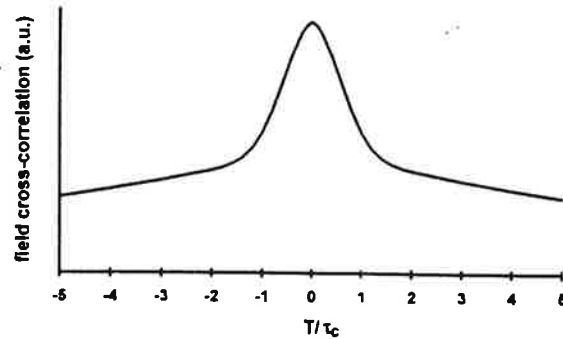


Figure 1. Calculated cross-correlation function between the signal and the reference built in the same material as for the signal. The curves corresponds to  $T_1/\tau_c = 10$ .

The correlation term  $\langle C_{rs}(T) \rangle$  which has been discussed about so far, is only one of the four terms that contributes to the total cross-correlation

$$\langle C_{RS}(T) \rangle = \langle C_{rs}(T) \rangle + \langle C_{r's'}(T) \rangle + \langle C_{rs'}(T) \rangle + \langle C_{r's}(T) \rangle \quad (23)$$

where

$$\langle C_{ij}(T) \rangle = \int \langle \bar{E}_i(t) \bar{E}_j^*(t - T) \rangle dt \quad i = r, r' \quad j = s, s'. \quad (24)$$

Evaluation of the last two terms shows that they are of the order of  $\tau_c/T_1$  relatively to  $\langle C_{rs}(T) \rangle$  and can therefore be neglected. As to the second one, it reads as

$$\langle C_{r's'}(T) \rangle \propto g(T) \int_0^\infty d\tau' \int_0^\infty d\tau g(\tau' - \tau + T) g(\tau' - \tau) R(\tau) R(\tau') \quad (25)$$

so that, for a Gaussian autocorrelation function  $\langle C_{RS}(T) \rangle$  is finally expressed as

$$\langle C_{RS}(T) \rangle \propto g(T)^{3/2} e^{-T/2T_1} + e^{-T/T_1}. \quad (26)$$

One can check that this expression still holds for negative delays provided that  $T$  be changed in  $(-T)$ . Figure 1 is a plot of  $\langle C_{RS}(T) \rangle$  against  $T$  for  $\tau_c/T_1 = 10$ . The curve, which is symmetric with respect to the value  $T = 0$ , consists of a coherence spike, given by the first term of (26), followed on each side by the exponentially decreasing tails, characteristic of the population decay. The ratio of the tails maximum to that of the coherence spike is unity regardless of the relative values of  $\tau_c$  and  $T_1$ , and there is no background.

Before describing our experiment, let us compare the features of the two techniques we have presented. With both homogeneous and heterogeneous measurements, the relevant part of the correlation signal appears against a zero background. The homogeneous approach probably guarantees a better signal-to-noise ratio. In this measurement, the whole signal amplitude participates to the correlation signal whereas in the heterogeneous technique, the useful fraction of the signal amplitude is of the order of  $\tau_c/T_1$ . On the other hand, only this latter technique can give access to sampling of the relaxation function itself.

We have experimented a derivation of the homogeneous technique where the same sample is used to produce both the signal and the reference. Thus, in addition to the pulses  $E_1(t)$ ,  $E_2(t)$ , and  $E_3(t)$  which generates the signal, the sample is excited by the delayed replica  $E_3(t-T)$  of pulse  $E_3(t)$ , the former of which, together with  $E_1(t)$  and  $E_2(t)$  produces the reference. Then, under the assumption that the orientational relaxation is negligible at the scale of  $T_1$ , if  $E_1(t)$ ,  $E_2(t)$ , and  $E_3(t)$  are polarized in the same direction  $e_{\parallel}$ , whereas  $E_3(t-T)$  is polarized in the perpendicular direction  $e_{\perp}$ , the total DFWM emission of the sample in the direction  $k_S$  is

$$E_{\Sigma}(t) = \left( \bar{E}_S(t)e_{\parallel} + \frac{1}{3} \bar{E}_R(t)e_{\perp} \right) \exp i(\omega t - k_S \cdot r) + CC \quad (27)$$

where  $\bar{E}_S(t)$  and  $\bar{E}_R(t)$  are the signal and the reference amplitude as given by (4) and (15) respectively, and the factor  $\frac{1}{3}$  is due to the crossed polarization of the beams that build the reference. Polarizers can be used to separate the cross-polarized components  $\bar{E}_S(t)$  and  $\bar{E}_R(t)$  which are then cross-correlated in order to measure  $\langle C_{RS}(T) \rangle$  expressed by (26).

### 3. Experiment

We have undertaken the experiment on a solution of DODCI in ethanol. This specific choice of dye solution was justified by the value of its characteristic times. The excited state lifetime is 1.15 ns [16–18] and the homogeneous dephasing time is as short as 50 fs [19]. A broad-band ns laser can therefore be used to fulfil the condition

$$T_2 \ll \tau_c \ll T_1 \ll \tau_l$$



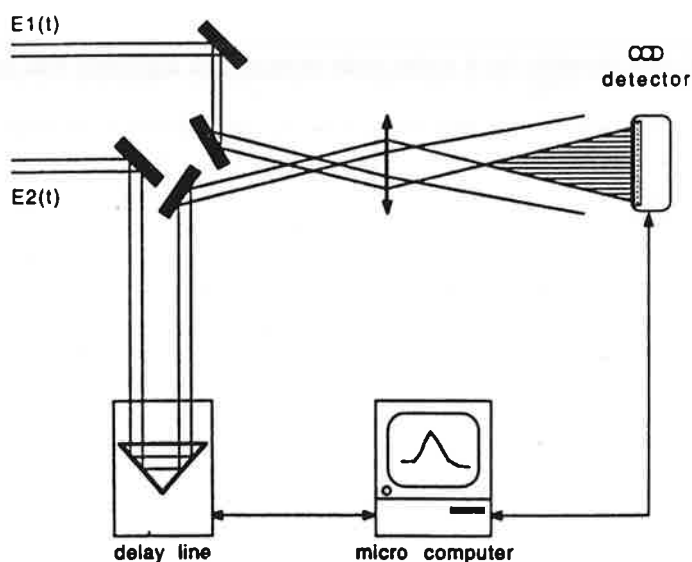


Figure 2. The cross-correlator and the associated delay line.

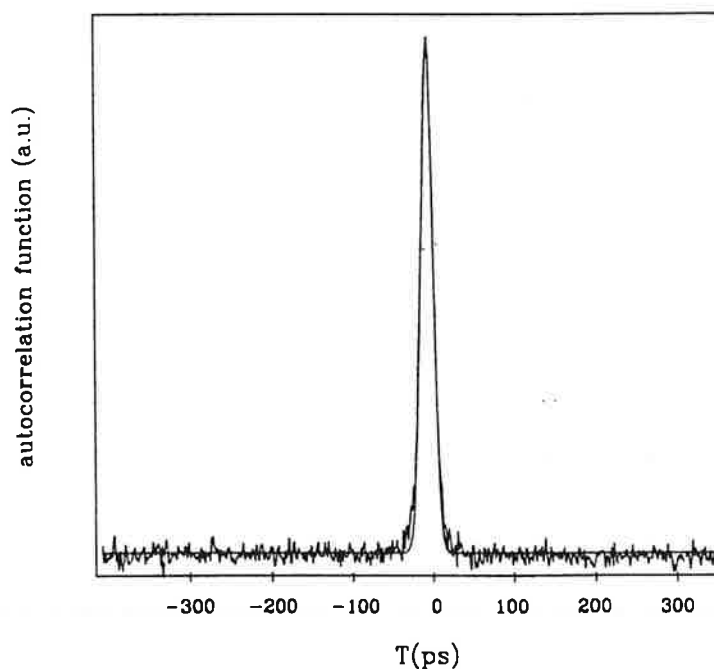


Figure 3. The field autocorrelation function of our broad-band ns laser.

assumed in the theory. Our laser source was a pulsed dye laser in the Hansh-type configuration. The laser dye (Rh6G) was pumped by the second harmonic of a  $Q$ -switched Nd-YAG laser at 15 Hz repetition rate. The set-up was tuned to deliver pulses at 583 nm, which corresponds to the maximum of the DODCI absorption band. The pulse duration was 7 ns and the coherence time 20 ps. The latter was determined using the autocorrelation

function of the laser field recorded by a home made device. The apparatus was developed in the group a few years ago [20]. It performs sampling of the cross-correlation function of two fields at 15 Hz rate with a time resolution of 40 fs. The correlator basically consists of a detector and a microcomputer (figure 2). The Young-type interference pattern between the two fields is formed on the detector, and the computer calculates the contrast of the fringes, which gives the field mutual degree of correlation. The correlator is associated with a variable delay line. The correlation function is sampled in the course of the delay line movement at the rate of one sample per laser shot. Figure 3 is a record of the autocorrelation function which characterizes our laser field. It consists of a single peak, showing that the pulses have no coherent mode structure. The coherence time was obtained by fitting the function

$$g(t) = \exp(-t^2/\tau_c^2)$$

to the experimental record.

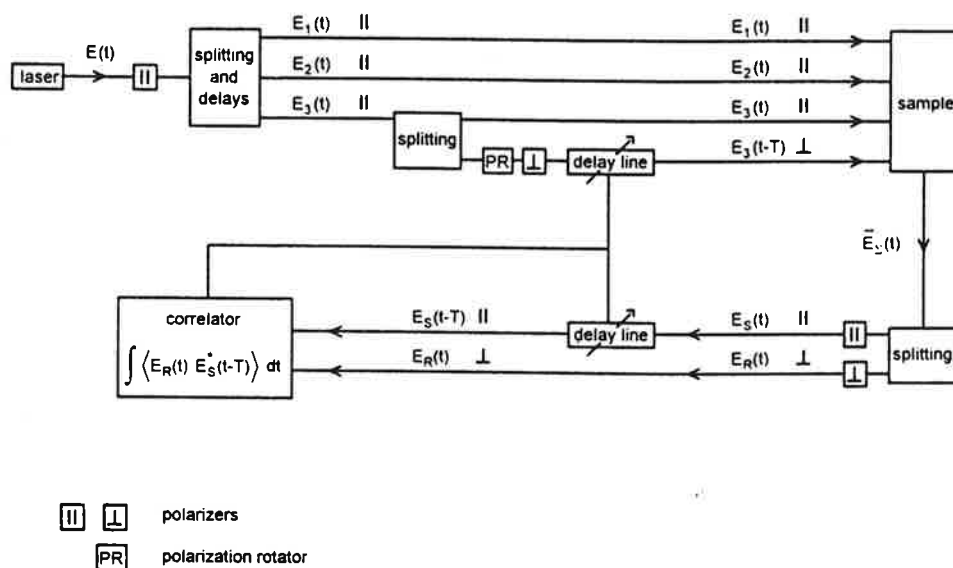


Figure 4. Schematic representation of the experimental set-up.

The experimental arrangement used to test the proposed technique is schematically represented in figure 4. The exciting pulses  $E_1(t)$ ,  $E_2(t)$ , and  $E_3(t)$  polarized in the direction  $e_{||}$  are derived from the same initial laser pulse by amplitude division and differential delay:

$$E_2(t) = E_3(t - t_{32}) \quad E_1(t) = E_2(t - t_{21}).$$

Provided that the delays  $t_{32}$  and  $t_{21}$  are greater than the pulse coherence time, it can be shown that the expression (26) of  $(C_{RS}(T))$ , derived under the assumption that the exciting pulses are mutually uncorrelated, still holds with the above pulses when the assumed condition  $\tau_c \ll T_1$  is fulfilled. The delays were  $t_{32} = 2$  ns and  $t_{21} = 20$  ps. As to the fourth exciting pulse  $E_3(t - T)$ , it is derived from pulse  $E_3(t)$ . The delay  $T$  is introduced by the variable delay line associated to the correlator and the polarization of the pulse is rotated  $90^\circ$  to the

direction  $e_{\perp}$ . The four pulses are directed to the sample to generate the DWFm signal  $E_{\Sigma}(t)$  in the phase conjugation configuration  $k_1 - k_2 + k_3$ . The DODCI solution, concentrated at  $5 \times 10^{-5} M^{-1}$ , was circulating in a cell 0.4 mm thick. In order to separate the two components  $E_S(t)$  and  $E_R(t)$  of the signal, this one is split and the two beams propagate along two distinct optical paths. One selects the polarization  $e_{\perp}$  that is field  $E_R(t)$ ; the other one selects field  $E_S(t)$ . Moreover this latter path goes through the same delay line that produces pulse  $E_3(t - T)$ . The two beams are then directed to the cross-correlator device which thus record the modulus of the correlation

$$\langle C_{RS}(T) \rangle = \int \langle (\bar{E}_r(t) + \bar{E}_r'(t)) (\bar{E}_s^*(t - T) + \bar{E}_s'^*(t - T)) \rangle dt.$$

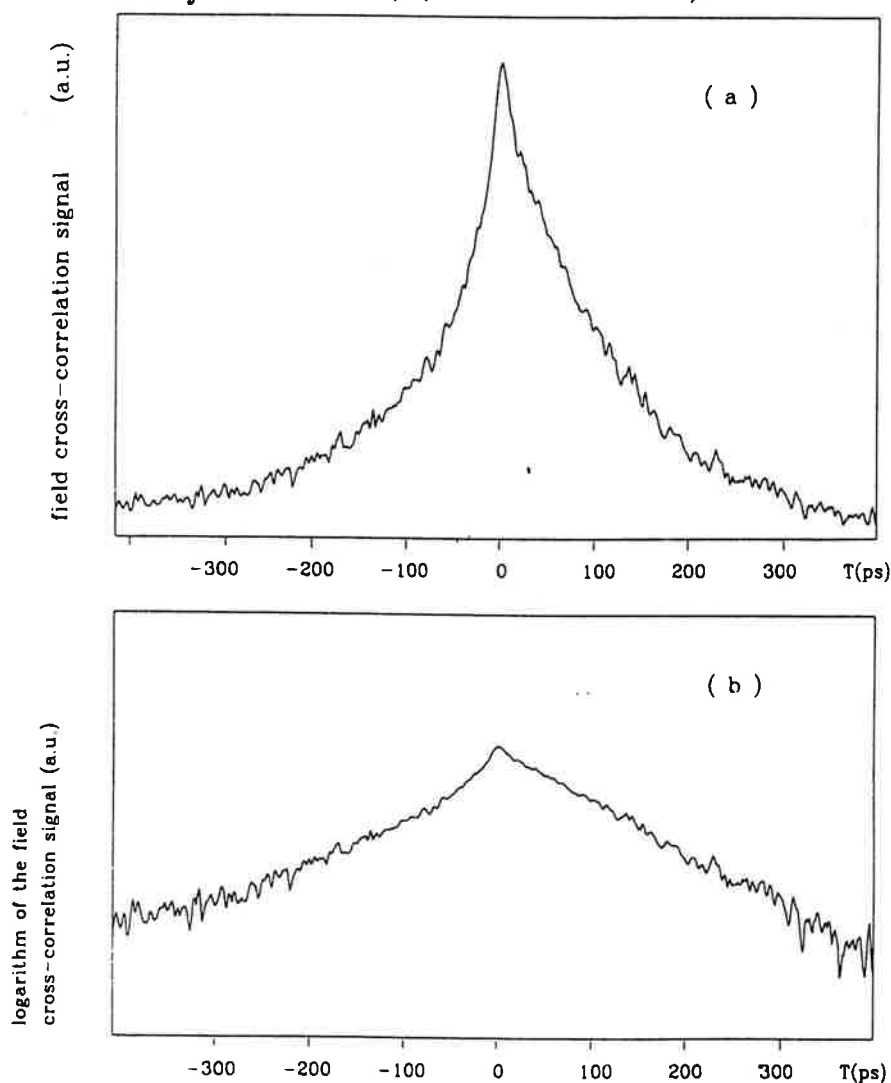


Figure 5. Experimental curve of the cross-correlation between the signal and the reference recorded as a function of the delay time  $T$  on (a) a linear scale and (b) a semi-logarithmic scale.

Figure 5 shows the typical experimental curve obtained, in both linear and semilogarithmic scales. The data were accumulated during 15 to and fro movements of the

delay line. The reproducibility of the results was good. Because of the poor performances of our CCD detector array (sensitivity  $\sim 1 \mu\text{J cm}^{-2}$ ; dynamic range  $\sim 100 : 1$ ), the experiments had to be carried under saturation conditions. With  $T_1 = 1.1 \text{ ns}$  and an absorption cross section  $\sigma = 8.5 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$  [16], the saturation intensity  $I_{\text{sat}} = h\nu/\sigma T_1$  is  $0.35 \text{ MW cm}^{-2}$  whereas the minimum total intensity in the sample for the correlation signal to be detected was about  $1 \text{ MW cm}^{-2}$ . Since excitation of DODCI leads to the formation of a photoisomer whose absorption and fluorescence bands overlap those of the normal form, the system cannot be reasonably described by a two-level system model under saturation conditions [16, 17, 21–23]. However, the overall characteristics of the curve are in agreement with those expected. One can identify the coherence spike centred at  $T = 0$  and followed on each side by the exponential tail. The width of the spike, measured at the slope break is  $25 \text{ ps}$  in agreement with the recorded autocorrelation function of the laser field. The next point to be noted is the small level of the background. This feature, as mentioned in the introduction, is a real advantage of field cross-correlation measurements as compared to intensity characterisation techniques, when incoherent light is used.

Careful examination of the curve shows that it is asymmetric with respect to the value  $T = 0$ . This is not a consequence of any experimental misalignment and can be interpreted as the expression of the orientational relaxation process occurring in the solution. For positive values of the delay  $T$ , the correlation function  $\langle C_{rs}(T) \rangle$  results from the summation over  $t$  and  $\tau$  ( $\tau$  positive) of the elementary components

$$\langle c_+(t; \tau) \rangle = \langle \delta E_s(t; T + \tau) \delta E_r^*(t - T; \tau) \rangle$$

where  $\delta E_s(t; t')$  and  $\delta E_r(t; t')$  are defined by equations (21) and (22). In the same way, for negative values of the delay, the correlation function  $\langle C_{rs}(-|T|) \rangle$  can be regarded as the combination of the elementary contributions

$$\langle c_-(t; \tau) \rangle = \langle \delta E_r(t - |T|; \tau) \delta E_s^*(t; \tau + |T|) \rangle.$$

The elementary fields  $\delta E_s(t; t')$  and  $\delta E_r(t; t')$  both results from diffraction of the pump field  $E_3(t)$  on spatial gratings which have been engraved at time  $(t - t')$ . However, two kinds of gratings must be considered. Those which give rise to  $\delta E_s(t; t')$  (respectively  $\delta E_r(t; t')$ ) have been built by pulses with parallel (respectively crossed) polarizations. As a result, the decay of the former is accelerated by the molecular desorientation while this process slows down the relaxation of the latter. Thus,

$$\langle c_+(t; \tau) \rangle > \langle c_-(t; \tau) \rangle$$

whatever the values of  $t$  and  $\tau$ , and

$$\langle C_{rs}(|T|) \rangle > \langle C_{rs}(-|T|) \rangle$$

as confirmed by experimental profiles. As another experimental verification of the above argumentation, we could check that the asymmetry changes sign when the polarization of the pulses  $E_3(t)$  and  $E_3(t - T)$  is permuted.

#### 4. Conclusion

We have theoretically proposed two methods for population lifetime measurement with incoherent light based on cross-correlation analysis of DWFDM signals, and we have experimentally checked the main features of one of these techniques. As compared to the other methods for longitudinal relaxation time measurement with incoherent light, the technique we have experimented is characterized by a very low background level and a small coherence spike. In addition, the measure is independent of shot-to-shot laser fluctuations. Henceforth, we believe that this technique is worth further developments. In particular, its experimentation with a correlator device using a more sensitive detector, together with low intensity CW stochastic excitation should yield very low noise and precise data. Development of these experimental tools should also make it possible to investigate the other proposed method. This one should be useful for detailed study of relaxation dynamics in condensed matter.

#### References

- [1] Kobayashi T, Terasaki A, Hattori T and Kurokawa K 1988 *Appl. Phys. B* **47** 107—1
- [2] Nakatsuka H, Tomita M, Fujiwara M and Asaka S 1984 *Opt. Commun.* **52** 150—2
- [3] Morita N and Yajima T 1984 *Phys. Rev. A* **30** 2525—2
- [4] Asaka S, Nakatsuka H, Fujiwara M and Matsuoka M 1984 *Phys. Rev. A* **29** 2286—2
- [5] Beach R and Hartmann S R 1984 *Phys. Rev. Lett.* **53** 663—6
- [6] Fujiwara M, Kuroda R and Nakatsuka H 1985 *J. Opt. Soc. Am. B* **2** 1634—1
- [7] Hattori T and Kobayashi T 1987 *Chem. Phys. Lett.* **133** 230—2
- [8] Morita N, Tokizaki T and Yajima T 1987 *J. Opt. Soc. Am. B* **4** 1269—1
- [9] Tomita M and Matsuoka M 1986 *J. Opt. Soc. Am. B* **3** 560—3
- [10] Nakatsuka H, Katashima Y, Inouye K and Yano R 1988 *Opt. Commun.* **69** 169—72
- [11] Nakatsuka H, Katashima Y, Inouye K, Yano R and Uemura S 1989 *Opt. Commun.* **74** 219—22
- [12] Blümich B 1987 *Rev. Sci. Instrum.* **58** 911—9
- [13] Blümich B 1987 *Prog. Nucl. Magn. Reson. Spectrosc.* **19** 331—4
- [14] Bouchène M A, Débarre A, Keller J C and Le Gouët J-L and Tchénio P 1992 *J. Opt. Soc. Am. B* **9** 281—9
- [15] Morita N, Torizuka A and Yajima T 1986 *J. Opt. Soc. Am. B* **3** 548
- [16] Dempster D N, Morrow T, Ranking R and Thompson G F 1972 *J. Chem. Soc.* **68** 1479—1
- [17] Magde D and Windsor M W 1974 *Chem. Phys. Lett.* **27** 31—3
- [18] Miallock J C, Boyd A W, Jaraudias J and Sutton J 1976 *Chem. Phys. Lett.* **37** 236—2
- [19] Yajima T, Ishida Y and Taira Y 1980 *Picosecond Phenomena II* (Berlin: Springer) pp 190—1
- [21] Arthurs E G, Bradley D J and Roddie A G 1973 *Chem. Phys. Lett.* **22** 230—4
- [22] Arthurs E G, Bradley D J and Roddie A G 1973 *Opt. Commun.* **8** 118—23
- [23] Bush G E, Jones R P and Rentzepis P M 1973 *Chem. Phys. Lett.* **18** 178—1









# **Annexe D**

## **Article 3**



PHASE-ENCODING TECHNIQUE IN TIME-DOMAIN HOLOGRAPHY:  
THEORETICAL ESTIMATION

H. Sõnajalg, A. Débarre, J.-L. Le Gouët, I. Lorgère and P.Tchério

*Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, bâtiment 505, 91405 Orsay Cédex, France*

ABSTRACT

Optical memories based on the process of persistent spectral hole burning (PHB) have been investigated for several years. In previous works, either the spectral positions of the data or their temporal ones have been used as storage addresses. A new method for encoding the stored data is proposed. We suggest to have the address represented by the spectral shape of the writing field and to retrieve information by the help of the pattern recognition of a temporal profile. This procedure is expected to accelerate access to the stored data. In order to evaluate the validity of the method, we consider various physical effects that may give rise to a cross talk between the different addresses. A numerical simulation under realistic conditions is also presented.

\*Permanent address: Institute of Physics, Estonian Academy of Sciences,  
Riia 142, EE2400 Tartu, Estonia.

## 1. INTRODUCTION

Recording in spectrally selective media could strongly improve the storage density and the access time of optical memories (see, for example, Ref.[1], and references therein). In those materials the data are engraved as a modification of the inhomogeneously broadened absorption band of impurities embedded in a solid matrix. With respect to current commercial optical devices, storage density increases of several orders of magnitude have been demonstrated [2]. The memory capacity is potentially multiplied by the ratio of the inhomogeneous width  $\Delta_{in}$  of the absorption band of the sample to the homogeneous width  $\Gamma$  of the absorption band of a single impurity in the matrix. This ratio can be as large as  $10^3$  to  $10^4$ . Full advantage of the large capacity of such memories and of the intrinsic parallelism due to their optical nature can be taken in an application such as image storage. In this frame, the read-out rate has to equal the video rate at least. This is not achieved by currently developed image-addressing methods. The present article proposes a new procedure to overcome the difficulty and investigates its potentialities.

To address the data, two approaches have been developed. In the first, namely frequency-domain optical storage (FDOS), each image is encoded as a modification of the absorption at a specific frequency [3 ,4 ]. When no image is stored, the absorption is high (initial absorption). After storage of one image, the absorption on a  $\Gamma$ -wide spectral domain around laser frequency decreases in each point of the sample proportionally to the image intensity at this point. The absorption decrease is spectrally well-localized in the absorption band since  $\Gamma \ll \Delta_{in}$ . Many images can be engraved by varying the laser frequency. Their addresses are their spectral positions. The second approach, time-domain optical storage (TDOS) [5], issues from three-pulse photon echo [6, 7]. It is a time-and-space-holography technique. First the sample is illuminated by a short pulse, so called write pulse. It gives a time-and-space reference. Then a train of pulses is sent to the sample. The spatial structures of the different pulses carry different images. Thus a permanent spatial and spectral hologram is stored in the sample. All the image train

information is saved if each pulse is longer than the inverse inhomogeneous width and the entire train shorter than the inverse homogeneous width. Then, when illuminating the sample with a short pulse, so-called read-out pulse, the entire image train is restored. The time interval between any restored image and the read-out pulse equals that between the write pulse and the corresponding stored image. From an information point of view, each image is encoded as a  $\Delta_{\text{in}}^{-1}$  long pulse. It is temporally well-localized in the  $\Gamma^{-1}$  long pulse train. Its delay with respect to the write-pulse is its address.

Image storage have been demonstrated by both FDOS and TDOS in impurity-doped crystals [8, 9] or glasses [10-12]. These two classes of spectrally selective materials differ by the orders of magnitude of  $\Gamma$  and  $\Delta_{\text{in}}$ . In crystalline samples  $\Gamma$  is in the range of KHz to MHz and  $\Delta_{\text{in}}$  on the order of GHz. In glassy samples,  $\Gamma$  is usually larger than 100MHz and  $\Delta_{\text{in}}$  can be as large as 10 THz. In principle, the random access time to any image is determined by  $\Gamma^{-1}$  in FDOS or TDOS approaches. Unfortunately, this high read-out rate is not achieved and even read-out at video rate has not be demonstrated. Both FDOS and TDOS suffer from technological limitations. For FDOS, laser-frequency driving is the slow process. To use the full memory capacity, the laser bandwidth has to be smaller than  $\Gamma$ . In random access mode, the laser frequency has to make jumps as large as  $\Delta_{\text{in}}$ , which is typically  $10^3$  times larger than the laser bandwidth  $\Gamma$ . To retrieve the right image the precision of the jump has to be better than  $\Gamma$ . These constraints severely slow down the read-out rate [2]. For TDOS, the main difficulty is that the entire train of images is restored for each read-out. Extracting a specific image requires a time-gating procedure. For an optimal use of the memory, the temporal width of the gate has to be smaller than  $\Delta_{\text{in}}^{-1}$ . The delay between the gate and the read-out pulse has to be set with a precision  $\Delta_{\text{in}}^{-1}$ . Between the read-out of two images, the delay variation can be as large as  $\Gamma^{-1}$  and has to be realized at a video rate. No present temporal-gating technique satisfies such requirements. Optical gates, which are based on intensity or field cross-correlation can be narrow enough. But, in the devices, delay variations involve slow mechanical displacements [13, 14].

We propose a scheme to store and read-out data that is close to TDOS. But it takes advantage of signal processing ability of the memory, which has been

largely demonstrated during the recent years [15, 16]. This avoids restoring the entire train of images. As in classical set-up for TDOS, the sample is successively illuminated by a write pulse and after a delay  $\tau$  by an image pulse. However, the write pulse is no longer short and structureless. Its temporal shape corresponds to a code. For the engraving of another image, the delay  $\tau$  is not varied. Instead, the code of the write pulse is changed. When reading-out the memory with one of the set of the coded pulses, the emitted signal depends on the correlation between the code of the read-out pulse and that of the write pulse. For a proper coding and detection scheme, only the image stored with the same code as that of the read-out pulse is restored.

The proposed approach is free from the limitations imposed either by laser frequency scanning or by mechanical displacements. The only element that has to be configured in order to generate the codes of the write or read-out pulses is a spatial light modulator (SLM). This seems attractive, especially with rapidly improving liquid-crystal-based SLM [17].

The principle of the pulse encoding is exposed in Sec. 2, together with the principle of signal detection. The analytical description of the data recording and retrieval processes is given in Sec. 3. This technique presents specific sources of cross-talk between the different data. They are considered separately in Sec.4, and analytical expressions are derived to characterize them. Finally, a numerical model is used in Sec. 5 in order to investigate the combination of the different cross-talk effects and to evaluate the resulting signal-to-noise ratio, in realistic experimental conditions. A summary is given in Sec 6.

## 2.SPECTRAL PHASE ENCODING AND SIGNAL DETECTION

### A. Spectral Phase Encoding

The encoding procedure is derived from a recently proposed method for multiplexing holograms in space-domain holography [18-20]. In space domain, each hologram is recorded with  $N$  reference beams. A phase shift on each reference beam can be set to 0 or  $\pi$ . The set of the phase shifts on the different reference beams used to record one hologram defines the hologram

address. It can be shown that, for  $N$  reference beams,  $N$  "orthogonal" sets of phase shifts can be defined (memory with  $N$  addresses). If each hologram is recorded with one of these  $N$  sets, the addresses are independent in the following sense. When illuminating the recording media through one of the  $N$  sets of phase shifts, only the image recorded with the selected set is restored. Images recorded with different sets are not observed due to destructive interferences, which result from the orthogonality of the sets. The set of phase shifts is the only element to configure in order to recover a definite image.

We are interested in carrying over the preceding biphas-coding technique from space-domain to spectral domain since frequency selective memories are able to perform spectral correlations. In that purpose, we follow a spectral coding technique developed by Weiner and al. [21-23]. The spectrum of the reference pulses (write pulse or read-out pulse) is dispersed within a pair of gratings and a SLM of  $N$  element is introduced between the gratings. The spectrum can be considered as composed of  $N$  spectral slices. The SLM can introduce a relative phase shift  $0$  or  $\pi$  on each spectral slice. As in space holography, we will show that  $N$  orthogonal sets of phase shifts ( $N$  different codes for the reference pulses) can be defined. The set of phase shifts used to engraved an image defines its address. When reading the memory with one of the  $N$  spectrally coded reference, an echo signal is emitted. The latter has to be analysed at a fixed delay  $\tau$  after the read-out pulse to get the information about the addressed image only. For this analysis, a cross-correlation technique proposed and demonstrated in Refs [24, 25] serves well. We point out that the analysis is at fixed delay and does not require any mechanical displacement or laser frequency scanning. In addition, the suggested optical memory works with stochastic excitation [26]. In impurity glasses, subpicosecond reference pulses are not required. Simple broadband light sources can be used as well [27].

Let us be more specific about the phase-encoding technique. For sake of simplicity, we will focus on the spectral dimension and forget the 2D spatial dimension (storage of an image point) since spatial dimension can be easily reintroduced. Each spectrally-coded write pulse is applied to the sample in the direction  $\vec{e}_0$ . If the write pulse is followed after a delay  $\tau$  by a signal

pulse propagating in the direction of  $\vec{e}_1$ , we say that a binary "1" is stored. When the signal pulse is missing, we call the corresponding information binary "0". The biphasemodulation of the reference pulses is expressed by making use of sequences  $r_1$  of  $N$  integers +1 or -1:

$$r_1 = (r_1^{(1)}, r_1^{(2)}, r_1^{(3)}, \dots, r_1^{(N)}) \quad (r_1^{(p)} = +1 \text{ or } -1), \quad (2.1)$$

where the upper index  $p=1, 2, \dots, N$  counts different slices of the spectrum. The value +1 corresponds to a phase 0 and the value -1 to a phase  $\pi$ . The sequences  $r_1$  fulfil the following condition of orthogonality:

$$\sum_{p=-N/2}^{N/2} r_k^{(p)} \times r_l^{(p)} = N \delta_{kl} \quad (2.2)$$

As the orthogonal sequences  $r_1$  we use the basis vectors of the Hadamard transform with  $N=2^n$  ( $n=1, 2, \dots$ ) elements [28, 29]. The spectral shape  $R_1(\omega)$  of the  $i$ th phase-modulated pulse can be written down as a sum over  $N$  shifted rectangle functions whose amplitude is  $r_1^{(p)}=+1$  or  $-1$  when  $\omega$  satisfies the condition  $|\omega - (\omega_0 + p\Delta - \frac{\Delta}{2})| \leq \frac{\Delta}{2}$ , and 0 elsewhere:

$$R_1(\omega) = \sum_{p=-N/2}^{N/2} r_1^{(p)} \times \text{rect} \left[ \frac{\omega - (\omega_0 + p\Delta - \frac{\Delta}{2})}{\Delta} \right] \quad (2.3)$$

Here the symbols  $\Delta$  and  $\omega_0$  stand, respectively, for the width of each spectral slice and for the centre of the pulse spectrum.

Now let us suppose that after recording the holograms a read-out pulse  $R_j(\omega)$  is applied which belongs to the same set of phase-modulated pulses. A signal is emitted which combines contributions from the different holograms. The  $i$ th constituent hologram gives rise to a signal which is, in the linear approximation, proportional to the amplitudes of the reference pulse  $R_1(\omega)$  (applied at  $t=0$ ), the recorded signal pulse  $S_1 \exp(i\omega\tau)$  (applied at  $t=\tau$ ), and the read-out pulse  $R_j(\omega) \exp(i\omega\tau_{\text{read}})$  (applied at  $t=\tau_{\text{read}}$ ). After summation over the  $N$  constituent holograms, the spectral amplitude of the signal reads:

$$E_1(j, \omega) \propto \exp \left[ i\omega(\tau + \tau_{\text{read}}) \right] R_j(\omega) \sum_{l=1}^N R_l^*(\omega) S_l \quad (2.4)$$



The phase-encoding technique is based on the fact that the signal  $\tilde{E}_1(j,t)$  vanishes at time-delay  $t = \tau + \tau_{\text{read}}$  if, and only if, the phase-modulated read-out pulse has not been formerly used for recording the binary "1", i.e. it corresponds to the binary "0". Indeed, due to the orthogonality condition of Eq.(2.2), the signal at  $t = \tau + \tau_{\text{read}}$  reads as

$$\tilde{E}_1(j, \tau + \tau_{\text{read}}) = \int E_1(j, \omega) \times \exp[-i\omega(\tau + \tau_{\text{read}})] d\omega \propto \begin{cases} N\Delta, & \text{if } S_j = 1 \\ 0, & \text{if } S_j = 0 \end{cases} \quad (2.5)$$

### B. Data Retrieval by Field Cross Correlation

The selective read out of the stored data only works at time  $\tau + \tau_{\text{read}}$ . The required resolution of the detection device is thus imposed by the characteristic time scale of variation of the radiated field. It equals the inverse spectral width of the hologram  $2\pi/(N\Delta)$ . In typical hole burning materials embedded in polymer matrices, this quantity is as short as 100fs, which is by far out of reach of standard detection procedures.

However optical sampling techniques can satisfy that drastic resolution condition. Specifically one can record the crosscorrelation function  $g(T)$  of a signal field  $\tilde{E}_S(t)$  and a reference field  $\tilde{E}_R(t)$  [14, 24, 25]:

$$\begin{aligned} g(T) &= \frac{\int dt \tilde{E}_R(t-T) \tilde{E}_S^*(t)}{\int dt |\tilde{E}_R(t)|^2} \\ &= \frac{\int d\omega E_R(\omega) E_S^*(\omega) \exp(i\omega T)}{\int d\omega |E_R(\omega)|^2} \end{aligned} \quad (2.6)$$

Let the spectrum of the reference field be a  $N\Delta$ -wide rectangle function. With  $E_1(j, \omega)$  as the signal field, the cross-correlation function reads:

$$g(j, T) = \int d\omega \exp[-i\omega(\tau + \tau_{\text{read}} - T)] R_j^*(\omega) \sum_{i=1}^N R_i(\omega) S_i / (N\Delta) \quad (2.7)$$

The  $T$  dependence of this function coincides with the  $t$  dependence of  $\tilde{E}_1(j,t)$ . Hence,  $g(j, \tau + \tau_{\text{read}})$  gives access to the selective retrieval of the data. It should be stressed that, unlike previously experimented cross-correlation techniques [13,14], the present one is operated at fixed delay. Specifically, it does not require any mechanical motion of a translation stage.

### 3.DETAILED EXPRESSION OF THE SIGNAL

#### A. Formal expression of the signal

The formalism which is used in this section has been developed in Ref.[30, 31]. The spectrally selective recording material is modelled as a sample containing damped linear oscillators with an inhomogeneously broadened band of resonant frequencies [12, 32]. By making use of the model of linear oscillators instead of two-level systems we have to consider weak light pulses with areas much less than  $\pi$  [31]. The relative number of the oscillators, or the inhomogeneous distribution function at position  $r$ ,  $n(\omega, r)$ , decreases as a result of the sample illumination by a resonant light according to:

$$\frac{\Delta n(r, \omega, \nu)}{n} = -\cos^2 \nu \times F(\omega, r) \otimes k(\omega), \quad (3.1)$$

where we have introduced the function of effective exposure  $F(\omega, r)$ ,  $\nu$  is the angle between the electric field vector of light and the dipole momentum of an oscillator, and the convolution is calculated with the homogeneous lineshape  $k(\omega) = \frac{\Gamma}{\pi(\omega^2 + \Gamma^2)}$  [1]. The effective exposure,  $F(\omega, r)$ , is proportional to the absorption cross section, to the quantum yield of PHB, and to the burning dose. This latter quantity represents the integral of the burning field power spectrum over the exposure time. We assume that the recorded space-and-frequency-domain gratings do not decay and that the burnt-out oscillators disappear from the accessible spectral range.

The initial dielectric permittivity of the sample reads:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_0 \left\{ 1 + \frac{\alpha_0}{\pi k_0} \int \frac{n(\omega') d\omega'}{\omega' - \omega - i\Gamma} \right\} \quad (3.2)$$

where  $\alpha_0$  denotes the absorption coefficient at maximum of the inhomogeneous distribution function  $n(\omega)$ , and  $k_0 = (2\pi/\lambda) \varepsilon_0$ . The function  $n(\omega)$  is normalized in such a way that at maximum  $n(\omega) = 1$ . In terms of the Hilbert transform  $\hat{\mathcal{H}}$ , Eq.(3.2) can be expressed as:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_0 \left\{ 1 + i \frac{\alpha_0}{k_0} (1 - i\hat{\mathcal{H}}) \left[ n(\omega) \otimes k(\omega) \right] \right\} \quad (3.3)$$

The imaginary and real parts of  $\epsilon(\omega)$  respectively correspond to the absorption and refraction. After the recording process, the dielectric permittivity and the inhomogeneous distribution function can be written in the form:

$$\epsilon(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \left\{ 1 + i \frac{3\alpha_0}{k_0} (1 - i\hat{\mathcal{H}}) \left[ \langle n(\mathbf{r}, \omega, \nu) \cos^2 \nu \rangle \otimes k(\omega) \right] \right\}, \quad (3.4)$$

$$n(\mathbf{r}, \omega, \nu) = n(\omega) \times \exp \left[ -\cos^2 \nu \times F(\mathbf{r}, \omega) \otimes k(\omega) \right]. \quad (3.5)$$

As  $F(\mathbf{r}, \omega)$  is a periodical function of the lateral ( $x$ -) coordinate, Eq.(3.5) can be expanded into a Fourier series:

$$n(\mathbf{r}, \omega, \nu) = \sum_p n_p(z, \omega, \nu) \exp(ipKx), \quad (3.6)$$

where  $K$  is the Bragg-vector amplitude of the engraved grating. The propagation of the probe field through the exposed sample is described by the wave equation:

$$\Delta E(\mathbf{r}, \omega) + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\mathbf{r}, \omega) E(\mathbf{r}, \omega) = 0. \quad (3.7)$$

The propagating field can also be expressed in terms of its Fourier expansion:

$$E(\mathbf{r}, \omega) = \exp(ik_0 z) \sum_p E_p(z, \omega) \exp(ipKx) \quad (3.8)$$

with the boundary condition:

$$E_p(0, \omega) = \delta_{0p} E(0, \omega) \quad (3.9)$$

In the weak field limit, the linearized wave equation then reads:

$$2 \frac{\partial}{\partial z} E_p(z, \omega) + 3\alpha_0 \sum_q (1 - i\hat{\mathcal{H}}) \left[ \langle n_q(z, \omega, \nu) \cos^2 \nu \rangle \otimes k(\omega) \right] E_{p-q}(z, \omega) = 0 \quad (3.10)$$

The Eq.(3.10), which expresses the absorption and diffraction of the  $p$ -order light field, can be simplified within the limits of the specific storage procedure.

## B. Specificity of spectrally phase-encoded spatial holograms

The laser excitation process for storing one bit at address #i, is characterized by the effective exposure  $F_1(r, \omega)$ :

$$F_1(r, \omega) = f_0 |R_1(z, \omega) + S_1(z, \omega) \exp(iKx + i\omega\tau)|^2$$

$$= f_0 \left[ |R_1(z, \omega)|^2 + |S_1(z, \omega)|^2 + R_1^*(z, \omega) S_1(z, \omega) \exp(iKx + i\omega\tau) + \text{c.c.} \right] \quad (3.11)$$

where the excitation field spectral shapes  $R_1(z, \omega)$  and  $S_1(z, \omega)$  are functions of the propagation length inside the material, where the x dependence is imposed by the wave vector difference  $K = |k_2 - k_1|$ , and where the numerical factor  $f_0$  is the exposure parameter.

The function  $F_1(r, \omega)$  includes both an x-dependent and an x-independent term. The latter represents a bleaching effect which causes erasing of the space-and-frequency structure engraved according to the x-dependent term. The total exposure  $F(r, \omega)$  is expressed as the sum of the components  $F_1(r, \omega)$  associated with the different stored bits. Let us consider one of the N spectral slices which are used to encode the information address. It is supposed to be located around  $\omega_p = \omega_0 + p\Delta$ . Within that slice, while the x-independent term increases monotonously with the number of stored data, the x-dependent term may increase or decrease at each new recorded bit, depending on the phase of the quantity  $R_1^*(z, \omega_p) S_1(z, \omega_p)$  associated with this new recording. A general law applies when the relative phase of the different recorded signal pulses  $S_1(z, \omega_p)$  are randomly distributed. Then the storage of M bits results in a bleaching component proportional to M and an x-dependent term proportional to  $\sqrt{M}$ . This is valid for any spectral slice.

In other words, assigning random phases to the different information bits entails a twofold consequence. First, information is uniformly stored all over the excitation bandwidth, without any spectral "peak". Second, due to competition between bleaching and engraving only a faint x-dependent structure can be stored when  $M \gg 1$ . Hence,  $n(r, \omega, \nu)$ , as expressed by Eq.(3.5), can be replaced by its first order expansion in powers of the x-dependent term:

$$n(r, \omega, \nu) = n(\omega) \left[ 1 - \mathcal{G}(z, \omega, \nu) \exp(iKx) - \text{c. c.} \right] \exp \left[ -\mathcal{B}(z, \omega, \nu) \right] \quad (3.12)$$

where:

$$\begin{aligned}
\mathcal{G}(z, \omega, \nu) &= f_0 \cos^2(\nu) \sum_{i=1}^N \left[ R_i^*(z, \omega) S_i(z, \omega) \exp(i\omega\tau) \right] \otimes k(\omega) \\
\mathcal{B}(z, \omega, \nu) &= f_0 \cos^2(\nu) \sum_{i=1}^N \left[ |R_i(z, \omega)|^2 + |S_i(z, \omega)|^2 \right] \otimes k(\omega)
\end{aligned} \tag{3.13}$$

This implies that optimum storage is attained when  $\mathcal{B}(z, \omega, 0) \cong 1$ . As a consequence, the expansion is valid for any  $M$ , provided the same effective exposure is always used to store a bit, whatever the number of stored "1"s is. In summary, due to bleaching, only the lowest order terms of the grating can be stored.

Under those conditions, the readout pulse is not much affected by the  $x$ -dependent structure. In Eq.(3.10), solutions with accuracy of  $1/N$  are obtained by substituting  $n_p$  with:

$$\begin{aligned}
n_0(z, \omega, \nu) &= n(\omega) \exp[-\mathcal{B}(z, \omega, \nu)] \\
n_1(z, \omega, \nu) &= -n_0(z, \omega, \nu) \mathcal{G}(z, \omega, \nu) \\
n_p(z, \omega, \nu) &= 0 \text{ if } |p| > 1.
\end{aligned} \tag{3.14}$$

and by neglecting two-step interactions of the propagating field with the stored grating. Then Eq.3.10 reads:

$$\begin{aligned}
2 \frac{\partial}{\partial z} E_1(z, \omega) + 3\alpha_0 (1 - i\hat{\mathcal{H}}) \left[ \langle n_0(z, \omega, \nu) \cos^2 \nu \rangle \otimes k(\omega) \right] E_1(z, \omega) = \\
-3 \alpha_0 (1 - i\hat{\mathcal{H}}) \left[ \langle n_1(z, \omega, \nu) \cos^2 \nu \rangle \otimes k(\omega) \right] E_0(z, \omega)
\end{aligned} \tag{3.15}$$

$$2 \frac{\partial}{\partial z} E_0(z, \omega) + 3\alpha_0 (1 - i\hat{\mathcal{H}}) \left[ \langle n_0(z, \omega, \nu) \cos^2 \nu \rangle \otimes k(\omega) \right] E_0(z, \omega) = 0$$

Formal integration of Eq.3.15 leads to the following expression of the signal field emerging from the material in direction  $k_2$ :

$$\begin{aligned}
E_1(j, \omega) &= (3/2) \alpha_0 R_j(\omega) E_0(\omega) (1 - i\hat{\mathcal{H}}) \left[ \int_0^L dz \langle n_0(z, \omega, \nu) \cos^2 \nu \rangle \otimes k(\omega) \right] \\
&\times \exp \left\{ -(3/2) \alpha_0 (1 - i\hat{\mathcal{H}}) \left[ \int_0^L dz \langle n_0(z, \omega, \nu) \cos^2 \nu \rangle \right] \right\} \times \exp(i\omega\tau_{read})
\end{aligned} \tag{3.16}$$

where the probe field amplitude  $E_0(\omega)$  is modulated by the spectral shape  $R_j(\omega)$ , which is defined by Eq.(2.3). Taking advantage of the smallness of the homogeneous width as compared with the inhomogeneous one, we have omitted the

convolution of  $n_0(z, \omega, \nu)$  by  $k(\omega)$ . With reference to the above mentioned decomposition of the electric permittivity (Cf. Eq.3.3), the signal field can be regarded as resulting from combined diffraction on two gratings, an absorption one and a refraction one. The latter denomination would apply to the Hilbert transform contribution in Eq.(3.16). In conventional holography those two components of the signal are usually in quadrature. It is not so in the present situation where time-delayed pulses engrave a spectro-spatial structure in material with phase memory.

### C. Approximate solutions

For sake of simplicity we assume that the engraved holograms are spatially uniform, i.e. the functions  $\mathcal{E}(z, \omega, \nu)$  and  $\mathcal{B}(z, \omega, \nu)$  do not depend on  $z$ . It can be shown that the  $z$ -dependence of  $\mathcal{E}(z, \omega, \nu)$  is negligible in samples with the initial optical density  $D_0$  smaller than 0.5, provided the exposure is close to its optimum value. It can be shown also that the  $z$ -dependence of the bleaching function  $\mathcal{B}(z, \omega, \nu)$  has not much influence on the diffracted signal amplitude.

The power spectrum of the three laser beams involved in the storage and recovery processes is described by the same function  $W(\omega)$ , which is normalized by the condition:  $W(\omega_0)=1$ . The bleaching function can be expressed as:

$$\mathcal{B}_0(\omega, \nu) = \text{rect}\left(\frac{\omega - \omega_0}{N\Delta}\right) \cos^2 \nu N f_0 W(\omega) (1 + \alpha),$$

where  $\alpha$ , which varies between 0 and 1, is defined as the degree of memory filling. The rectangle function represents the spectral window over which storage is effected. Then Eq.(3.16) reduces to:

$$\begin{aligned} E_1(j, \omega) = & f_0 E_0(\omega_0) \mathcal{E}_2(\omega) R_j(\omega) [W(\omega)]^{1/2} \\ & \times (1 - i\hat{\mathcal{H}}) \left\{ W(\omega) D(\omega) \sum_{i=1}^N S_i [R_1^*(\omega) \exp(i\omega\tau)] \otimes k(\omega) \otimes k(\omega) \right\} \\ & \times \exp \left\{ - (1 - i\hat{\mathcal{H}}) [\mathcal{E}_1(\omega) D(\omega)] \right\} \times \exp(i\omega\tau_{\text{read}}) \end{aligned} \quad (3.17)$$

where  $D(\omega) = D_0 n(\omega)$ , where  $\mathcal{E}_n(\omega) = (3/2) \text{Ln}(10) \langle \cos^{2n} \nu \exp -\mathcal{B}_0(\omega, \nu) \rangle$  and where the quantities  $R_1(\omega)$  and  $S_1$  have been defined in section 2.

The solution given by Eq.3.17 constitutes a basis for our theoretical analysis of crosstalk which is presented below. However, to conclude the present section, let us compare the basic model with that of Sec.2. To this end some additional simplifications are needed:

(i) the homogeneous linewidth  $\Gamma$  is small as compared with the width of the spectral slices  $\Delta$  and with the modulation period  $2\pi/\tau$ . The latter parameter represents the period of the oscillatory spectral structure which is engraved by the time-delayed writing pulses as in any stimulated photon echo process [6, 7]. Then the line shape function  $k(\omega)$  reduces to a Dirac peak.

(ii) the time delay between the reference and the signal pulse,  $\tau$ , is much larger than  $2\pi/\Delta$ . Hence, the engraved structure exhibits a large number of oscillations within one spectral slice so that:

$$\hat{\mathcal{H}}\left[W(\omega)D(\omega)\sum_{l=1}^N R_l^*(\omega) S_l \exp(i\omega\tau)\right] = i W(\omega)D(\omega)\sum_{l=1}^N R_l^*(\omega) S_l \exp(i\omega\tau) \quad (3.18)$$

It results that the refractive index grating and the absorption grating bring the same contribution to the signal diffracted in the direction of  $\mathbf{k}_2$ .

(iii) the oscillators and the laser power are uniformly distributed over the storage spectral domain, i.e.  $D(\omega) \equiv D_0$  and  $W(\omega) = 1$ .

Finally the signal field can be expressed as:

$$E_1(j,\omega) = 2 f_0 E(\omega_0) D_0 \mathfrak{k}_2(\omega) R_j(\omega) \sum_{l=1}^N R_l^*(\omega) S_l \times \exp\left[-\mathfrak{k}_1(\omega) D_0\right] \times \exp[i\omega(\tau + \tau_{\text{read}})] \quad (3.19)$$

The spectral shape of this function coincides with that of the simple derivation of section 2 (Cf. Eq.2.5), which confirms the validity of the considered spectral phase addressing procedure.

## 4. CROSS TALK

### A. Characterization of the crosstalk

In fact, however, the recovery of one specific data is hampered by the existence of other constituent holograms. The cross-correlation function  $g(j, \tau + \tau_{\text{read}})$  corresponding to the read-out of binary "0" is not zero. When the

relative phase of the different data is randomly distributed, average squared noises due to different data combine additively, and maximum noise at address #j arises when all the addresses, except the j-labeled one, contain the binary "1". That is the storage situation we consider in order to estimate the upper limit of the cross-talk. Let us denote by  $g_i$  the field cross-correlation signal which is detected when the memory is read out by using the  $i$ th modulated pulse. The cross-talk rate is defined by the ratio:

$$X = |g_{i=j} / g_{i \neq j}| \quad (4.1)$$

One has to calculate the squared  $X$ , statistically averaged over the relative phase of the data, denoted by  $\langle X^2 \rangle$ . In the analytical calculations of this section, the possible sources of the crosstalk such as:

- (i) non-uniformity of the spectral distributions of oscillators and laser power,
  - (ii) temporal overlapping of the writing pulses,
  - (iii) finite homogeneous linewidth,
  - (iv) imperfect control of the spectral phase modulation,
- are considered separately whereas their coefficient is estimated numerically in Sec.5.

### B. Non-uniformity of the spectral distributions

The time separation  $\tau$  between the writing pulses is supposed to satisfy the condition  $\Delta\tau \gg 2\pi$ . Then, according to Eq.(3.17) the signal amplitude reads:

$$E_1(i, \omega) = f_0 E_0(\omega_0) \hat{g}_2(\omega) R_1(\omega) [W(\omega)]^{3/2} D(\omega) \sum_{k \neq j}^N R_k^*(\omega) \times \exp \left[ -(1-i\hat{\mathcal{H}}) \left[ \hat{g}_1(\omega) D(\omega) \right] \right] \times \exp[i\omega(\tau + \tau_{\text{read}})] \quad (4.2)$$

Under the assumption that  $D(\omega)$  and  $W(\omega)$  vary slowly on the scale of the slice width  $\Delta$ , the field cross correlation at  $T = \tau + \tau_{\text{read}}$  is expressed as:

$$g_1 = \frac{1}{N} \sum_{p=-N/2}^{p=N/2} W^2(\omega_p) \hat{g}_2(\omega_p) D(\omega_p) r_1^{(p)} \sum_{k \neq j} \epsilon_k r_k^{(p)} \exp \left[ -(1-i\hat{\mathcal{H}}) \left[ \hat{g}_1(\omega_p) D(\omega_p) \right] \right] \quad (4.3)$$

where  $\omega_p = \omega_0 + p\Delta$  and where  $\epsilon_k$  represents the random phase factor which affects



each stored bit. With the help of the statistical average property:

$$\langle \varepsilon_k \varepsilon_{k'} \rangle = \delta_{kk'} \quad (4.4)$$

and of the orthogonality relation:

$$\sum_{k=1}^N \Gamma_k^{(p)} \Gamma_k^{(p')} = N \delta_{pp'} \quad (4.5)$$

the crosstalk rate can be expressed in terms of the signal field that is emitted when a single binary "1" is stored and recovered. The phase and amplitude of this field respectively read:

$$\phi(\omega) = \hat{\mathcal{H}} \left[ \mathfrak{k}_1(\omega) D(\omega) \right] \quad (4.6)$$

$$\mathcal{E}_1(\omega) = \text{rect} \left( \frac{\omega - \omega_0}{N\Delta} \right) f_0 \mathfrak{k}_2(\omega) W^2(\omega) D(\omega) \exp \left( -\mathfrak{k}_1(\omega) D(\omega) \right)$$

One finally obtains:

$$\langle X^2 \rangle = \frac{N\Delta \times \sigma_2}{\sigma_1^2} - 1 \quad (4.7)$$

where the parameters  $\sigma_1$  and  $\sigma_2$  are expressed in terms of the field in the following way:

$$\sigma_1 = \left| \int d\omega \mathcal{E}_1(\omega) \exp[i\phi(\omega)] \right|; \quad \sigma_2 = \int d\omega \mathcal{E}_1(\omega)^2 \quad (4.8)$$

The non-uniformity of distributions contributes to the crosstalk in two ways. First it causes the frequency dependence of the weight factor  $\mathfrak{k}_2(\omega) W^2(\omega) D(\omega)$ , which degrades the orthogonality of the memory addresses. Second, it gives rise to the frequency dependence of the transmission factor of the read out pulse and of the signal, represented by the first exponential in Eq.(4.2), which disturbs both the phase and amplitude of the signal spectrum. The real and imaginary part of the exponential argument respectively correspond to absorption and refractive index dispersion. It should be stressed that the oscillator distribution which is relevant to describe those effects is the after-storage one, not the initial one. This modified distribution is represented by  $\mathfrak{k}_n(\omega) D(\omega)$  in the above expressions.

It is convenient to isolate the refraction contribution to the crosstalk

expression. According to Eq.(4.6), the refraction-independent contribution amounts to:

$$\langle X^2 \rangle_{nr} = \frac{N\Delta \sigma_2}{\left[ \int d\omega \mathcal{E}_1(\omega) \right]^2} - 1 \quad (4.9)$$

while the refraction contribution is:

$$\langle X^2 \rangle_r = 2 \frac{\int d\omega \mathcal{E}_1(\omega) \left\{ 1 - \cos \left( \hat{\mathcal{H}} \left[ \mathcal{E}_1(\omega) D(\omega) \right] \right) \right\}}{\int d\omega \mathcal{E}_1(\omega)} \quad (4.10)$$

The first expression mainly reflects the spectral shape of the laser excitation and the initial non-uniformity of the oscillator distribution. It vanishes when those distribution are frequency-independent. Instead, the refraction contribution mainly reflects the burning effect. When the oscillator initial distribution and the excitation spectral shape are flat, that contribution reads:

$$\langle X^2 \rangle_r = \frac{2}{N\Delta} \int d\omega \operatorname{rect} \left( \frac{\omega - \omega_0}{N\Delta} \right) \left\{ 1 - \cos \left( D_0 \hat{\mathcal{H}} \left[ \mathcal{E}_1(\omega) \right] \right) \right\} \quad (4.11)$$

which reflects the rectangular shaped depletion of the ground state over a  $N\Delta$  wide domain.

As an illustration of the crosstalk due to the non-uniformity of the oscillator spectral distribution, we consider that storage is effected over a  $\Delta_{hol} = N \times \Delta$  wide spectral domain, cut out of the inhomogeneously broadened line profile which is supposed to be gaussian. The FWHM of this latter function is denoted by  $\Delta_{in}$ . The laser power density is supposed to be uniform over the spectral storage domain. The quantity  $\langle X^2 \rangle_{nr}$  is plotted in Fig.1 versus  $\Delta_{hol}/\Delta_{in}$ . It has been calculated for  $D_0 \ll 1$  and for  $D_0 = 0.5$ . In that latter case, the exposure  $Nf_0$  has been taken to be unity. The frequency dependence of the transmission factor partly compensates that of the weight factor. Indeed  $\langle X^2 \rangle_{nr}$  decreases when  $D_0$  is increased. The quantity  $\langle X^2 \rangle_r$  is displayed on Fig.2, as a function of  $Nf_0$ , for  $D_0 = 0.5$  and  $\Delta_{hol}/\Delta_{in} = 0.5$ . The depletion of the ground state and the shape of the inhomogeneously broadened line contribute to the Hilbert transform with opposite signs. That gives rise to the minimum

observed on the curve.

The refractive index dispersion appears to bring the dominant contribution to the cross talk due to non-uniformity of the oscillator distribution. However, the field cross-correlation technique provides a means of eliminating this effect. Prior to be directed to the field cross-correlator, the reference pulse is passed through the engraved holograms. Hence, the reference pulse undergoes the same dispersion phase shift as the response of the hologram. Those phase shifts cancel each other in the field cross correlator. Then, the attenuation of the reference pulse, as it is passed through the sample, has also to be accounted for. Finally, Eq.(4.7) conveniently expresses the resulting crosstalk provided the phase  $\Phi(\omega)$  is let equal to 0 and the transmission factor  $\exp\left(-\frac{1}{2}(\omega)D(\omega)\right)$  in  $\mathcal{E}_1(\omega)$  is squared.

### C. Overlapping writing pulses

When there is temporal overlap between the writing pulses, the identity (3.18) no longer holds. In order to investigate the resulting crosstalk, we retain all the other simplifying hypothesis. So, the laser power as well as the molecular oscillators are supposed to be uniformly distributed over the excitation spectral domain, and the homogeneous width is infinitely small. According to Eq.(3.17) the signal field reads:

$$E_1(i, \omega) = f_0 E_0(\omega_0) \frac{1}{2} D_0 \exp\left(-\frac{1}{2} D_0\right) \times R_1(\omega)(1-i\hat{\mathcal{H}}) \left[ \sum_{k \neq j}^N R_k^*(\omega) \exp(i\omega\tau) \right] \exp(i\omega\tau_{\text{read}}) \quad (4.12)$$

With the help of Eq.2.3, the crosstalk rate can then be expressed as:

$$X = \left| \sum_{p=-N/2}^{N/2} \sum_{p'=-N/2}^{N/2} \Gamma_J^{(p)} \sum_{k \neq j} \epsilon_k \Gamma_k^{(p')} C_{p-p'} / \left( N(1-C_0) \right) \right| \quad (4.13)$$

where :

$$C_n = i \int \frac{d\omega}{\Delta} \text{rect}\left(\frac{\omega}{\Delta}\right) \hat{\mathcal{H}} \left[ \text{rect}\left(\frac{\omega}{\Delta} + n\right) \exp(i\omega\tau) \right] \exp(-i\omega\tau) \quad (4.14)$$

When  $\Delta\tau \gg 2\pi$ ,  $C_n$  vanishes, except for  $n=0$ , which leads to the cancellation of X. The quantity  $C_n$  accounts for the interaction of a spectral slice in the

readout pulse with molecules excited by another slice in the writing sequence. This feature is connected with the time delay  $\tau$  which, as in any photon echo experiment, elapses between the illumination by the probe and the signal emission. Due to the connection between time and frequency, the duration of interaction with the probe field must be at least  $\Delta^{-1}$  so that the spectral position of the excited region be determined with accuracy  $\Delta$ . If the delay between the onset of interaction and the beginning of signal emission is smaller than  $\Delta^{-1}$ , the above condition is not satisfied for the radiating molecules which are thus spread over a width larger than  $\Delta$ . The condition for avoiding coupling between different slices is thus  $\Delta\tau \gg 2\pi$ .

In Fig.3 , the functions  $|1-C_0|$ ,  $|C_1|$  and  $|C_2|$  are plotted as a function of the number of spectral modulations per spectral element,  $\Delta\tau/2\pi$ . The function  $|C_1|$  (respectively,  $|C_2|$ ) characterizes a coupling between different spectral elements whose stand side by side (respectively, are separated by the width of the elements,  $\Delta$ ). By adjusting the time delay  $\tau$  between the reference and signal pulse so that  $\Delta\tau/2\pi$  is an integer one may, according to the results in Fig.3, neglect the "cross talk" between different spectral elements except that of "neighbours". Discussion is restricted to that set of  $\tau$  values and only  $C_0$  and  $C_1$  are retained in the expression of X. With the help of Eqs (4.4) and (4.5) one obtains:

$$\langle X^2 \rangle_\tau = \left[ 2|C_1|^2 (1 - S_1^2) + (C_1^2 + C_1^{*2}) (S_2 - S_1^2) \right] / |1 - C_0|^2 \quad (4.15)$$

where:

$$S_n = \sum_{p=-N/2+n}^{N/2} r_j^{(p)} r_j^{(p-n)} / N \quad (4.16)$$

When the vector  $r_j$  belongs to the basis set of the Hadamard transform with N elements, it may be shown that  $S_2 = 2|S_1| - 1$ . Then the average squared crosstalk rate can be expressed as:

$$\langle X^2 \rangle_\tau = \left( |S_1|(1-|S_1|) (C_1 + C_1^*)^2 - (1-|S_1|) (C_1 - C_1^*)^2 \right) / |1 - C_0|^2 \quad (4.17)$$

Since  $\text{Im } C_1 \ll \text{Re } C_1$ , the maximum value of  $\langle X^2 \rangle_\tau$  is close to  $|C_1|^2 / |1 - C_0|^2$  which is reached at  $S_1 = 0.5$ . For example,  $|1 - C_0| / |C_1| = 39.4$  (respectively, 117, and 393) when  $\Delta\tau/2\pi = 1$  (respectively, 3, and 10).

#### D. Finite Homogeneous linewidth.

In the previous paragraph one has investigated the occurrence of crosstalk when the delay  $\tau$  is small. The opposite situation has to be examined. In the present calculation  $\tau$  is assumed to be much larger than  $2\pi/\Delta$  and is allowed to be as large as  $\Gamma^{-1}$ . Then the radiated field can be expressed as:

$$\begin{aligned}
 E_1(j,\omega) = & 2 f_0 E_0(\omega_0) \mathfrak{L}_2(\omega) R_j(\omega) [W(\omega)]^{3/2} \\
 & \times D(\omega) \sum_{l=1}^N R_l^*(\omega) S_l \exp(i\omega\tau) \otimes k(\omega) \otimes k(\omega) \\
 & \times \exp\left[-(1-i\hat{\mathcal{H}})\left[\mathfrak{L}_1(\omega) D(\omega)\right]\right] \times \exp(i\omega\tau_{\text{read}})
 \end{aligned} \tag{4.18}$$

All the  $\omega$ -dependent functions, except  $\exp i\omega\tau$ , are much broader than  $k(\omega)$ . It results that Eq.(4.18) can be changed into:

$$\begin{aligned}
 E_1(j,\omega) = & 2 f_0 E_0(\omega_0) \mathfrak{L}_2 R_j(\omega) D(\omega) \sum_{l=1}^N R_l^*(\omega) S_l \exp[i\omega(\tau + \tau_{\text{read}})] \\
 & \times \exp\left[-(1-i\hat{\mathcal{H}})\left[\mathfrak{L}_1(\omega) D(\omega)\right]\right] \times \exp(-2\Gamma\tau)
 \end{aligned} \tag{4.19}$$

The finite homogeneous linewidth leads to a decay factor which has no influence on the crosstalk since it is independent of  $\omega$ . This result has to be contrasted with those reported in the case of the standard hole burning storage procedure [1]. Indeed, the lorentzian shape of the homogeneous profile then generates a cross-talk between data stored at different positions in the absorption band.

#### E. Systematic noise of the phase modulator

According to Ref.[20], the main limitation of the phase-encoding technique in space-domain holography arises from a systematic noise of the phase modulator. Let us follow the path of Ref.[20] and suppose that the binary values of the phase are 0 and  $\pi+\epsilon$  instead of being 0 and  $\pi$ , where

$\epsilon \ll \pi$  is the systematic phase noise. As a result, the orthogonality of the frequencies  $r_1$  (Eq.(2.2)) is spoiled. The resulting contribution to the above defined quadratic average of the crosstalk rate is given by:

$$\langle X^2 \rangle_m = N \times \left( \sin^2 \frac{\epsilon}{2} \right)^2 \quad (4.20)$$

This expression is valid provided the unmodulated pulse corresponding to the sequence  $r_1=(1, 1, 1, \dots)$  is not used as a reference. Otherwise the noise would be proportional to  $\epsilon$  rather than to  $\epsilon^2$ .

## 5. NUMERICAL MODELLING

### A. Numerical Procedure

The above analytical investigation suffers from two limitations. First, a combination of the different roots of cross talk is neglected so far because of complexity of the problem. Second, the statistically averaged quantity  $\langle X^2 \rangle$  only gives partial information on the crosstalk effect to be expected in a definite readout operation. The numerical model is able to combine the different contributions to the crosstalk and to calculate the amplitude of the cross-correlation signal emitted at the readout of any given set of stored data.

The numerical model is based on the theoretical description of Sec.3. It proceeds from the solution of Eq.(3.15). The perturbative expansion of  $n(r, \omega, \nu)$ , given by Eq.(3.12), was used to simplify the analytical calculations. This approximation is avoided in the numerical model. Instead, the Fourier components of  $n(r, \omega, \nu)$  which occur in Eq.(3.15) are computed exactly. The storage capacity is kept fixed to  $N=32$ , which means that the storage spectral domain is divided into 32 equal slices. The delay  $\tau$  is kept equal to  $2\pi/\Delta$ , so that the engraved structure only exhibits one oscillation within one spectral slice. The homogeneous line  $k(\omega) = \frac{\Gamma}{\pi(\omega^2 + \Gamma^2)}$  of the spectrally selective sample has been replaced by  $k'(\omega)$ :

$$k'(\omega) = \alpha_{DW} k(\omega) + (1 - \alpha_{DW}) k_p(\omega), \quad (5.1)$$

$$k_p(\omega) = \begin{cases} \frac{|\omega|}{\Gamma_p^2} \times \exp\left(-\frac{|\omega|}{\Gamma_p}\right), & \omega \leq 0 \\ 0, & \omega > 0 \end{cases} \quad (5.2)$$

where the function  $k_p(\omega)$  stands for a phonon sideband with a characteristic width  $\Gamma_p = 10 \text{ cm}^{-1}$ , and  $\alpha_{DW} = 0.9$  is the Debye-Waller factor. PHB through the phonon sideband decreases spectral selectivity of the recording material. The homogeneous linewidth,  $2\Gamma$ , is set equal to 1/90 times the slice width. The other parameters, including the hologram width  $\Delta_{hol}$ , the laser bandwidth  $\Delta_{las}$ , the inhomogeneous width  $\Delta_{in}$ , the exposure  $Nf_0$ , and the initial density  $D_0$  can be varied. The laser spectrum and the inhomogeneous distribution are represented by gaussian functions. The light polarization is linear and the model is operated with molecules oriented in the direction of the electric field.

For each set of the above parameters, the storage and readout process is repeated 400 times. Each time the 32 addresses of the memory are allocated to a different set of binaries "0" and "1". The relative phase shift of the 32 data is randomly generated, since that minimizes the crosstalk. The stored data are retrieved with the help of the 32 appropriate readout pulses. The dispersion effect produced by the non-uniformity of the oscillator distribution is compensated following the procedure described at the end of Sec. 4.B.

## B. Computation results

In the absence of noise due to the phase modulator, the cross-talk only results from the finite delay between pulses and from the non-uniform spectral distributions of oscillators and of the light energy. When  $N-1$  binaries "1" have been stored, the corresponding quadratic contributions to the cross-talk, as they are calculated in Sec.4, are respectively denoted by  $\langle X^2 \rangle_\tau$  and  $\langle X^2 \rangle_{nr}$ . Those quantities have to be compared with the averaged quadratic cross-talk deduced from the  $400 \times 32$  computed values of cross-correlation signal amplitudes. This latter quantity is denoted by  $\langle X^2 \rangle_c$ . If there is no correlation between the cross-talk due to the finite delay and the one due to

non-uniform spectral distributions, the sum  $\langle X^2 \rangle_{\tau} + \langle X^2 \rangle_{nr}$  must be close to  $\langle X^2 \rangle_c$ .

The model is checked first in the limit of small optical density and large values of the ratios  $\Delta_{in}/\Delta_{hol}$  and  $\Delta_{las}/\Delta_{hol}$ , where the crosstalk is only due to the finite delay between the pulses of the writing sequence. A reasonable agreement is observed between the computation and the analytical calculation of the cross-talk (Cf. Table 1).

Then, realistic values are assigned to the parameters  $\Delta_{in}$ ,  $\Delta_{las}$ ,  $\Delta_{hol}$ . With  $\Delta_{in}/\Delta_{hol} = 2.27$  and  $\Delta_{las}/\Delta_{in} = 1.09$ , the model is operated for different values of the effective exposure and of the initial optical density  $D_0$ . The results are summarized in tables 2 and 3, which correspond respectively to  $D_0 = 0.05$  and  $D_0 = 0.5$ . Satisfactory agreement is observed between  $\langle X^2 \rangle_c$  and  $\langle X^2 \rangle_{\tau} + \langle X^2 \rangle_{nr}$ . Besides, even in that case of short delay between the writing pulses, the non-uniformity of spectral distributions appears to be the main source of cross talk.

A better representation of the cross talk effect is given by the histograms plotted on Fig 4. Each one is built with the results of 12800 read out processes, carried out for a definite set of storage parameters. In this calculation the number of the binaries "1" stored in the memory is not assigned to be  $N-1$  as before. Instead the memory is occupied by a randomly generated set of "0"s and "1"s. On average, the memory contains sixteen "0"s and the same number of "1"s. The previously defined cross-talk ratio mainly reflects the standard deviation which affects the signal produced by a bit "0". But it appears that it is always possible to discriminate the "0"s from the "1"s since the two sets of signal amplitude corresponding to the stored binaries do not overlap.

## 6.SUMMARY

We have proposed and theoretically analysed a novel method of multiplexing holograms in spectral-hole-burning glassy materials with practically unlimited storage times. The method makes use of reference pulses with phase-encoded spectral amplitude. In fact, this idea was recently suggested in the space-domain holography [18, 19, 20]. As applied to the



time-domain holography the phase-encoding technique has a potential for providing a spectrally selective memory which, in contrast with the method of multiplexing by laser beam splitting, delay and recombination, does not need any mechanical adjusting of the set-up. We also insist on the point that the recalled signal, including two-dimensional images, can be analysed by a simple method of field cross correlation [14, 24, 25].

Numerical modelling reveals that in the case of  $N=32$  ( $N$  is the number of elements of the spectral amplitude of phase-encoded reference pulses, and, at the same time, the maximum number of multiplexed holograms) the cross talk between different constituent holograms is tolerable.

## REFERENCES

- [1] *Persistent Spectral Hole-Burning: Science and Applications*, W. E. Moerner, ed. (Springer, Berlin, 1988).
- [2] B. Kohler, S. Bernet, A. Renn, U. P. Wild, "Holographic optical data storage of 2000 images for photochemical hole burning", Proceedings of the topical meeting on Persistent Spectral Hole Burning, September 26-28, 1991, Monterey, California.
- [3] A. Szabo, "Frequency selective optical memory," U.S. Patent 3,896,420 (July 22, 1975).
- [4] G. Castro, D. Haarer, R. Morton, R. M. McFarlane, and H. P. Trommsdorff, "Frequency selective optical data storage system," U.S. Patent 4,101,976 (July 18, 1978).
- [5] T. W. Mossberg, "Time-domain frequency-selective optical data storage," *Optics Letters* 7, 77-79 (1982).
- [6] T.W. Mossberg, A. Flusberg, R. Kachru, S.R. Hartmann, "Total scattering cross-section for Na on He measured by stimulated photon echo", *Phys. Rev. Lett.*, 42, 1665-69 (1979). [7] W. H. Hesselink and D. A. Wiersma, "Picosecond photon echoes stimulated from an accumulated grating," *Phys. Rev. Lett.* 43, 1991-94 (1979).
- [8] W. R. Babbitt and T. W. Mossberg, "Time-domain frequency-selective optical data storage in a solid-state material," *Opt. Commun.* 65, 185-8 (1988).
- [9] M. Mitsunaga, R. Yano, and N. Uesugi, "Time- and frequency-domain hybrid optical memory: 1.6-kbit data storage in  $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ ," *Optics Letters* 16, 1890-92 (1991).
- [10] *Zero-Phonon Lines and Spectral Hole Burning in Spectroscopy and Photochemistry*, O. Sild and K. Haller, eds. (Springer, Berlin, 1988).
- [11] A. Rebane, R. Kaarli, P. Saari, A. Anijalg, and K. Timpmann, "Photochemical time-domain holography of weak picosecond pulses," *Opt. Commun.* 47, 173-76 (1983).
- [12] P. Saari, R. Kaarli, and A. Rebane, "Picosecond time- and space-

domain holography by photochemical hole burning," *J.Opt.Soc.Am.B* 3, 527-534 (1986).

[13] A. Rebane, J. Aaviksoo, J. Kuhl, "Storage and time reversal of femtosecond light signals via persistent spectral hole burning holography", *Appl. Phys. Lett.*, 54, 93-5 (1989).

[14] A. Débarre, J.- C. Keller, J.- L. Le Gouët, P. Tchénio, and J.- P. Galaup, "Optical information storage in condensed matter with stochastic excitation," *J.Opt.Soc.Am.B* 8, 2529-2536 (1991).

[15] J. M. Zhang, D.J. Gauthier, J. Huang, T.W. Mossberg, "Use of phase-noisy laser fields in the storage of optical pulse shape in inhomogeneously broadened absorbers", *Opt. Lett.*, 16, 103-5 (1991)

[16] A. Shen, Y. S. Bai, R. Kachru, "Reprogrammable optical matched filter for biphas-coded pulse compression", *Opt. Lett.*, 17, 1079-81 (1992).

[17] Special issue on *Spatial Light Modulators*, *Applied Optics* 31, 3879-4041 (1992).

[18] Y. Taketomi, J. E. Ford, H. Sasaki, J. Ma, Y. Fainman, and S. H. Lee, "Incremental recording for photorefractive hologram multiplexing," *Optics Letters* 16, 1774-1776 (1991).

[19] C. Denz, G. Pauliat, G. Roosen, and T. Tschudi, "Volume hologram multiplexing using a deterministic phase encoding method," *Optics Communications* 85, 171-176 (1991).

[20] C. Denz, G. Pauliat, G. Roosen, and T. Tschudi, "Potentialities and limitations of hologram multiplexing by using the phase-encoding technique," *Applied Optics* 31, 5700-5705 (1992).

[21] J. P. Heritage, A. M. Weiner, and R. N. Thurston, "Picosecond pulse shaping by spectral phase and amplitude manipulation," *Optics Letters* 10, 609-611 (1985).

[22] A. M. Weiner and D. E. Leiard, "Generation of terahertz-rate trains of femtosecond pulses by phase-only filtering," *Optics Letters* 15, 51-53 (1990).

[23] A. M. Weiner, D. E. Leiard, D. H. Reitze, and E. G. Paek, "Femtosecond spectral holography," *IEEE J. Quantum Electronics* 28, 2251-2261 (1992).

[24] A. Débarre, J.- C. Keller, J.- L. Le Gouët, A. Richard, and

P. Tchénio, "An amplitude correlator for broadband laser source characterization," *Optics Communications* 73, 309-313 (1989).

[25] A. Débarre, J.- C. Keller, J.- L. Le Gouët, and P. Tchénio, "Field cross-correlation retrieval of optically stored data," *J.Opt.Soc.Am.B* 8, 153-159 (1991).

[26] N. Morita and T. Yajima, "Ultrahigh-time-resolution coherent transient spectroscopy with incoherent light," *Physical Review A* 30, 2525-2536 (1984).

[27] H. Nakatsuka, A. Wakamiya, K. M. Abedin, and T. Hattori, "Accumulated photon echoes by using a nonlaser light source," *Optics Letters* 18, 832-834 (1993).

[28] A. K. Jain, *Fundamentals of Digital Image Processing* (Prentice-Hall Inc., Englewood Cliffs, USA, 1989).

[29] R. Skaug and J. F. Hjelmstad, *Spread Spectrum in Communication* (Peter Peregrinus Ltd., London, 1985).

[30] H. Sonajalg and P. Saari, "Diffraction efficiency in space-and-time domain holography," to be published in *J.Opt.Soc.Am.B*.

[31] R. Sarapuu, "Theoretical problems of space-and-time domain holography in photochromic media with spectral and polarization selectivity" Ph.D. Dissertation (Institute of Physics, Tartu 1989).

[32] L. Allen and J. H. Eberly, *Optical Resonance and Two-Level Atoms* (John Wiley and Sons, New York, 1975).

## FIGURE CAPTIONS

Fig.1. Non-refractive component of the cross-talk as a function of  $\Delta_{in}/\Delta_{hol}$ , when the non-uniform distribution of oscillators is represented by a gaussian function. The laser spectral density is assumed to be uniform over the  $\Delta_{hol}$ -wide storage domain. The initial optical density at the centre of the absorption band is 0.05 for (a) and 0.5 for (b). For the latter curve the calculation is performed with  $Nf_0=0.5$ .

Fig.2. Refractive component of the cross-talk as a function of the exposure  $Nf_0$ . The ratio  $\Delta_{in}/\Delta_{hol}$  is set equal to 0.5. The laser spectrum is flat over the storage interval. The initial optical density is  $D_0=0.5$ .

Fig.3. Influence of the the refractive index grating: functions (a)  $|1-C_0|$ , (b)  $|C_1|$ , and (c)  $|C_2|$  (see Eq.(4.14) );  $\Delta$  is the width of the spectral element and  $\tau$  is the time separation of the recording pulses.

Fig.4. Histograms of the restored data. The computation is effected for 400 different recordings of 32 data each. The 32 addresses of the memory are read out for each recording. The exposure, the inhomogeneous width, the laser width, are respectively given by:  $Nf_0=1.0$ ,  $\Delta_{in}/\Delta_{hol} = 2.27$  and  $\Delta_{las}/\Delta_{in}=1.09$ . The small density limit ( $D_0=0.05$ ) is considered in (a). The density is set equal to 0.5 for the computation of curve (b).

TABLES

$Nf_0(1+\alpha)$	1/50	1
$\langle X^2 \rangle_c$	$5.1 \cdot 10^{-4}$	$5.3 \cdot 10^{-4}$
$\langle X^2 \rangle_{nr}$	0	0
$\langle X^2 \rangle_\tau$	$4.3 \cdot 10^{-4}$	$4.3 \cdot 10^{-4}$

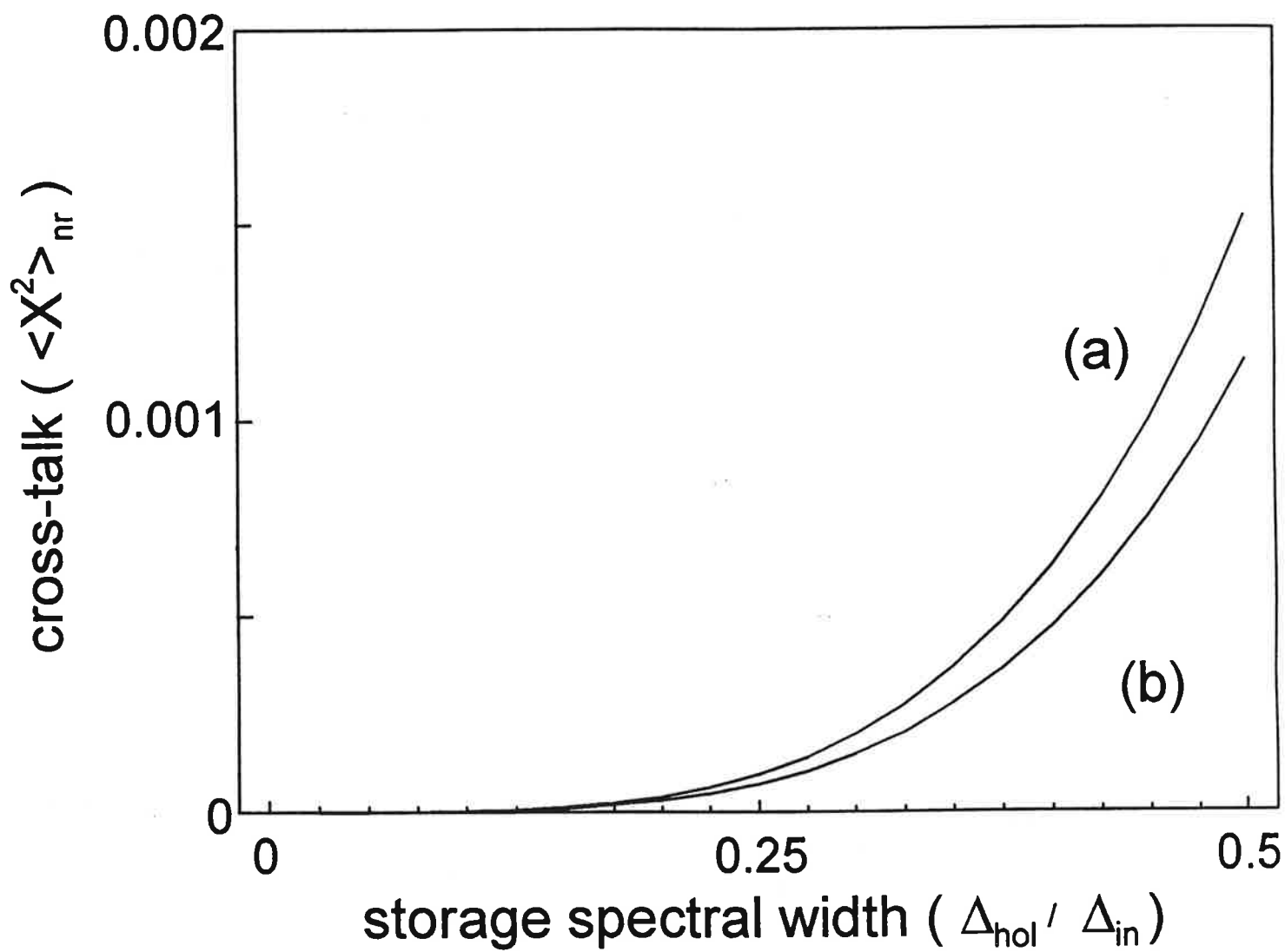
Table 1: Cross-talk due to the finite delay between the pulses

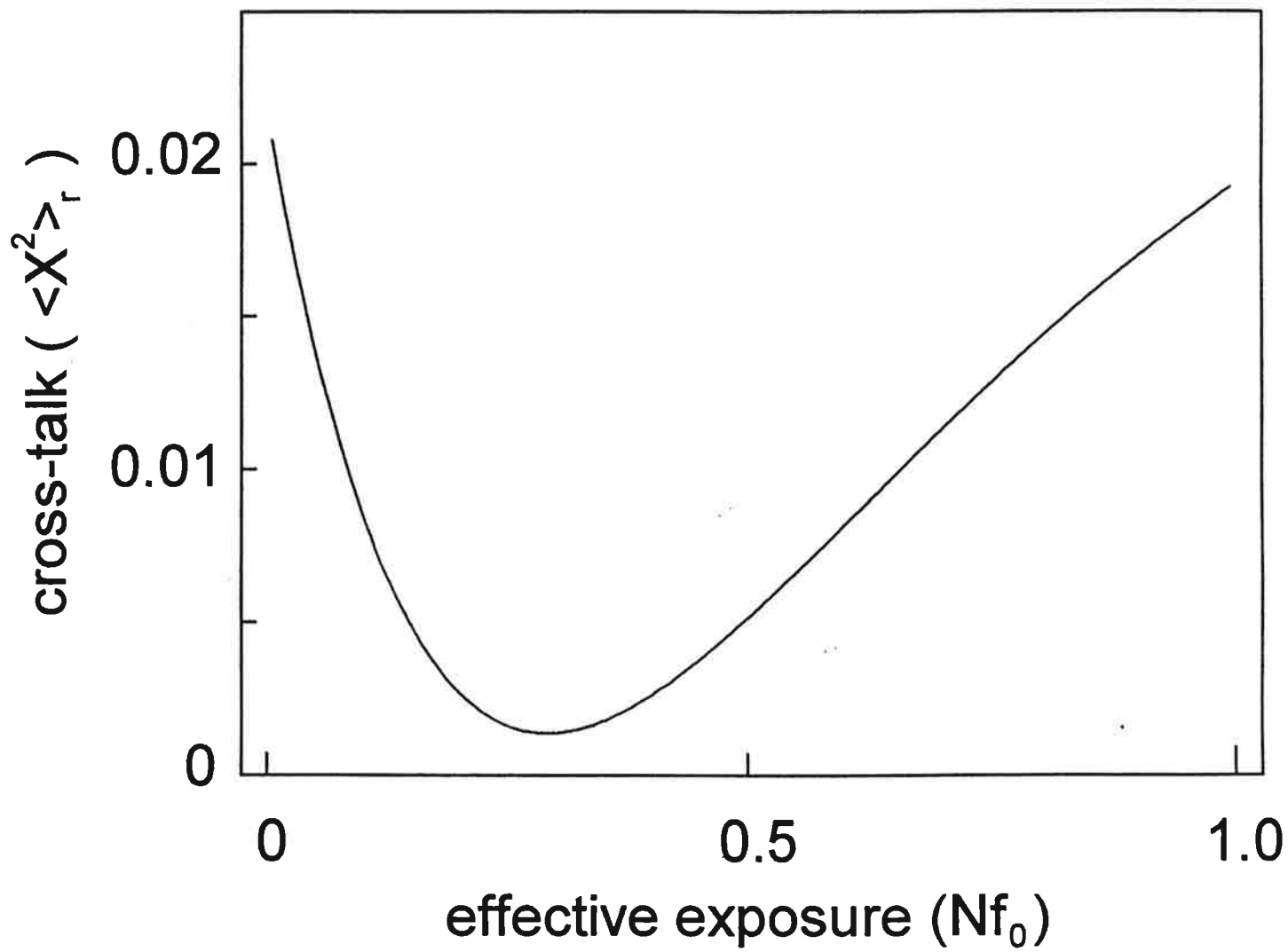
$Nf_0(1+\alpha)$	1/50	1
$\langle X^2 \rangle_c$	$10.8 \cdot 10^{-3}$	$6.1 \cdot 10^{-3}$
$\langle X^2 \rangle_{nr}$	$10.0 \cdot 10^{-3}$	$5.4 \cdot 10^{-3}$
$\langle X^2 \rangle_\tau$	$0.4 \cdot 10^{-3}$	$0.4 \cdot 10^{-3}$

Table 2: cross-talk in a nearly transparent sample ( $D = 0.05$ )

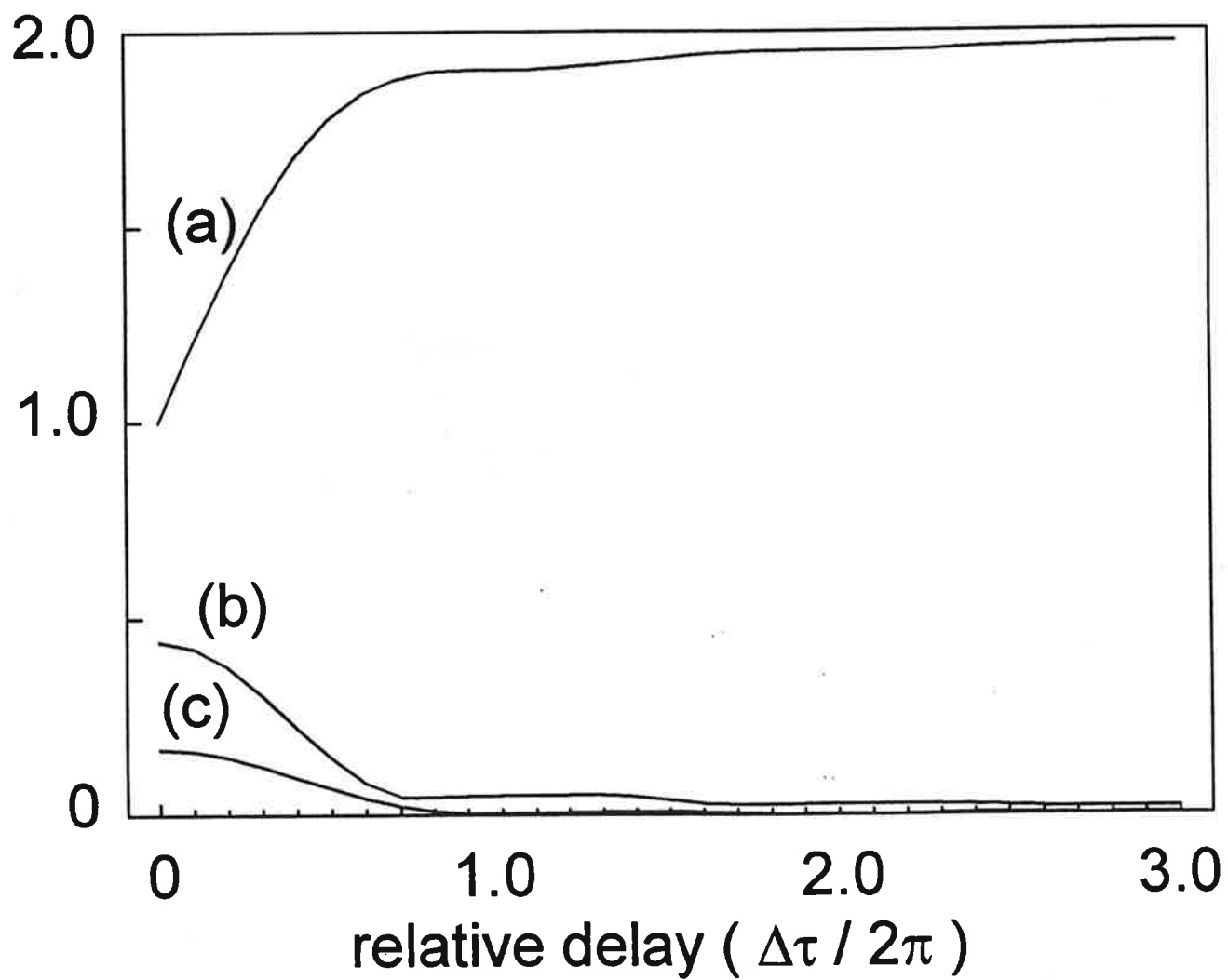
$Nf_0(1+\alpha)$	1/50	1
$\langle X^2 \rangle_c$	$4.7 \cdot 10^{-3}$	$5.7 \cdot 10^{-3}$
$\langle X^2 \rangle_{nr}$	$4.0 \cdot 10^{-3}$	$5.0 \cdot 10^{-3}$
$\langle X^2 \rangle_\tau$	$0.4 \cdot 10^{-3}$	$0.4 \cdot 10^{-3}$

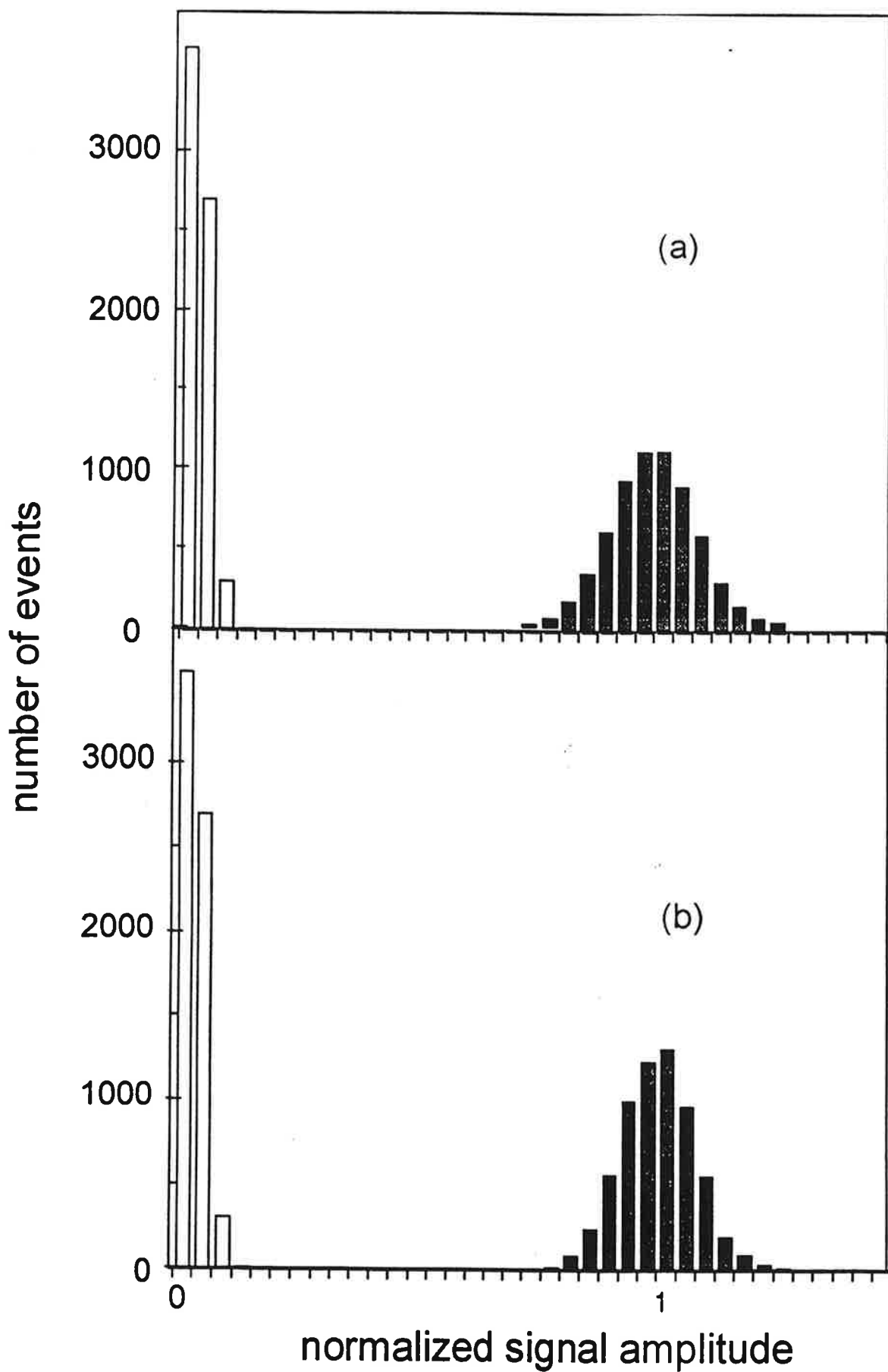
Table 3: cross-talk in an absorbing sample ( $D = 0.5$ )





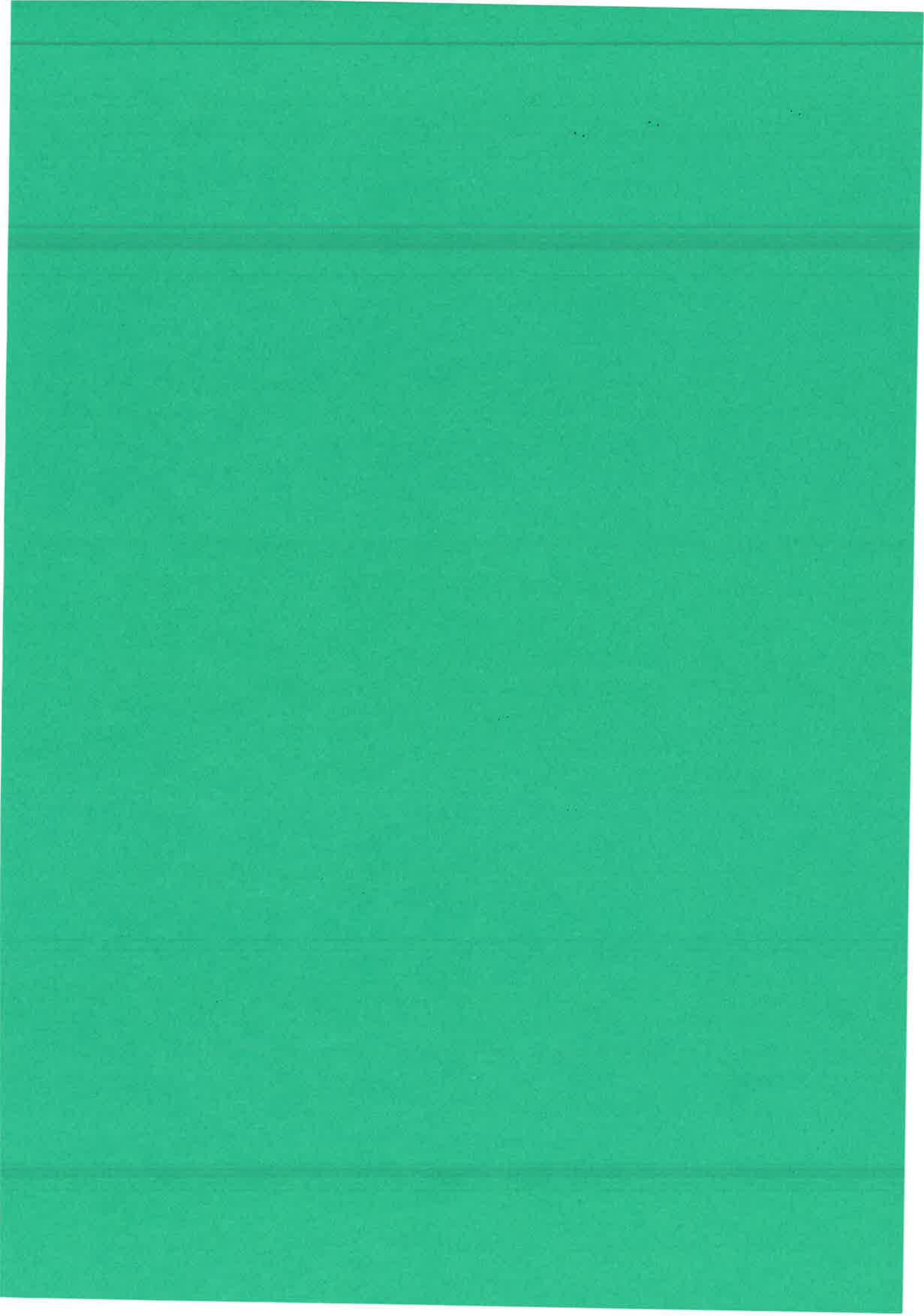














# Bibliographie

- [1] E. A. Swanson, D. Huang, M. R. Hee, J. G. Fujimoto, C. P. Lin, and C. A. Puliafito. High speed optical coherence domain reflectometry. *Opt. Lett.*, **17**:151–153, 1992.
- [2] Special issue: Time resolved imaging and diagnostic in medicine. *Opt. & Phot. N.*, **4**(10), 1993.
- [3] S. Asaka, H. Nakatsuka, M. Fujiwara, and M. Matsuoka. Accumulated photon echoes with incoherent light in Nd<sup>3+</sup> doped silicate glass. *Phys. Rev. A*, **29**:2286–2289, 1984.
- [4] N. Morita and T. Yajima. Ultra-high time-resolution coherent transient spectroscopy with incoherent light. *Phys. Rev. A*, **30**:2525–2536, 1984.
- [5] M. Fujiwara, R. Kuroda, and H. Nakatsuka. Measurement of ultrafast dephasing time of cresyl fast violet in cellulose by photon echoes with incoherent light. *J. Opt. Soc. Am. B*, **2**:1634–1639, 1985.
- [6] T. Hattori and T. Kobayashi. Femtosecond dephasing in a polydiacetylene film measured by degenerate four-wave mixing with an incoherent nanosecond laser. *Chem. Phys. Lett.*, **133**:230–234, 1987.
- [7] N. Morita, T. Tokizaki, and T. Yajima. Time-delayed four-wave mixing using incoherent light for observation of ultrafast population relaxation. *J. Opt. Soc. Am. B*, **4**:1269–1275, 1987.
- [8] M. Tomita and M. Matsuoka. Ultrafast pump-probe measurement using intensity correlation of incoherent light. *J. Opt. Soc. Am. B*, **3**:560–563, 1986.

- [9] A. Débarre, J.-L. Le Gouët, I. Lorgeré, and P. Tchério. Field cross-correlation of time-delayed DFWM signals for population lifetime measurement with incoherent light. *J. Phys. B.*, **26**:3435–3445, 1993.
- [10] Y. S. Bai, W. R. Babitt, N. W. Carlson, and T. W. Mossberg. Real time optical waveform convolver/cross-correlator. *Appl. Phys. Lett.*, **45**:714–716, 1984.
- [11] X. A. Shen, Y. S. Bai, and R. Kachru. Reprogrammable optical matched filter for biphas-coded pulse compression. *Opt. Commun.*, **17**:1079–1081, 1992.
- [12] W. E. Moerner, editor. *Persistent spectral hole-burning: science and application*, volume 44 of *Topics in current physics*. Springer-Verlag, 1988.
- [13] H.-H. Liu, P.-H. Cheng, and J. Wang. Spatially coherent white-light interferometer based on a point fluorescent source. *Opt. Commun.*, **18**:678–680, 1993.
- [14] K. Takada, I. Yokohama, K. Chida, and J. Noda. New measurement system for fault location in optical waveguide devices based on an interferometric technique. *Appl. Opt.*, **26**:1603–1606, 1987.
- [15] P. Juncar and J. Pinard. A new method for frequency calibration and control of a laser. *Opt. Commun.*, **14**:439–441, 1975.
- [16] H. J. Eichler, U. Klein, and D. Langhan. Coherence time measurement of picosecond pulses by a light induced grating method. *Appl. Phys.*, **21**:215–219, 1980.
- [17] A. S. L. Gomes, L. H. Acioli, Cid B. De Araújo, and J. R. Rios Leite. Dispersion of coherence spikes of incoherent broadband dye lasers. *Opt. Commun.*, **73**:475–478, 1989.
- [18] L. H. Acioli, A. S. L. Gomes, and J. R. Rios Leite. Measurement of high-order optical nonlinear susceptibilities in semiconductor-doped glass. *Opt. Commun.*, **73**:475–478, 1989.
- [19] P. Roussignol, D. Ricard, J. Lukasik, and C. Flytzanis. New results on optical phase conjugation in semiconductor-doped glasses. *J. Opt. Soc. Am. B*, **4**:5–13, 1987.



- [20] M. D. Duncan, R. Mahon, L. L. Tankersley, and J. Reintjes. Time-gated imaging through scattering media using stimulated raman amplification. *Opt. Commun.*, **16**:1968–2121, 1991.
- [21] V. Dominic, X. S. Yao, R. M. Pierce, and J. Feinberg. Measuring the coherence time of mode-locked laser pulses in real time. *Appl. Phys. Lett.*, **56**:521–523, 1990.
- [22] R. Hanbury-brown. *The intensity interferometer*. Taylor and Francis, London, 1974.
- [23] A. Labeyrie. High resolution techniques in optical astronomy. In E. Wolf, editor, *Progress in optics Vol. XIV*, pages 47–87. 1976.
- [24] Z. Y. Ou, E. C. Cage, B. E. Magill, and L. Mandel. Fourth-order interference technique for determining the coherence time of a light beam. *J. Opt. Soc. Am. B*, **6**:100–103, 1989.
- [25] Y. Miyamoto, T. Kuga, M. Baba, and M. Matsuoka. Measurement of ultrafast optical pulses with two-photon interference. *Opt. Lett.*, **18**:900–902, 1993.
- [26] M. A. Bouchène, A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët, and P. Tchénio. Observation of  $0\pi$  pulse formation with incoherent light. *J. Opt. Soc. Am. B*, :281–289, 1992.
- [27] A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët, and P. Tchénio. Field cross-correlation retrieval of optically stored data. *J. Opt. Soc. Am. B*, **8**:153–159, 1991.
- [28] R. C. Youngquist, S. Carr, and D. E. N. Davis. Optical coherence-domain reflectometry: a new optical evaluation technique. *Opt. Lett.*, **12**:159, 1987.
- [29] A. F. Fercher, K. Mengedoht, and W. Werner. Eye-length measurement by interferometry with partially coherent light. *Opt. Lett.*, **13**:186–188, 1988.
- [30] X. Clivaz, F. Marquis-Weible, R. P. Salathé, R. P. Novak, and H. H. Gilgen. High resolution reflectometry in biological tissues. *Opt. Lett.*, **17**:4–6, 1992.

- [31] K. M. Yoo, Q. Xing, and R. R. Alfano. Imaging object hidden in highly scattering media using femtosecond second-harmonic-generation cross-correlation technique. *Opt. Lett.*, **13**:1019–1021, 1991.
- [32] M. R. Hee, J. A. Izatt, J. M. Jacobson, and J. G. Fujimoto. Femtosecond transillumination optical coherence tomography. *Opt. Lett.*, **18**:950–952, 1993.
- [33] E. Leith *et al.* Electronic holography and speckle methods for imaging through tissue using femtosecond gated pulses. *Appl. Opt.*, **30**:4204–4210, 1991.
- [34] E. Leith *et al.* Imaging through scattering media with holography. *J. Opt. Soc. Am. A*, **9**:1148–1153, 1992.
- [35] T. Kobayashi, A. Terasaki, T. Hattori, and K. Kurokawa. The application of incoherent light for the study of femtosecond-picosecond relaxation. *Appl. Phys. B*, **47**:107–125, 1988.
- [36] R. Beach and S. R. Hartmann. Incoherent photon echoes. *Phys. Rev. Lett.*, **53**:663–666, 1984.
- [37] H. Nakatsuka, M. Tomita, M. Fujiwara, and S. Asaka. Subpicosecond photon echoes by nanosecond laser pulses. *Opt. Commun.*, **52**:150–152, 1984.
- [38] P. Tchénio, A. Débarre, J.-C. Keller, and J.-L. Le Gouët. Optical coherent transients induced by time-delayed correlated broad-bandwidth pulses in the strong field regime. *Phys. Rev. A*, **39**:1970–1988, 1989.
- [39] B. Blümich. White noise non-linear system analysis in nuclear magnetic resonance spectroscopy. *Prog. Nucl. Magn. Reson. Spectrosc.*, **19**:331–417, 1987.
- [40] B. Blümich. Two-dimensionnal interferometry. *Rev. Sci. Instrum.*, **58**:911–919, 1987.
- [41] A. A. Gorokhovskii, R. K. Kaarli, and L. A. Rebane. *JETP lett.*, **20**:216, 1974.
- [42] B. M. Kharlamov and R. I. Personov and L. A. Bykhovskaya. *Opt. Commun.*, **12**:191, 1974.

- [43] Optical Society of America. *Persistent spectral hole-burning: science and application*, September 1991.
- [44] Optical Society of America. *Spectral hole burning and luminescence line narrowing: science and applications*, September 1992.
- [45] G. Pauliat and G. Rosen. Mémoires holographiques mettant en œuvre des photoréfractifs. In *OPTO 92*, 1992.
- [46] T. W. Mossberg. Time-domain frequency-selective optical data storage. *Opt. Commun.*, **7**:77–79, 1982.
- [47] S. Kröll, L. E. Jusinski, and R. Kachru. Frequency chirped copropagating multiple bit stimulated echo storage and retrieval in  $\text{Pr}^{3+}:\text{YAlO}_3$ . *Opt. Commun.*, **16**:517–519, 1991.
- [48] Y. S. Babitt, W. R. Babitt, and T. W. Mossberg. Coherent transient optical pulse-shape storage/recall using frequency-swept excitation pulse. *Opt. Commun.*, **11**:724–726, 1986.
- [49] J. M. Zhang, D. J. Gautier, J. Huang, and T. W. Mossberg. Use of phase-noisy laser fields in the storage of optical pulse-shapes in inhomogeneously broadened absorbers. *Opt. Commun.*, **16**:103–105, 1991.
- [50] C. Frøehly, B. Colombeau, and M. Vampouille. Shaping and analysis of picosecond light pulses. In E. Wolf, editor, *Progress in Optics*, pages 65–153. North-Holland, 1983.
- [51] A. Weiner *et al.* Programmable shaping of femtosecond optical pulses by use of 128 element liquid crystal phase modulator. *IEEE J. Quantum Electron.*, **28**:908–919, 1992.
- [52] M. Mitsunaga and N. Uesugi. 248-bit optical data storage in  $\text{Eu}^{3+}:\text{YAlO}_3$  by accumulated photon echoes. *Opt. Commun.*, **15**:195–197, 1990.

- [53] P. Saari, R. Kaarli, and A. Rebane. Picosecond time and space domain holography by photochemical hole burning. *J. Opt. Soc. Am. B*, **3**:527–533, 1986.
- [54] M. K. Kim and R. Kachru. Storage and phase conjugation of multiple images using backward-stimulated echoes in  $\text{Pr}^{3+}:\text{LaF}_3$ . *Opt. Commun.*, **12**:593–595, 1987.
- [55] A. Rebane and O. Ollikainen. Picosecond time-space holographic interferograms stored by persistent spectral hole burning. *Opt. Commun.*, **78**:327–331, 1990.
- [56] A. Szabo. Frequency selective optical memory. U. S. Patent 3896420, 1975.
- [57] B. Kohler, S. Bernet, A. Renn, and U. P. Wild. Holographic optical data storage of 2000 images by photochemical hole burning. In *Persistent spectral hole-burning: science and application*, pages 46–49. Optical Society of America, September 1991.
- [58] S. Bernet, B. Kohler, A. Rebane, A. Renn, and U. P. Wild. Spectral hole burning and holography V: Asymmetric diffraction from thin holograms. *J. Opt. Soc. Am. B*, **9**:987–991, 1992.
- [59] C. De Caro, A. Renn, and U. P. Wild. Hole-burning, Stark effect and data storage 2: holographic recording and detection of spectral holes. *Appl. Opt.*, **30**:2890–2898, 1991.
- [60] A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët, P. Tchénio, and J.-P. Galaup. Optical information storage in condensed matter with stochastic excitation. *J. Opt. Soc. Am. B*, **12**:2529–2536, 1991.
- [61] R. Skaug and J.F. Hjelmstad. *Spread spectrum in communication*, volume 12 of *Telecommunications*, chapter 3. IEE, 1985.
- [62] A. Débarre, J.-C. Keller, J.-L. Le Gouët, and P. Tchénio. An amplitude correlator for broadband laser source characterization. *Opt. Commun.*, **73**:309–313, 1989.

**Nom:** LORGERÉ  
**Prénom:** Ivan  
**Titre:** Corrélation de champ et mélange à quatre ondes

**Résumé:** Ce travail présente une étude théorique et expérimentale de la corrélation de champ et du mélange à quatre ondes dans deux domaines d'applications: la spectroscopie résolue en temps en lumière incohérente et le traitement optique de l'information.

L'étude spectroscopique est consacrée au problème de la mesure de temps de vie atomique en lumière incohérente. Elle est motivée par la faible sensibilité des méthodes déjà expérimentées. Elle comprend un travail théorique, qui met en évidence les raisons de l'inadéquation de ces méthodes, où l'on détecte l'énergie du signal, et montre que la détection par corrélation de champ est mieux adaptée à l'utilisation de la lumière incohérente. Une des méthodes de corrélation a été expérimentée. Les résultats confirment les prédictions théoriques.

L'expérience a montré la nécessité de développer un corrélateur d'amplitude de grande sensibilité. Deux corrélateurs, fonctionnant selon deux principes différents, ont été réalisés. Leur caractérisation a permis de dégager les facteurs déterminant leur sensibilité dans une situation expérimentale, et de spécifier leurs domaines d'applications privilégiés respectifs.

Dans la dernière partie de ce travail, on s'est intéressé au stockage des images dans la bande d'absorption des matériaux montrant la propriété de "hole burning" spectral permanent. On propose une nouvelle méthode pour coder les différentes images stockées, qui doit permettre d'accéder aux images à la cadence vidéo. Cette méthode exploite le mélange à quatre ondes et la corrélation de champ comme technique de reconnaissance de forme temporelle pour accéder aux images. L'étude théorique approfondie que nous avons menée démontre la validité de cette approche dans un contexte expérimental.

### Mots clés

Corrélation de champ	Spectroscopie résolue en temps
Mélange à quatre ondes	Traitement optique de l'information
Lumière incohérente	Holographie temporelle

