



HAL
open science

Absorption à deux photons et effets de corrélation quantique dans les semiconducteurs

Fabien Boitier

► **To cite this version:**

Fabien Boitier. Absorption à deux photons et effets de corrélation quantique dans les semiconducteurs. Optique [physics.optics]. Ecole Polytechnique X, 2011. Français. NNT: . pastel-00575928v2

HAL Id: pastel-00575928

<https://pastel.hal.science/pastel-00575928v2>

Submitted on 1 Apr 2011

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

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



Thèse présentée pour obtenir le grade de
DOCTEUR DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE
Spécialité : Physique

par

Fabien BOITIER

**Absorption à deux photons et effets de corrélation quantique
dans les semiconducteurs**

soutenue le 1^{er} mars 2011 devant le Jury composé de :

Alain ASPECT	LCFIO, Palaiseau	Président du Jury
John RARITY	University of Bristol, Bristol	Rapporteur
Juan Ariel LEVENSON	LPN-CNRS, Marcoussis	Rapporteur
Philippe GRANGIER	LCFIO, Palaiseau	
Barak DAYAN	Weizmann Institute of Science, Rehovot	
Emmanuel ROSENCHER	ONERA, Chatillon	
Antoine GODARD	ONERA, Palaiseau	CoDirecteur de thèse
Claude FABRE	LKB, Paris	Directeur de thèse

À mes parents,
qui ont tant fait pour moi.

Remerciements

En premier lieu, je tiens à remercier les personnes qui ont encadré ce travail de thèse : Claude Fabre, mon directeur de thèse, pour nos nombreux échanges et discussions sur le "photon" ; Emmanuel Rosencher qui, dans son escalade au sommet de la hiérarchie de l'Onera, a toujours pris le temps d'être présent et de pousser ses travaux vers l'avant ; et Antoine Godard pour sa patience et son génie qui n'ont jamais failli.

Ces travaux de thèse ont été en partie réalisés dans les locaux du département de mesure de physique de l'Onera à Palaiseau. Eloignés – par la dimension prospective et fondamentale de mon sujet – des attentes et des ambitions premières qui font battre le cœur de la recherche de ce département, ils n'auraient pu avoir lieu sans que les directeurs du département ne se laissent convaincre de m'accueillir.

Je tiens à remercier spécialement Michel Lefebvre, responsable de l'unité Source Laser et Métrologie, ainsi que les différents membres de l'équipe qui m'ont aidé à porter ces travaux à leur terme. Si je ne m'attarderai pas à lister les contributions de chacun, je souhaite tout de même adresser une pensée particulière à ceux qui m'ont aidé à lancer mes expériences – même si leur apport à ces travaux ne se limite pas qu'à ce fait. Il s'agit de Jean Bonnet, Ajmal Mohamed, Myriam Raybaut, Thomas Schmid, Jean-Pierre Faleni, Jean-Baptiste Dherbecourt, Jean-Michel Melkonian, Alexandre Bresson, Yannick Bidet et Nassim Zahzam pour le département de mesure physique.

Dans une structure pluridisciplinaire telle que l'Onera, bien malheureux celui qui reste confiné, je tiens ainsi à remercier Jean-Philippe Ovarlez du département d'électromagnétisme et radar ainsi que Guillaume Canat, Laurent Lombard, Guillaume Druart, Béatrice Sorrente et Julien Jaeck du département d'optique théorique et appliquée pour leur soutien tant sur le plan expérimental que théorique.

Enfin, j'aimerais remercier plus que chaleureusement Nicolas Dubreuil et Philippe Delaye du laboratoire Charles Fabry de l'institut d'Optique sans qui le dernier chapitre serait resté une prévision théorique sans grande importance. Je leur dois d'autant plus qu'ils ont partagé – entres autres – leur savoir et leur talent sans grande contrepartie et sans retenue. Un geste et un comportement uniques, beaux, utopiques!

Avant-propos : *retour sur motivation*

Pour appréhender les motivations et le sujet de ces travaux de thèse, "*Absorption à deux photons et effets de corrélation quantique dans les semiconducteurs*", il existe trois publications, historiques et incontournables, qui contiennent la plupart des éléments clés. Dans l'ordre chronologique, il s'agit de l'article de Roger Hanbury Brown & Richard Q. Twiss [HB56a], de celui d'Izo Abram *et al.* [Abr86], et enfin de celui de Jeffrey M. Roth *et al.* [Rot02]. Près de 60 ans séparent la publication de l'ensemble de ces travaux et pourtant, ils ont le même thème : l'étude des corrélations en intensité de la lumière, c'est-à-dire la mise en évidence d'un lien entre l'intensité lumineuse à un instant t et celle à l'instant $t + \tau$.

Les premières mesures de corrélations en intensité...

Les pionniers en la matière, les premiers à avoir démontré qu'une telle relation existait, furent Hanbury Brown & Twiss (HBT). Pour cela, un faisceau lumineux issu d'une lampe à décharge au Mercure (à l'équilibre thermodynamique) est envoyé sur une lame partiellement réfléchissante (Fig. 1). Deux détecteurs placés derrière chacune des faces de cette lame mesurent l'intensité lumineuse des deux sous-faisceaux au fil du temps puis le produit des photo-courants générés est enregistré. Pour mettre en évidence les corrélations qui existent entre les deux sous-champs lumineux créés par la lame, les auteurs ont alors comparé la valeur moyenne du produit des intensités lorsque les détecteurs sont placés à égale distance de la lame et lorsque ces distances sont différentes (Fig. 1(b)). Ils ont observé que si les détecteurs sont placés à la même distance de la lame, cette valeur moyenne est plus élevée. Interprété à l'aide des lois de l'électromagnétisme classique, en d'autres mots en termes de fluctuations de champs classiques décrit par l'optique ondulatoire, le phénomène n'est pas autrement surprenant et peut s'expliquer comme la résultante des interférences entre les champs électromagnétiques incohérents produits par une grande assemblée de dipôles émetteurs indépendants. Les auteurs ont toutefois pris le parti de souligner le rôle joué par la dualité onde-corpuscule en utilisant, dès le titre de leur article, le terme de photon. De ce point de vue, leur expérience devient dès lors une mesure de coïncidence des instants d'arrivée des photons émis par une source thermique et montre, pour la première fois, leur tendance à arriver par groupes. Avant que ce phénomène ne soit consacré sous le terme désormais bien connu de *bunching* de photons, leur découverte a tout d'abord prêté à une vive controverse dans la littérature [Pur56, HB56b, Bra56, Twi57a, Fel57, Twi57b, HB57, Sil57, Reb57, HB58, McC59, Fan61, Ber83]. Quelques années plus tard, au début des années 60, ces débats ont finalement pris fin avec les travaux de Glauber sur le formalisme de l'optique quantique [Gla63, Gla64] et cette technique

permettant la mesure du *bunching* de photons, communément appelée interféromètre de Hanbury Brown et Twiss, est désormais utilisée dans d'autres domaines de la physique, par exemple, pour des mesures de vitesse d'écoulement en mécanique des fluides [Ber00] ou encore en optique atomique [Jur95]. Si leur technique a fait date et est encore très utilisée, y compris en optique quantique, son champ d'application est restreint à l'étude de sources dont le temps de cohérence est sensiblement plus long que le temps de réponse des deux détecteurs (au mieux une centaine de picosecondes), c'est-à-dire à des sources relativement cohérentes, donc, fines spectralement.

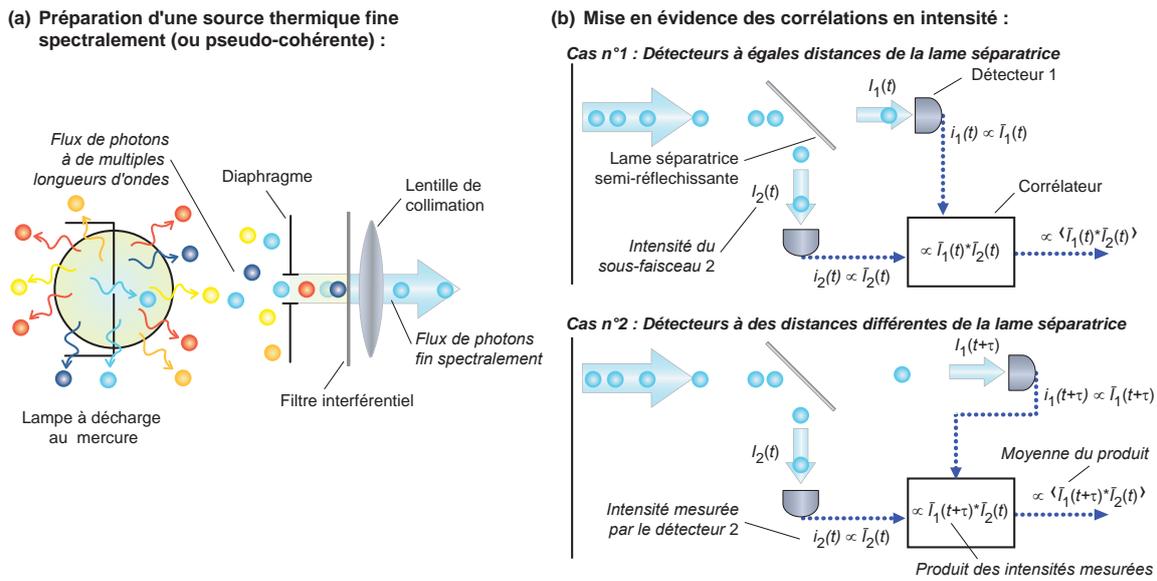


Figure 1: Schéma de principe de la première expérience ayant permis la mise en évidence du phénomène de *bunching* de photons [HB56a].

- (a) Préparation d'un faisceau fin spectralement à partir d'une lampe à décharge au Mercure dont on sélectionne une fine bande spectrale à l'aide d'un filtre interférentiel.
- (b) Le faisceau est alors envoyé sur une lame séparatrice semi-réfléchissante. Il en résulte deux sous-faisceaux dirigés chacun vers un détecteur différent. La comparaison de la moyenne du produit des signaux mesurés par chaque détecteur permet alors de mettre en évidence l'existence de corrélations en intensité. La valeur moyenne du produit est plus importante dans le cas n°1, où les détecteurs sont équidistants de la lame, que dans le cas n°2, où le détecteur 1 est plus éloigné.

... à des échelles de temps ultra-courtes...

Pallier cette limite s'est rapidement avéré nécessaire pour pouvoir caractériser différentes sources. Au rang des plus connues se trouvent les sources d'impulsions ultra-brèves qui, dès la fin des années 60, ont entraîné le développement de nouvelles techniques de mesures de corrélations s'appuyant sur des processus non linéaires¹; en premier lieu, la somme de fréquences et la fluorescence à deux photons (Fig. 2(a) et 2(b))[Gio67, Web67, Bra74].

1. Une autre technique de mesure de durée d'impulsions, actuellement moins utilisée, a récemment été adaptée à celle de corrélations de photons et ne s'appuie pas sur un processus non linéaire : la caméra à balayage de fente [Ass09, Wie09, Ass10]. Malgré les récentes démonstrations, sa résolution temporelle (\sim picoseconde) demeure moins bonne que celles atteintes par les techniques reposant sur les processus non linéaires (\sim femtoseconde).

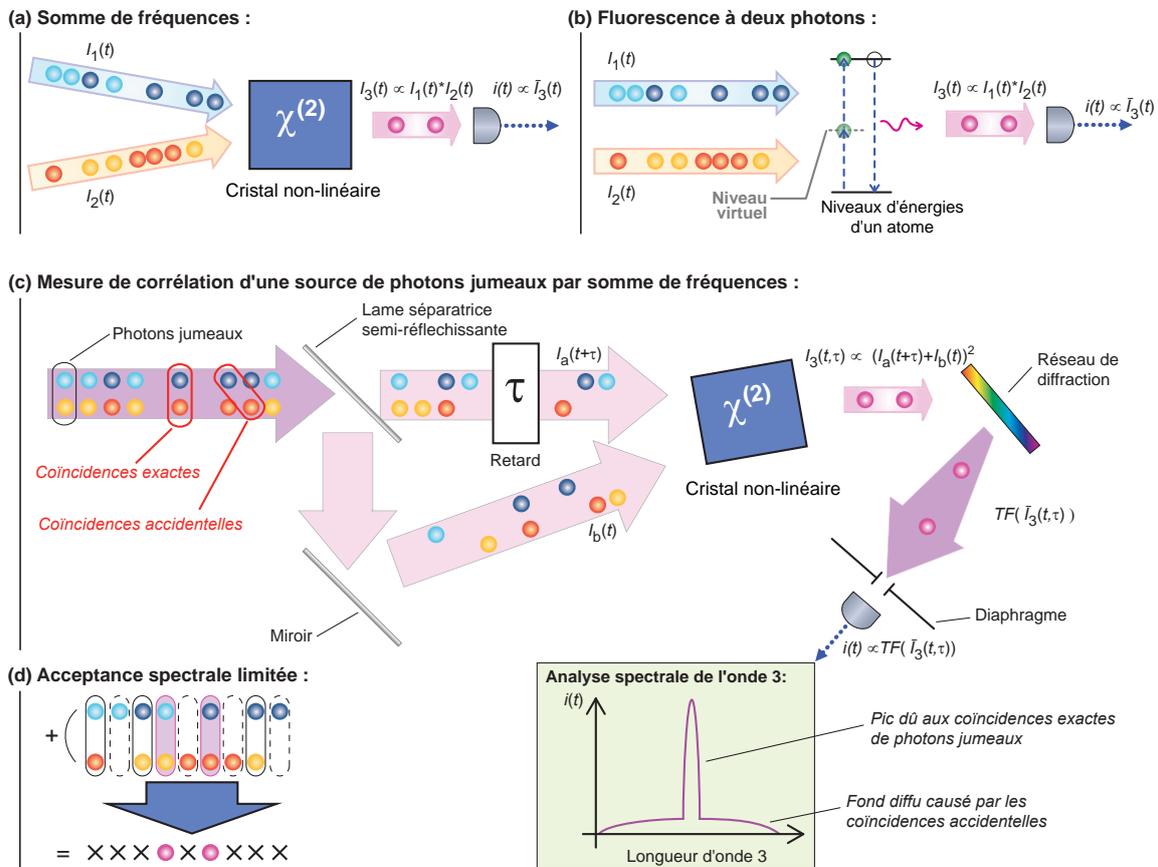


Figure 2: Principe des processus non linéaires utiles pour la mesure de corrélation. (a) Somme de fréquences dans un cristal non linéaire. L'intensité $I_3(t)$ du faisceau résultant de l'interaction des faisceaux incidents 1 et 2 dans le cristal est proportionnelle aux produits des intensités incidentes $I_1(t)I_2(t)$ (en supposant que les faisceaux 1 et 2 pris séparément n'interagissent pas avec le cristal). La mesure de l'intensité $I_3(t)$ permet alors d'accéder aux corrélations de photons entre les deux faisceaux 1 et 2. (b) Fluorescence à deux photons dans des atomes (ou des molécules). Le processus est par certains côtés analogue à celui de la somme de fréquences. La transition d'un électron vers un niveau d'énergie plus élevée d'un atome est réalisée en passant par un niveau "virtuel" – non stationnaire. En retournant à l'état fondamental, l'électron va émettre un rayonnement dont l'intensité va refléter les propriétés de corrélations des flux incidents. (c) Expérience de mesure de corrélation de photons jumeaux par somme de fréquences [Abr86]. Le faisceau de paires de photons est envoyé sur une lame semi-réfléchissante. Les deux sous-faisceaux sont recombinés sur un cristal non linéaire après avoir parcouru un chemin optique différent. L'analyse spectrale du faisceau résultant de l'interaction avec le cristal est réalisée en fonction du retard entre les voies. Elle permet de montrer, qu'aux très faibles retards ($\tau < 100$ fs), un pic très étroit en fréquences dû aux coïncidences exactes de photon apparaît. (d) Acceptance spectrale limitée des processus de somme de fréquences et de fluorescence à deux photons. Les combinaisons de photons incidents doivent respecter des conditions de conservation d'énergie et/ou d'accord de phases. Ainsi, seules certaines combinaisons de photons incidents peuvent conduire à la création d'un nouveau photon.

L'intérêt de ces processus repose sur le fait qu'ils vont produire une réponse directement proportionnelle aux produits des intensités (quasi) instantanées incidentes. Si ces processus ont rapidement fait leurs preuves pour mesurer les durées d'impulsions, il aura fallu attendre près de 20 ans après ces

démonstrations pour les voir appliquées avec succès à d'autres types de caractérisations. Izo Abram *et al.*, les premiers, ont su tirer parti d'une de ces nouvelles techniques, la somme de fréquences, pour l'appliquer à un autre type de sources dont certaines propriétés fascinent encore la communauté scientifique, les sources de photons jumeaux – basées sur la fluorescence paramétrique [Abr86]. Ils ont réussi à montrer par une analyse spectrale de la réponse (non quantitative) et avec une résolution de quelques dizaines de femtosecondes la tendance des paires de photons à voyager de concert (Fig. 2(c)). Du fait de la faible efficacité de conversion du processus de somme de fréquences, leur technique a été "mise de côté" devant le développement d'une autre technique, reposant sur les interférences à deux photons, l'interféromètre de Hong-Ou-Mandel, d'une sensibilité supérieure, plus – et uniquement – adapté aux faibles flux incidents utilisés à l'époque en optique quantique [Hon87]. En 2005, Dayan *et al.* ont repris l'expérience d'Abram *et al.* et l'ont intégralement revisitée à la lumière des immenses progrès technologiques et théoriques réalisés depuis lors [Day05, Pe'05, Day07]. Dans un premier temps, ils ont démontré que les cristaux non linéaires avaient atteint une maturité suffisante pour mettre en évidence les phénomènes observables à très faibles flux. Ensuite, ils ont effectué tout le développement théorique nécessaire à l'explication, la compréhension et l'interprétation de leurs expériences. Nous y reviendrons plus loin dans ce manuscrit. Devant une telle démonstration, la technique a été remise au goût du jour auprès de la communauté scientifique et un travail conséquent a été notamment réalisé durant les deux dernières années sur l'étude des effets de la dispersion chromatique qui tendent à altérer les coïncidences entre les photons d'une même paire – qui ne sont pas strictement à la même longueur d'ondes [O'D09, Sen10]. De plus, l'utilisation de cette technique permet de s'affranchir des coïncidences accidentelles², elle est optimisée pour ne distinguer que les coïncidences exactes entre les photons d'une même paire grâce à l'acceptance spectrale du processus de somme de fréquence qui entraîne la sélection de combinaisons de photons d'énergies déterminées (Fig. 2(d)). Cependant, l'acceptance spectrale limitée devient un inconvénient dès lors que l'on désire mesurer l'incidence des coïncidences accidentelles (celles des photons appartenant à des paires différentes) et surtout pour l'étude des corrélations de photons issus de source large spectralement.

... sur une très large gamme de fréquences...

C'est en se basant sur le second processus non linéaire, l'absorption à deux photons, que nous avons pu aboutir à la technique utilisée au cours de ces travaux de thèse. Reposant à l'origine sur l'excitation d'atome "isolé" – dans des gaz ou piégé dans une matrice cristalline –, la fluorescence à deux photons est basée sur l'absorption consécutive de deux photons qui va propulser un unique électron sur un niveau atomique excité – via un niveau "virtuel" ou, plus rigoureusement, non stationnaire –, d'énergie égale à la somme de celle des photons incidents [Nat85]. En retournant à son niveau fondamental, l'électron va engendrer l'émission d'un autre photon. De façon schématique, le processus est alors très proche de la somme de fréquences et va nécessiter la correspondance entre l'énergie du niveau excité

2. On entend par coïncidences accidentelles celles dues à la mesure simultanée de deux photons n'appartenant pas à la même paire de photons jumeaux. Elles sont constituées des coïncidences de deux photons signaux, de deux photons complémentaires ou encore de photons signal et complémentaire issus de paires différentes. Le principe est exposée sur la figure 2(c).

et la somme de celles des deux photons (Fig. 2(b) et 2(d)). En conséquence de quoi, l'acceptance spectrale va là encore être limitée (fonction des transitions considérées). Cependant, à partir de la fin des années 80, on entrevoit une solution simple avec l'utilisation de l'absorption à deux photons dans des détecteurs semiconducteurs disponibles dans le commerce pour caractériser les impulsions ultra-brèves [Pat71, Tak92, Kik98].

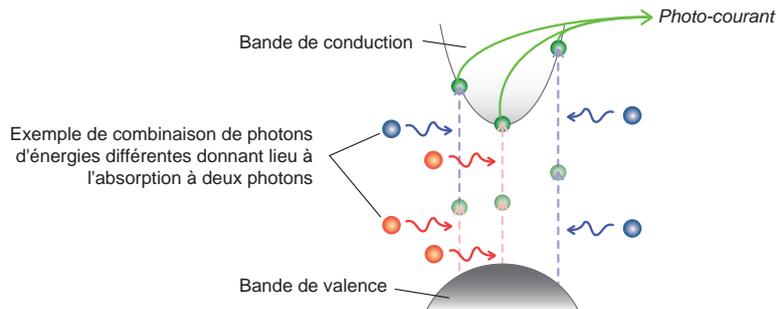


Figure 3: Principe de l'absorption à deux photons dans un semiconducteur à transition directe. L'ensemble des combinaisons d'énergies de photon possibles illustre la largeur de la bande passante du processus dans les semiconducteurs.

L'intérêt est alors double. D'une part, la technique va être simplifiée car tout le processus de mesure de corrélation a lieu dans le détecteur lui-même (par la production immédiate d'un photo-courant à deux photons dû à l'électron excité) et l'utilisation d'un cristal de conversion en amont du détecteur n'est plus nécessaire. D'autre part, la transition à deux photons se faisant entre les continus d'énergies que sont les bandes de valences et de conduction du semiconducteur, l'acceptance spectrale est alors gigantesque (Fig. 3). Au début de la décennie, Roth *et al.* ont montré que la sensibilité des détecteurs était désormais suffisante pour caractériser les impulsions brèves de faibles puissances [Rot02, Xu02], ouvrant la voie à l'analyse d'autres types de sources.

... de sources continues.

Au fil de ce manuscrit de thèse, nous étudierons, dans une première partie, l'absorption à deux photons de sources continues, d'un point de vue pratique (Chap. 1) – démontrant par exemple la très bonne sensibilité ou la largeur de l'acceptance spectrale du processus – et théorique (Chap. 2). Dans un second temps, en s'appuyant sur les mesures de coïncidences par absorption à deux photons, nous verrons comment il a été possible, pour la première fois, de caractériser, modéliser et comparer les corrélations de photons issus de sources larges spectralement, par exemple, un corps noir (Chap. 3) ou une source de photons jumeaux (Chap. 4).

Table des matières

Remerciements	iii
Avant-propos	v
Table des matières	xi

Introduction	1
--------------	---

Partie I :

ABSORPTION & COMPTAGE À DEUX PHOTONS	9
--------------------------------------	---

1 Expériences d'absorption à deux photons dans un semiconducteur	11
Objectifs	11
1.1 Présentation de l'absorption à deux photons comme un processus non linéaire d'ordre trois	12
1.1.1 Relation entre la susceptibilité non linéaire d'ordre trois et le coefficient d'absorption à deux photons	12
1.1.2 Influence de l'anisotropie du matériau sur le coefficient d'absorption à deux photons et la dépendance en polarisation	14
1.2 Caractérisation de photodiodes PIN en régime de fort flux	16
1.2.1 Montage expérimental	16
1.2.2 Mise en évidence de l'absorption à deux photons en régime impulsionnel nanoseconde	18
1.3 Caractérisation de l'absorption à deux photons en régime de comptage	19
1.3.1 Montage expérimental	20
1.3.2 Utilisation d'un détecteur à avalanche Silicium	22

1.3.3	Caractérisation d'un photomultiplicateur équipé d'une photocathode en GaAs	24
1.3.4	Histogrammes de comptage à deux photons	28
1.3.5	Influence de la polarisation sur l'absorption à deux photons	29
1.3.6	Comparaison entre l'absorption à deux photons et la somme de fréquences	30
1.4	Une première application au comptage de photons infrarouges par absorption à deux photons non dégénérés	32
1.4.1	Principe de l'expérience	32
1.4.2	Caractérisation de la réponse du détecteur à deux photons non dégénérés	34
	Synthèse	37
2	Développement d'un modèle quantique de comptage à deux photons	39
	Objectifs	39
2.1	Approche semi-classique de l'absorption à deux photons	40
2.1.1	Traitement perturbatif du système par la seconde règle d'or de Fermi	41
2.1.2	Réponse du compteur à deux photons	42
2.2	Introduction de la dépendance temporelle	43
2.2.1	Approche phénoménologique des faibles rendements quantiques	43
2.2.2	Conséquences de l'absorption à deux photons sur la distribution de photons	45
2.3	Quantification du champ dans le comptage à deux photons	47
2.3.1	Rendement quantique parfait	48
2.3.2	Faible rendement quantique	49
2.3.3	Approche multimodale aux faibles rendements quantiques	51
2.3.4	Probabilités de comptage à deux photons dans la limite d'une faible efficacité	52
2.4	Bases d'une théorie quantique <i>non perturbative</i> du comptage à deux photons	56
2.4.1	Description hamiltonienne du système	56
2.4.2	Établissement du système d'équations d'évolution couplées	58
2.4.3	Invariant du système	59
2.4.4	Quelques considérations statistiques	60
	Synthèse	62

Partie II :

ÉTUDE DES CORRÉLATIONS DE PHOTONS ISSUS DE SOURCES À LARGE SPECTRE	63
--	----

3	Expériences d'autocorrélation à deux photons de sources classiques	65
	Objectifs	65
3.1	Contexte	66

3.2	Principe de l'expérience d'autocorrélation à deux photons	67
3.2.1	Montage expérimental	67
3.2.2	Éléments de résultat d'une source incohérente	70
3.3	Modélisation d'un interférogramme d'autocorrélation	70
3.3.1	Approche ondulatoire classique	70
3.3.2	Application à une lumière chaotique	72
3.4	Exploitation des interférogrammes	79
3.4.1	Degré de cohérence d'ordre deux	79
3.4.2	Composantes oscillantes de l'interférogramme	81
3.5	Mesures d'interférogrammes supplémentaires	82
3.5.1	Mesure directe du degré de cohérence du second ordre	82
3.5.2	Étude des corrélations de photons issus d'un supercontinuum	83
	Synthèse	87
4	Corrélations du second ordre de photons issus d'un générateur paramétrique optique	89
	Objectifs	89
4.1	Contexte	90
4.1.1	Historique	90
4.1.2	Une première approche des corrélations de paires de photons	91
4.2	Réalisation d'un générateur paramétrique optique en régime picoseconde	93
4.2.1	Montage expérimental	94
4.2.2	Caractérisation de l'OPG	95
4.3	Expériences d'autocorrélation à deux photons à différents accords de phase	96
4.3.1	Autocorrélation à la dégénérescence	96
4.3.2	Autocorrélation hors de la dégénérescence	98
4.3.3	Influence de l'augmentation de la dispersion	98
4.4	Modélisation d'un interférogramme d'autocorrélation	103
4.4.1	Évaluation de la fonction de cohérence d'ordre deux en approximation gaussienne	103
4.4.2	Introduction de pertes linéaires	106
4.4.3	Prise en compte des phénomènes de dispersion chromatiques	108
4.4.4	Modélisation de l'interférogramme d'autocorrélation	114
4.4.5	Comparaison du modèle et de l'expérience	115
4.5	Expériences d'autocorrélation avec compensation de la dispersion	117
4.5.1	Montage expérimental	117
4.5.2	Mise en évidence de l'exaltation du signal d'autocorrélation et du degré de cohérence d'ordre deux	118
4.5.3	Représentation temps-fréquences des interférogrammes à deux photons	121
4.5.4	Des mesures possibles très loin de la dégénérescence	123

4.6	Expériences d' <i>intercorrélacion</i> d'une source paramétrique hors-dégénérescence	125
4.6.1	Montage expérimental	125
4.6.2	Modélisation de l'interférogramme d'intercorrélacion à deux photons	125
4.6.3	Détermination expérimentale de la fonction d'intercorrélacion	128
4.7	Approche stochastique des expériences de mesure de corrélacions de photons jumeaux à fort flux	131
4.7.1	Établissement de l'expression des champs en sortie de cristal paramétrique	131
4.7.2	Calcul du degré de cohérence d'ordre deux	132
4.7.3	Modélisation de l'interférogramme d' <i>autocorrélacion</i> à deux photons	136
4.7.4	Modélisation des expériences d' <i>intercorrélacion</i> à deux photons	138
	Synthèse	139

Conclusion	141
------------	-----

ANNEXES	145
---------	-----

A Compléments du chapitre 2	147
A.1 Différents points de vues sur l'absorption à un photon	147
A.1.1 Approche corpusculaire	147
A.1.2 Approche semi-classique	147
A.1.3 Approche quantique	148
A.2 Approche corpusculaire poissonnienne de la détection à deux photons	149
B Développement d'une source de fluorescence paramétrique continue	151
B.1 Modélisation d'une source paramétrique en guide d'onde	151
B.1.1 Équations des modes couplés en théorie classique	151
B.1.2 Constante de gain paramétrique	153
B.1.3 Efficacité de conversion	154
B.2 Réalisation d'une source paramétrique en guide d'onde	155
B.2.1 Montage expérimental	155
B.2.2 Caractérisation de la source	155
B.3 Réalisation d'une première source paramétrique picoseconde pompée à 1064 nm	156
C Modélisation des mesures de corrélacion à deux photons avec prise en compte des pertes et de la dispersion	159
C.1 Calcul de la fonction de corrélacion du premier ordre	159

C.2	Calcul de l'élément clé d'interaction à deux photons	160
C.3	Calcul du degré de cohérence d'ordre deux	162
C.4	Évaluation de la partie cohérente du degré de cohérence d'ordre deux	163
C.5	Modélisation de l'interférogramme d' <i>autocorrélation</i> à deux photons avec prise en compte des pertes et de la dispersion	165
C.6	Modélisation des expériences d' <i>intercorrélation</i> à deux photons avec prise en compte des pertes et de la dispersion	168
C.6.1	Évaluation de l'élément clé	168
C.6.2	Calcul du signal d'intercorrélation	169
D	Influence de la dépendance spectrale du coefficient d'absorption à deux photons sur les mesures de corrélation hors-dégénérescence	171
D.1	Introduction du coefficient d'absorption à deux photons dans la modélisation des mesures de corrélation	171
D.1.1	Mise en évidence de la nécessité du coefficient d'absorption à deux photons	171
D.1.2	Formulation quantique de l'absorption à deux photons non dégénérés	172
D.1.3	Modélisation des mesures d'intercorrélation	174
D.2	Influence du coefficient d'absorption à deux photons sur les mesures d'autocorrélation	175
D.2.1	Modélisation des mesures d'autocorrélation	175
D.2.2	Conséquences sur l'évaluation du degré de cohérence du second ordre $g^{(2)}(\tau)$	177
D.2.3	Conséquences sur les fonctions oscillantes $F_1(\tau)$ et $F_2(\tau)$	178
D.2.4	Bilan de l'influence sur les mesures d'autocorrélation	180
E	Index des figures relatives à l'étude des corrélations de photons	181
<hr/>		
	BIBLIOGRAPHIE	183
<hr/>		
	Bibliographie de l'auteur	185
	Bibliographie générale	187
<hr/>		
	Résumé & Abstract	IV
<hr/>		

Introduction

Les travaux de Hanbury Brown et Twiss sur les corrélations des temps d'arrivée de photons sur un détecteur, publiés en 1956, ont ouvert une nouvelle page du débat fondamental sur la nature même de la lumière, page qui donnera naissance au formalisme de l'optique quantique actuelle. Initialement, les auteurs ont simplement étudié les corrélations électroniques entre deux détecteurs mesurant le flux issus d'une source thermique. Ils ont trouvé un pic soulignant la simultanéité de la photoémission lorsque les détecteurs sont placés à égales distances de la source [HB56a] (Fig. 4(a)). Cette propriété n'a rien de remarquable si l'on considère les fluctuations classiques d'une onde lumineuse, mais, lorsqu'il s'est agi d'examiner le phénomène comme résultant des corrélations entre les particules indiscernables que sont les photons, l'interprétation a été nettement plus intrigante : on peut interpréter l'expérience comme la démonstration de l'arrivée des photons par groupes. Ébranlant les conceptions théoriques de l'époque, la controverse qui en découla, menée par Mandel, Purcell, Wolf ou encore Fano, ne prit fin que dans les années 1960 avec l'établissement du formalisme de l'optique quantique par Glauber, récompensé en 2005 par un prix Nobel de physique [Pur56, Wol58, Man58, Man61, Fan61, Gla63, Gla64, Man65, Man71, Man95]. Depuis, l'étude des corrélations à l'aide de l'expérience HBT s'est démocratisée et étendue – comme instrument d'analyse – à d'autres branches de la physique comme la mécanique des fluides – avec le *dynamic light scattering* – [Ber00], la physique des particules [Bay98] ou encore en optique atomique pour l'étude de la distribution de vitesse d'atomes froids [Jur95, Jur96, Yas96, Jel07]. Cependant, malgré les avancées technologiques considérables, elle reste encore, à l'heure actuelle, limitée par le temps de réponse des détecteurs, limitant le temps de cohérence typique des sources étudiées à la centaine de picosecondes [Sca68, Day05, Bec07, Bla09, Bro10]. Avec notamment l'émergence des recherches en information quantique au cours des deux dernières décennies, la communauté scientifique est en quête d'outils permettant des mesures de corrélation de plus en plus précises, quantifiées et adaptables à différents types de sources, quelle que soit par exemple leur largeur spectrale [Day07].

Dans l'expérience originale de Hanbury Brown et Twiss, l'exaltation du signal de corrélation entre deux détecteurs placés à égales distances de la source a été démontrée pour une transition atomique du mercure excitée par une décharge (donc à l'équilibre thermodynamique), fine spectralement [HB56a]. Suite à ces travaux, deux pistes ont été explorées pour mettre aisément en évidence les corrélations de photons issus de différents types de sources. Le principe de l'expérience est demeuré le même. Un faisceau lumineux est envoyé sur une lame séparatrice et l'on mesure à l'aide de deux détecteurs, un

sur chaque voie, le temps qui sépare l'arrivée d'un photon sur chaque détecteur [Twi57b, Bec07]. Les différents travaux se distinguent alors par le type de sources utilisées. D'une part, Arecchi *et al.* ont réalisé une source aux propriétés analogues à celles d'un corps noir mais avec un temps de cohérence plus long, compatible avec le temps de réponse des détecteurs [Arec66]. S'inspirant de différentes équipes qui étudiaient les statistiques de photons issus de sources cohérentes et incohérentes, ils ont utilisé des disques tournants et diffusants placés sur le chemin d'un faisceau laser de manière à introduire une phase aléatoire [Bel64, Fre65, Fre66]. Le faisceau de lumière diffusée peut dans ce cas être considéré comme issu d'un "pseudo-corps noir" avec un temps de cohérence extrêmement long, de l'ordre de la milliseconde, imposé par la vitesse de rotation du disque et la taille des grains diffusants. Les auteurs ont ainsi pu mettre en évidence un facteur d'exaltation du signal, le degré de cohérence d'ordre deux, égal à celui prévu par la théorie. D'autre part, comme dans l'expérience HBT historique mais profitant des avancées technologiques en matière de détecteur, Scarl a étudié les corrélations de photons issus d'une lampe à mercure équipée d'un filtre passe-bande très étroit [Sca68]. Il a montré qu'il existait une relation entre le degré de cohérence d'ordre deux mesuré, le temps de cohérence de la source (partiellement cohérente) et le temps de réponse du détecteur. Encore récemment, Beck démontrait l'importance de la prise en compte des temps morts du détecteur lors de la caractérisation de sources quantiques avec des expériences HBT [Bec07]. Bien que les limites de l'expérience aient été rapidement identifiées, les premières évolutions originales visant à s'en affranchir ne se développèrent que de nombreuses années plus tard.

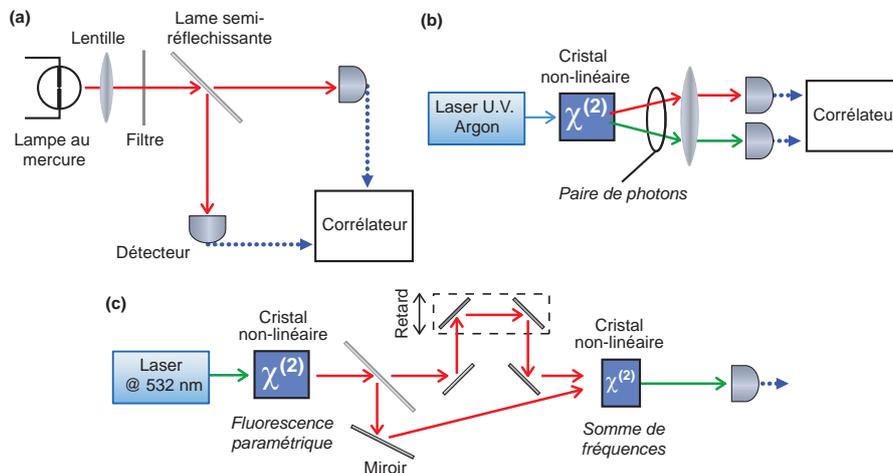


Figure 4: Quelques montages expérimentaux utilisés pour la mesure de corrélation de photons. (a) Expérience originale de Hanbury Brown & Twiss [HB56a]. Les corrélations en intensité du faisceau lumineux incident sont caractérisées à l'aide de deux détecteurs. (b) Schéma expérimental des premières expériences de corrélations réalisées sur les sources paramétriques de photons jumeaux [Bur70, Fri85]. Tirant parti de la non-colinéarité de la direction de propagation des photons d'une même paire au cours de leur génération, les corrélations ont, là encore, été mises en évidence à l'aide de deux détecteurs. (c) Principe du premier autocorrélateur "haute résolution" basé sur la recombinaison par somme de fréquences et utilisé pour caractériser une source de photons jumeaux, à la base de nombreux travaux actuels [Abr86, Day05, O'D09].

Caractérisation de sources paramétriques

Les sources de fluorescence paramétrique permettent d'illustrer l'utilité de l'optique quantique puisque seule la seconde quantification est à même de pouvoir décrire certaines des propriétés du flux de photons généré [Hei87] dont le phénomène d'intrication. L'optique quantique nous apprend que le mécanisme de fluorescence paramétrique permet de "casser" un photon en deux de plus faible énergie, et dans certaines conditions, d'induire en plus l'intrication au sein de ces paires de photons. Aux nombreuses interrogations qu'a soulevées ce nouveau phénomène, il en est plusieurs qui sont directement reliées à l'étude des corrélations de photons avec comme question de fond celle de la simultanéité de leurs créations. En 1985, faisant écho à une expérience de 1970 réalisée par Burnham et Weinberg [Bur70], Friberg *et al.* ont étudié les corrélations temporelles de photons issus d'une source paramétrique avec un montage HBT et des détecteurs leur permettant d'atteindre une résolution d'une centaine de picosecondes [Fri85] (Fig. 4(b)). Les auteurs ont réussi à montrer que le temps de cohérence des photons paramétriques était inférieur à la résolution temporelle de leurs détecteurs. En 1986, Abram *et al.* ont proposé un nouveau type d'interféromètre où les mesures de corrélation sont réalisées à l'aide d'un cristal non linéaire jouant le rôle de doubleur de fréquences [Abr86]. Le dispositif expérimental est alors analogue à un interféromètre de type Mach Zehnder suivi d'un cristal doubleur (Fig. 4(c)). Cette nouvelle architecture a permis de ne plus être limité par le temps de réponse des détecteurs mais par la précision mécanique des translations. En effet, le doublage de fréquence nécessite la présence quasi-simultanée de deux photons au même endroit dans le cristal non linéaire pour être efficace. Il suffit alors d'induire un retard sur une des voies pour explorer les corrélations entre les photons issus de chacune des voies. Le temps de relaxation des dipôles qui induisent la conversion de fréquences étant de l'ordre de la femtoseconde, la résolution temporelle atteinte est de plusieurs ordres de grandeurs inférieure aux précédentes expériences. Enfin, l'acceptance du cristal doubleur a été choisie de façon à ce que toutes les fréquences du signal paramétrique soient susceptibles d'être doublées ou sommées. Les auteurs ont pu montrer qu'il existait bien un temps de cohérence lié à la largeur spectrale de la source sans pouvoir l'attribuer clairement aux corrélations induites au cours du processus paramétrique. Néanmoins, et c'est probablement le point le plus remarquable de leurs travaux, ils ont aussi étudié le spectre du signal issu du cristal doubleur en fonction du retard entre les bras de l'interféromètre. Lorsque ce retard tend à s'annuler, des composantes spectrales étroites et reproduisant le spectre de la pompe se distinguent nettement d'une faible contribution large spectralement, reflétant ainsi la tendance des photons jumeaux à s'accoupler lors du processus de doublage de fréquence. Ces travaux ont été repris dans les années 2000 par Dayan *et al.* qui profitèrent des progrès en matière de détecteurs mais surtout en matière de cristaux non linéaires [Day05, Pe'05, Day07]. Deux aspects importants du dispositif expérimental ont été modifiés. Premièrement, ils compensèrent la dispersion chromatique des différents éléments du montage optique et, deuxièmement, ils utilisèrent un cristal doubleur, identique au cristal de génération paramétrique. Cette seconde modification a des conséquences cruciales sur la bande passante de détection. En effet, l'utilisation de cristaux appariés conduit à sélectionner uniquement les photons complémentaires en énergie, c'est-à-dire ceux appartenant à une même paire. Les auteurs ont notamment analysé l'impact du flux de photons ju-

meaux incident sur la réponse, illustrant ainsi l'importance des corrélations entre les photons d'une même paire. En 2009, O'Donnell et U'Ren ont poussé encore plus loin leur investigation en étudiant l'influence du retard entre deux photons d'une même paire [O'D09]. Ils ont montré que dans des conditions semblables à celle de Dayan *et al.* [Day05, Pe'05], *i.e.* en compensant la dispersion et avec un cristal doubleur de faible acceptation spectrale, la largeur du pic de coïncidence était de 27.9 fs et que l'introduction d'éléments dispersifs le long du faisceau élargissait ce pic de corrélation en diminuant rapidement son intensité. Cette étude a finalement été complétée plus récemment par Sensarn *et al.* qui ont démontré l'importance des phénomènes de dispersion au cours même du processus de génération entre les trois ondes, signal, complémentaire et pompe [Sen10]. Pour cela, ils ont utilisé un cristal avec un pas de quasi-accord de phase variant le long de la direction de propagation [Nas08] suivit d'un étage de compression et ont clairement démontré l'augmentation du signal de somme de fréquence lorsque la dispersion était minimisée. L'une des principales limitations de ces dernières techniques est liée à la bande passante du cristal doubleur. Sa faible acceptation conduit à ne sélectionner que les paires de photons jumeaux, empêchant ainsi l'étude des coïncidences accidentelles – celles des photons issus de paires différentes – vis à vis des coïncidences exactes – celles des photons appartenant à une même paire. Cette bande passante réduite se prête mal à l'étude d'autres types de sources lumineuses, notamment celles de grande largeur spectrale.

Une autre technique de mesure des corrélations de photons issus d'une source paramétrique a été développée en 1987 [Hon87]. Un an après l'observation d'Abram *et al.*, les auteurs proposèrent un nouvel interféromètre, basé sur un effet quantique nouveau et spectaculaire, capable de mesurer les corrélations de photons jusqu'à la femtoseconde : l'interféromètre de Hong Ou Mandel. Le succès de leur dispositif dans la communauté de l'optique quantique témoigne encore de la puissance de leur technique de mesure. Ce type d'interféromètre permet de caractériser avec une excellente résolution les corrélations des paires de photons jumeaux – ou encore celles des photons uniques dans des modes spatiaux, temporels et spectraux bien définis – mais reste dans le premier cas limité au très faible flux, au maximum d'un photon par mode.

Mesure de corrélation par absorption à deux photons

Dès le début de l'optique quantique, le processus d'absorption à deux photons a été perçu comme un bon candidat pour l'étude des corrélations de photons. En 1968, plusieurs auteurs, comme Mollow ou Lambropoulos, ont démontré théoriquement que le signal d'absorption à deux photons était plus élevé pour une source chaotique³ que pour une source cohérente à puissance moyenne égale⁴ [Lam67, Mol68b, Lam68]. Alors que la description semi-classique du processus, reliant le signal d'absorption au carré de l'intensité incidente, est bien admise, l'importance de la description quantique de

3. Le terme "chaotique" est un abus de langage découlant de la description de la phase aléatoire d'une source à l'équilibre thermodynamique dans la théorie classique ondulatoire. Cette dernière n'est toutefois pas "chaotique" mais suit généralement une distribution gaussienne ou lorentzienne. Dans la littérature, ce type de source est aussi appelée source thermique.

4. Au milieu des années 70, Lecompte *et al.* ont démontré – expérimentalement et théoriquement – que ces considérations pouvaient être étendues aux processus d'absorption multi-photoniques d'ordres supérieurs [Lec74, Lec75].

l'absorption à deux photons –prédite quelques années plus tôt [GB89]– est démontrée expérimentalement, notamment par les travaux de Georgiades *et al.* [Geo95, Geo97, Geo99] : les auteurs se sont intéressés aux taux de transition à deux photons d'atomes froids éclairés par une source de photons jumeaux et ont mis en évidence une déviation de la réponse par rapport au comportement quadratique habituel, soulignant la capacité de l'absorption à deux photons à rendre compte des propriétés quantiques étudiées. Les études théoriques et expérimentales sur l'absorption à deux photons trouvent un nouveau souffle dans les années 1990 lorsque le champ d'application passe des atomes aux détecteurs à semiconducteurs. À cette époque, le phénomène est bien compris du point de vue de la physique des semiconducteurs ainsi que de l'optique non linéaire. L'absorption à deux photons faisant en effet partie des techniques utilisées pour déterminer la structure de bandes des semiconducteurs, de nombreuses études ont recours à ce processus, en particulier à l'aide d'impulsion femtoseconde permettant l'exploration de transitions défavorisées en régime continu [Rei73, Bec76, Vai80, Whe84].

De façon schématique, la mécanique quantique permet d'interpréter l'absorption à deux photons comme la transition d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction en passant par un état "virtuel" ou, plus rigoureusement, un état non-stationnaire intermédiaire situé au sein de la bande interdite du semiconducteur. Le temps de vie de l'état virtuel est alors donné par l'inégalité de Heisenberg, de l'ordre de grandeur de la femtoseconde. Il apparaît ainsi clairement que l'absorption à deux photons dans les semiconducteurs convient très bien à l'étude des corrélations sur des échelles de temps très brèves. Par ailleurs, les transitions à deux photons sont possibles pour des énergies comprises entre la moitié de l'énergie de la bande interdite et l'intégralité de celle-ci permettant ainsi la détection sur une très large gamme de fréquences.

L'utilisation de l'absorption à deux photons pour mesurer les corrélations s'est développée avec l'apparition de sources impulsionnelles ultra brèves [Die06]. En effet, la durée des impulsions devenant trop courte pour pouvoir être mesurée directement à l'aide d'un détecteur, des techniques alternatives reposant sur la mesure du signal d'autocorrélation ont été développées. En concurrence avec une technique s'appuyant sur le doublage de fréquence apparue dans les années 1960 [Mai66, Arm67], la technique de mesure de corrélation avec des détecteurs à deux photons s'est, à ses débuts, limitée à la caractérisation de sources impulsionnelles de fortes puissances crêtes [Pat71, Lee74, Die06] avec notamment les travaux de Takagi *et al.* [Tak92] sur des détecteurs commercialisés. Le dispositif est simple dans son principe et ressemble fortement au montage de détection développé par Abram *et al.* [Abr86] dans lequel le détecteur et le cristal doubleur qui le précède ont été remplacés par un unique détecteur à deux photons. En plus des gains réguliers en sensibilité avec l'amélioration des détecteurs, on peut citer les travaux de Kikuchi et plus récemment ceux de Chin *et al.* sur l'exploitation des interférogrammes d'autocorrélation qui ont permis, entre autres, d'évaluer les modulations de fréquences (*chirp*) dans les lasers femtoseconde [Mog88, Kik98, Chi06].

Enfin, en 2002, avec l'aboutissement des technologies des détecteurs à semiconducteurs, en silicium et en arséniure de gallium, Roth *et al.* ont montré qu'il était désormais possible d'étudier des sources impulsionnelles de très faibles flux (puissance crête : $P_c < 0,1$ mW) [Xu02, Rot02], ouvrant ainsi la voie à l'étude de sources continues.

Objectifs de la thèse

L'ensemble de ces innovations ont permis d'affiner les mesures d'autocorrélation en mettant en lumière quelques phénomènes prévus par l'optique quantique, regroupés sous les termes de *bunching* (arrivée de photons par groupes) – également prévu par la théorie semi-classique – et d'*antibunching* (arrivée de photons régulièrement espacés dans le temps). Les dernières avancées en termes de détecteurs nous montrent que la technologie des détecteurs semiconducteurs à deux photons est suffisamment développée pour être utilisée dans l'étude de sources continues de faible puissance. Tirant parti des larges bandes passantes de l'absorption à deux photons dans les semiconducteurs, l'étude des corrélations de photons issus de sources chaotiques très larges spectralement – comme un corps noir – est désormais envisageable.

Ce travail de thèse s'inscrit dans ce contexte. Son objectif premier est de caractériser et de valider les effets de corrélation de photons de sources larges spectralement, et en particulier de sources paramétriques, à l'aide de mesures d'autocorrélation par absorption à deux photons dans les semiconducteurs. Cette approche nous conduit naturellement à approfondir notre compréhension des mécanismes physiques fondamentaux de l'absorption à deux photons tout autant que la description les propriétés de corrélations des différentes sources mises en évidence par ce processus.

Présentation du manuscrit

Pour répondre aux objectifs de cette thèse, il était nécessaire au **Chapitre 1** de s'intéresser aux performances et aux caractéristiques des détecteurs à deux photons. Pour cela, nous avons réalisé plusieurs expériences visant à étudier les propriétés d'absorption à deux photons de différents détecteurs en silicium, en arséniure de gallium et en arséniure d'indium et de gallium. En particulier, nous nous sommes attachés à vérifier la dépendance de la réponse en fonction du flux incident tel que le prévoit l'optique non linéaire, notamment en puissance et en polarisation. Enfin, l'absorption à deux photons à deux longueurs d'ondes différentes a été évaluée dans un détecteur en arséniure de gallium afin de rendre compte de récentes prévisions théoriques sur le comptage de photons infrarouges par Hayat *et al.* [Hay08] dont nous tirerons parti au **Chapitre 4**. Cette dernière partie du travail a fait l'objet d'une publication dans Applied Physics Letters [Art09a] et de plusieurs communications orales [Com09a, Com09b].

Au **Chapitre 2**, la démarche a consisté dans un premier temps, en s'appuyant sur les résultats expérimentaux du **Chapitre 1**, à rendre compte des modèles d'absorption à deux photons basés sur l'approche semi-classique, conséquence directe de la seconde règle d'or de Fermi. Dans un second temps, nous verrons comment il est possible de faire le lien entre ces théories, basées sur une approche perturbative du système, et les statistiques observées. Nous proposerons alors différentes approches qui permettent de décrire le processus d'absorption à deux photons au moyen d'opérateurs quantiques en se basant sur l'extension des modèles de comptage à un photon, notamment dans les deux cas limites d'une efficacité parfaite ou très faible. Enfin, nous présenterons les bases d'une théorie quantique *ab initio*, basée sur la démarche de Mollow [Mol68a], qui seule permettrait de décrire le processus de

comptage à deux photons de manière rigoureuse. Cette partie du travail devrait faire l'objet d'une publication détaillée, en cours de rédaction [ArtXc], et a donné lieu à deux communications orales [Com10a, Com10b].

Par la suite, l'étude expérimentale et la validation théorique des interférogrammes d'autocorrélation de sources classiques, présentées au **Chapitre 3**, ont été mises en place. À cette fin, un montage d'interférométrie à deux photons a été réalisé puis des expériences de type HBT ont été conduites afin de caractériser les propriétés de corrélations des photons issus de ces différentes sources : un laser monofréquence, une source d'émission spontanée amplifiée et un corps noir. Enfin une modélisation basée sur l'approche ondulatoire classique a été développées afin d'exploiter les interférogrammes et les résultats ont été comparés aux prévisions quantiques théoriques. Ces résultats expérimentaux ont fait l'objet d'une publication dans Nature Physics [Art09b], de plusieurs conférences invitées [CoIn09a, CoIn09b, CoIn09c] et de différentes communications orales [Com09c, Com09d, Com09e].

Au **Chapitre 4**, nous avons étudié les propriétés de corrélations d'une source de fluorescence paramétrique ainsi que leurs validations théoriques. Pour cela, profitant de la maturité de l'optique non linéaire, le développement et la caractérisation de cette source de photons jumeaux ont été effectués. Le montage de l'expérience d'interférométrie précédent a été utilisé afin de caractériser les propriétés de corrélation d'une telle source dans différentes conditions d'accord de phase, à la dégénérescence ou non, et de puissance. Enfin la modélisation de la réponse du détecteur à deux photons, basée sur des calculs d'optique quantique originaux, a été effectuée afin d'exploiter les interférogrammes et de mettre en évidence l'importance des phénomènes de dispersion chromatique. Cette première partie du travail a fait l'objet d'une publication dans Optics Express [Art10] ainsi que de deux communications orales [Com10d, Com10c]. La compensation de la dispersion chromatique a alors été réalisée tandis que, par ailleurs, un nouvel interféromètre a été développé pour caractériser plus pleinement les corrélations entre photons jumeaux, issus de la source paramétrique loin de la dégénérescence. Une seconde approche théorique, basée sur une description classique, conduit enfin à une interprétation plus intuitive des phénomènes observés. Cette seconde partie de l'étude devrait faire l'objet de deux publications en cours de rédaction [ArtXa, ArtXb].

Au cours de la rédaction de ce manuscrit de thèse, la question du grand nombre d'équations y figurant s'est naturellement posée et il y a de grandes chances pour que, parcourant les pages au hasard, le lecteur semble en être submergé. Leur présence n'a pas pour but de plonger celui-ci dans la confusion la plus totale en rendant la lecture particulièrement pénible. Elle m'est en fait apparue très vite comme inéluctable. Il me reste à espérer que le lecteur les appréciera comme un mal nécessaire illustrant – internationalement – ma démarche.

Première partie :
Absorption & comptage
à deux photons

Chapitre 1

Expériences d'absorption à deux photons dans un semiconducteur

Objectifs

L'objectif de ce chapitre est de caractériser le comportement de différents détecteurs dans le régime d'absorption à deux photons. Tout d'abord, nous rappellerons brièvement l'origine de l'absorption à deux photons en tant que processus non linéaire d'ordre trois ainsi que les conséquences de l'anisotropie du cristal semiconducteur sur ce processus. À travers l'étude expérimentale de différents détecteurs semiconducteurs, nous mettrons ensuite en évidence les différents critères justifiant notre choix de détecteur. Puis, par l'étude de détecteurs en silicium (Si) ou en arséniure de gallium (GaAs) fonctionnant en régime de comptage, nous exposerons les principales caractéristiques de l'absorption à deux photons. Nous soulignerons l'identification du régime d'absorption à deux photons ainsi que ses limites. Enfin, nous verrons comment il a été possible de tirer parti de l'absorption de deux photons pour permettre la détection de photons présentant une énergie inférieure à celle de la bande interdite du semiconducteur.

L'absorption à deux photons a été prévue théoriquement en 1931 par Maria Göppert-Mayer à partir d'un traitement perturbatif de l'Hamiltonien d'interaction entre une onde lumineuse et la matière [GM31]. Elle a tout d'abord été observée dans le domaine radiofréquence [Kus54, Kus56, Win59] mais il aura fallu attendre plus de trente ans et l'invention du laser pour que Kaiser et Garrett reportent la première mise en évidence expérimentale du phénomène pour des transitions optiques [Kai61, Bra64, Pat71, Lee74]. Pour cela, ils ont éclairé un cristal de fluorure de calcium dopé à l'euporium, $\text{CaF}_2:\text{Eu}^{2+}$, à l'aide d'un laser à rubis à 694,3 nm. Leur technique est mise à profit en spectroscopie pour pallier certaines carences de la spectroscopie linéaire. On peut citer certains de ces apports comme la suppression de l'effet Doppler permettant de remonter à la largeur naturelle

des raies d'absorption ou encore la richesse des règles de sélection qui permet d'explorer davantage la structure électronique du matériau [Cag73]. Dans la méthode de Kaiser et Garrett, l'absorption est réalisée à partir d'un laser accordable très intense. De manière à s'affranchir des fortes contraintes sur le laser, Hopfield et Worlock ont développé une autre technique s'appuyant sur deux lasers [Hop63]. Le matériau est alors excité par un laser intense de fréquence fixe et un laser accordable de plus faible puissance. En 1971, Von der Linde montre que, si l'absorption à deux photons permet d'étudier la structure électronique des matériaux, un choix judicieux de molécules offre la possibilité d'étudier la largeur et la forme de l'impulsion laser avec une résolution de l'ordre de la picoseconde [VdL71]. En parallèle, Patel fait la démonstration qu'il est possible d'utiliser l'absorption à deux photons dans un détecteur semiconducteur pour mesurer ces durées d'impulsions à 10,6 μm [Pat71], démonstration rapidement étendue au proche infrarouge [Lee74]. Dès lors, de nombreux autres travaux et théoriques se sont évertués à décrire ce processus et l'on trouve dans la plupart des livres d'optique non linéaire différents modèles à même de l'illustrer [She84, But90, Boy92].

1.1 Présentation de l'absorption à deux photons comme un processus non linéaire d'ordre trois

L'utilisation des processus non linéaires est maintenant répandue en optique et notamment celle des processus du second ordre, permettant entre autres, la génération de second harmonique ou la création de photons "jumaux". L'approche classique consistant à interpréter la susceptibilité non linéaire comme résultante de l'interaction des électrons d'un cristal non linéaire avec le champ électrique incident d'une onde lumineuse dans un potentiel anharmonique rend compte de ces processus non linéaires¹. Il souligne l'importance de la symétrie du milieu. Un milieu non centrosymétrique possède en effet un tenseur de susceptibilité d'ordre deux non nul tandis que ce tenseur sera nul pour un milieu centrosymétrique et que le premier tenseur non nul sera alors celui d'ordre trois. [Boy92]

1.1.1 Relation entre la susceptibilité non linéaire d'ordre trois et le coefficient d'absorption à deux photons

Pour les non-linéarités du troisième ordre, comme l'absorption à deux photons, la composante de Fourier de la polarisation $P_i^{(3)}(\omega_i, \vec{k}_i)$ associée à la direction de propagation \vec{k}_i et à la fréquence ω_i s'exprime en fonction de l'amplitude des champs E_j :

$$P_i^{(3)}(\omega_i, \vec{k}_i) = \frac{\varepsilon_0}{4} \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_i; \omega_j, \omega_k, \omega_l) E_j(\omega_j, \vec{k}_j) E_k(\omega_k, \vec{k}_k) E_l(\omega_l, \vec{k}_l) \quad (1.1)$$

où ε_0 est la permittivité électrique du vide, $\chi^{(3)}$ est le tenseur de susceptibilité non linéaire d'ordre trois et i, j, k et l représentent les axes cristallographiques du milieu. En fonction de la structure cristallographique du matériau, l'expression du tenseur $\chi^{(3)}$ se simplifie pour ne laisser qu'un nombre

1. On notera que l'on peut théoriquement étendre le formalisme à tout milieu, pas nécessairement solide.

limité de valeurs non nulles et indépendantes. L'ensemble de ces simplifications est présenté pour chaque classe cristallographique dans la plupart des ouvrages qui traitent des processus non linéaires d'ordre trois dans le détail [But90, Boy92]. De plus, la nature spécifique du processus considéré implique des symétries supplémentaires sur le tenseur $\chi^{(3)}$ qui permettent, là encore, de simplifier l'expression ci-dessus. Ainsi, pour l'absorption à deux photons, les relations entre les fréquences, $\omega_1 = \omega_2 = -\omega_3$ ou les deux autres permutations, impliquent :

$$\chi_{ijj}^{(3)} = \chi_{iij}^{(3)}. \quad (1.2)$$

À partir des équations de Maxwell dans un milieu non magnétique isotrope, comme le silicium – de classe $d3m$ – par exemple, l'équation de propagation non linéaire peut s'écrire² :

$$-\nabla^2 \vec{E}(\vec{r}, t) + \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \overrightarrow{P^{NL}}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \quad (1.3)$$

où $\overrightarrow{P^{NL}}(\vec{r}, t)$ est la partie non linéaire du vecteur polarisation, conséquence des non-linéarités d'ordre trois dans notre cas, c la vitesse de la lumière et μ_0 la perméabilité magnétique du vide.

Pour illustrer le comportement de notre détecteur, un certain nombre d'hypothèses supplémentaires est envisageable. Dans un milieu isotrope, la polarisation non linéaire peut s'exprimer simplement si l'on considère une onde plane progressive polarisée linéairement selon l'axe x et se propageant selon z . En supposant que la non-linéarité du milieu n'agit que comme une perturbation de l'équation linéaire, les équations 1.1 et 1.3 se réécrivent dans l'espace des fréquences en fonction du champ électrique suivant x , $E_x(z, \omega) = A(z)e^{-jkz}$, où $A(z)$ est l'enveloppe lentement variable et $k = \frac{n\omega}{c}$ la constante de propagation :

$$P_x^{(3)}(\omega) = 3\varepsilon_0 \chi_{xxxx}^{(3)} |E(z, \omega)|^2 E(z, \omega) \quad (1.4)$$

$$\frac{dA(z)}{dz} = j \frac{3\omega}{2nc} \chi_{xxxx}^{(3)} |A(z)|^2 A(z). \quad (1.5)$$

La partie réelle du tenseur $\chi^{(3)}$ est reliée au processus d'auto-modulation de phase tandis que l'absorption à deux photons, entraînant une dissipation de l'énergie de l'onde, est représentée par sa partie imaginaire³, $\text{Im}(\chi_{xxxx}^{(3)})$. Enfin, en considérant la relation $I = 2n\varepsilon_0 c |A|^2$ entre l'intensité moyenne I de l'onde et son amplitude A , on peut définir le coefficient d'absorption à deux photons β [Rez03] :

$$\beta = \frac{1}{I^2} \frac{dI}{dz} = \frac{3\omega}{2\varepsilon_0 n^2 c^2} \text{Im}(\chi_{xxxx}^{(3)}). \quad (1.6)$$

En supposant que le faisceau est de section constante S dans le semiconducteur, l'intégration de cette relation sur une longueur d'interaction L conduit à la variation de puissance due à l'absorption à deux photons ΔP en fonction de la puissance de l'onde incidente $P_0 = I_0 S$. Cette variation apparaît dès

2. L'indice de réfraction n est supposé spatialement invariant. Ceci n'est qu'approximativement vrai mais reste une hypothèse régulièrement retenue que nous ne discuterons pas dans le présent manuscrit.

3. Ceci est assez intuitif si l'on considère que le coefficient d'absorption à un photon est donné par la partie imaginaire de la susceptibilité linéaire $\chi^{(1)}$.

lors quadratique en puissance à la limite d'une faible absorption :

$$\Delta P = P_0 - P = \frac{\beta L \frac{P_0^2}{S}}{1 + \beta L \frac{P_0}{S}} \simeq \beta L \frac{P_0^2}{S} \quad (1.7)$$

En supposant de plus que la puissance incidente absorbée est intégralement convertie en électrons qui seront collectés sans qu'il n'y ait de recombinaisons parasites, le photocourant généré par le processus d'absorption à deux photons varie de façon quadratique avec la puissance du flux lumineux incident P [Rez03] :

$$i_{ADP} = KP^2 \quad (1.8)$$

où K est une constante dépendant de β , de la taille du spot sur le détecteur et de la géométrie du détecteur. On voit ici apparaître la nécessité de travailler avec la taille de spot la plus réduite possible de manière à maximiser la réponse à deux photons. Notons ici que le processus se distingue encore de l'absorption à un photon – linéaire – où la réponse est indépendante de la taille du faisceau sur le détecteur (en dehors des régimes de saturation).

1.1.2 Influence de l'anisotropie du matériau sur le coefficient d'absorption à deux photons et la dépendance en polarisation

L'analyse précédente n'est valable que dans le cas d'un milieu isotrope comme le silicium (Fig. 1.1). D'autres matériaux, comme l'arséniure de gallium – de classe $\bar{4}3m$ –, sont anisotropes mais possèdent

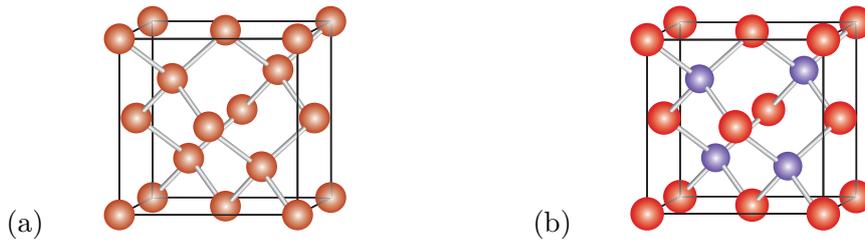


Figure 1.1: Structure cristallographique du (a) silicium ($Fd\bar{3}m$) et de (b) l'arséniure de gallium ($F\bar{4}3m$).

des coefficients d'absorption à deux photons plus élevés que certains matériaux isotropes. Les considérations théoriques présentées ci-dessous permettent d'étendre notre raisonnement aux matériaux de structure cubique de symétrie $m\bar{3}m$, $\bar{4}3m$ ou 432 . Ces matériaux de structures cubiques anisotropes sont caractérisés par un facteur d'anisotropie σ [Dvo94] :

$$\sigma = \frac{\chi_{1111} - (2\chi_{1212} + \chi_{1221})}{\chi_{1111}} \quad (1.9)$$

1.1 Présentation de l'absorption à deux photons comme un processus non linéaire d'ordre trois

où par commodité les ⁽³⁾ ont été retirés et simplifiés en utilisant le fait que $\chi_{ijij}^{(3)} = \chi_{iijj}^{(3)}$. Ce facteur est nul pour les matériaux isotropes ce qui permet d'écrire que $\chi_{1111} = 2\chi_{1212} + \chi_{1221}$ et de retrouver les résultats de la partie 1.1.1.

Semiconducteur	Facteur d'anisotropie
GaAs	-0.62
CdTe	-0.47

Table 1.1: Exemple de facteur d'anisotropie de semiconducteurs de structure Blende [Dvo94].

Dans un cadre général, en prenant en compte les trois composantes d'une polarisation quelconque, l'équation 1.1 se généralise à :

$$\overrightarrow{P^{NL}} = 3\varepsilon_0 \left(2\chi_{1212}(\overrightarrow{E} \cdot \overrightarrow{E}^*)\overrightarrow{E} + \chi_{1221}(\overrightarrow{E} \cdot \overrightarrow{E})\overrightarrow{E}^* + \sigma\chi_{1111} \sum_i |E_i|^2 E_i \vec{i} \right) \quad (1.10)$$

où $i = x, y, z$ et \overrightarrow{E} est le champ électrique se propageant dans une direction η orthogonale à \overrightarrow{E} . En utilisant une démarche similaire à celle utilisée dans la partie précédente :

$$\frac{\partial}{\partial \eta} I(\eta) = -\frac{3\omega}{2\varepsilon_0 n^2 c^2} \left(2\text{Im}(\chi_{1212}) + \text{Im}(\chi_{1221}) \frac{|\overrightarrow{A} \cdot \overrightarrow{A}|^2}{|\overrightarrow{A}|^4} + \sigma \text{Im}(\chi_{1111}) \frac{\sum_i |A_i|^4}{|\overrightarrow{A}|^4} \right) I^2(\eta). \quad (1.11)$$

En introduisant le vecteur unitaire $\overrightarrow{p} = \frac{\overrightarrow{A}}{|\overrightarrow{A}|}$ représentant l'état de la polarisation⁴, le coefficient d'absorption à deux photons peut s'écrire [Dvo94] :

$$\beta = \frac{3\omega}{2\varepsilon_0 n^2 c^2} \left(2\text{Im}(\chi_{1212}) + \text{Im}(\chi_{1221}) |\overrightarrow{p} \cdot \overrightarrow{p}|^2 + \sigma \text{Im}(\chi_{1111}) \sum_i |p_i|^4 \right). \quad (1.12)$$

Cette formule permet de traiter les cas où le matériau est cubique anisotrope ou isotrope et ce quelle que soit la polarisation. Les principaux résultats⁵ concernant l'influence du matériau et de la polarisation sont regroupés dans le tableau 1.2. Ces informations peuvent s'avérer utiles expérimentalement pour déterminer l'orientation cristalline dans des cas particuliers. Enfin, tant que $\chi_{1212} = \chi_{1221}$, on peut remarquer que, lorsque le cristal est présenté selon l'axe [111], la relation suivante est vérifiée quel que soit le matériau :

$$\frac{\beta_{lin}}{\beta_{cir}} = \frac{3}{2}. \quad (1.13)$$

4. Si le vecteur unitaire est normé, il peut toutefois prendre des valeurs complexes pour représenter les polarisations circulaires et elliptiques.

5. Une des hypothèses simplificatrices nécessite l'égalité des coefficients χ_{1212} et χ_{1221} , ce qui n'a été prouvé que pour le GaAs et non pour le silicium [Dvo94].

Matériaux	Polarisation	Coefficient d'absorption à 2 photons β
Isotrope :	Linéaire	$\frac{3\omega}{2\varepsilon_0 n^2 c^2} \text{Im}(\chi_{1111})$
	Circulaire	$\frac{3\omega}{\varepsilon_0 n^2 c^2} \text{Im}(\chi_{1212})$
Cubique Anisotrope :		
Axe du cristal : [001]; $\vec{d} = [100]$	Linéaire	$\frac{3\omega}{2\varepsilon_0 n^2 c^2} \text{Im}(\chi_{1111}) \left(1 - \frac{\sigma}{2} \sin^2(2\theta)\right)$
[110]; $\vec{d} = [001]$	Linéaire	$\frac{3\omega}{2\varepsilon_0 n^2 c^2} \text{Im}(\chi_{1111}) \left(1 - \frac{\sigma}{2} (1 + 3 \cos^2 \theta) \sin^2 \theta\right)$
[111]	Elliptique	$\frac{3\omega}{2\varepsilon_0 n^2 c^2} \text{Im}(\chi_{1111}) \left(1 - \frac{\sigma}{2}\right) \left(\frac{5 - \cos 2\gamma}{6}\right)$ L'angle γ est défini par $\tan \gamma = \frac{2A_x A_y}{ A_x ^2 + A_y ^2}$ où A_x et A_y sont les amplitudes du champ électrique.

Table 1.2: Influence de la polarisation en fonction du type de matériau. θ est l'angle entre la direction de la polarisation \vec{p} et l'axe \vec{d} appartenant au plan cristallographique.

À présent que nous avons brièvement exposé les éléments théoriques qui vont nous permettre de mettre en évidence et de caractériser le régime d'absorption à deux photons, nous allons voir une première illustration du processus par l'utilisation de détecteurs pas ou peu amplifiés.

1.2 Caractérisation de photodiodes PIN en régime de fort flux

1.2.1 Montage expérimental

L'absorption à deux photons peut être représentée par des transitions optiques entre les états des bandes de valences et de conductions. Elle s'interprète alors comme la transition d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction via un niveau virtuel [Nat85] (voir Chap. 2). Cette vision du processus, représentée sur la figure 1.2, rend compte de la très large gamme de fréquences qui peuvent ainsi être absorbées : l'ensemble des photons dont l'énergie est comprise entre l'énergie de la bande interdite E_g et la moitié de cette énergie $E_g/2$ est susceptible d'être absorbé "à deux photons".

Dans un premier temps, nous avons réalisé des expériences d'absorption à deux photons en fort flux à l'aide de détecteurs courants en laboratoire afin d'étudier la faisabilité et la facilité de la mise en œuvre de ce type d'absorption. Notre choix de détecteurs s'est alors réduit à des photodiodes PIN en arséniure de gallium et d'indium (InGaAs; $E_g = 0,73$ eV; $\lambda_g = 1,65$ μm) ou en silicium (Si; $E_g = 1,12$ eV; $\lambda_g = 1,1$ μm), connues pour leur robustesse, de manière à mettre en évidence le régime

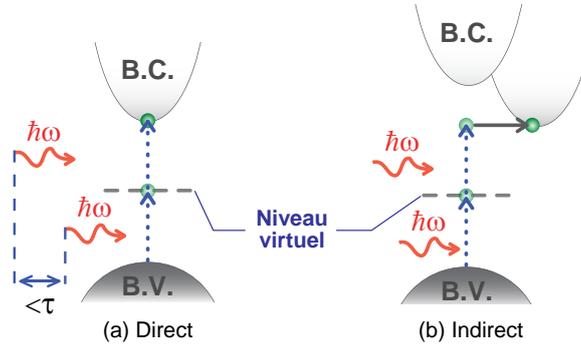


Figure 1.2: Vision schématique de l'absorption à deux photons dans un semiconducteur à gap (a) direct (GaAs) et (b) indirect (Si) illustrant la relation de dispersion de Heisenberg. Elle peut s'interpréter comme la transition d'un électron de la bande de valence (BV) vers la bande de conduction (BC) via un niveau virtuel.

d'absorption à deux photons et l'évolution de la constante d'absorption à deux photons en fonction de la longueur d'onde incidente.

La source permettant d'accéder aux longueurs d'ondes désirées est un oscillateur paramétrique pompé à $1,064 \mu\text{m}$ délivrant des impulsions de 20 ns à une cadence de 30 kHz entre $1,5 \mu\text{m}$ et $1,8 \mu\text{m}$ et entre $2,5 \mu\text{m}$ et $3,5 \mu\text{m}$ précédemment développé à l'Onera. La puissance moyenne mesurée en sortie d'OPO est de l'ordre de plusieurs centaines de milliwatts pour le signal ou pour le complémentaire. Le schéma de l'expérience est présenté sur la figure 1.3. Les longueurs d'ondes excitatrices à deux photons sont séparées à l'aide d'un prisme en sélénure de zinc. Pour assurer une mesure fiable, le détecteur à deux photons est relié à un *boxcar* qui est déclenché par le signal de pompe. Enfin, un oscilloscope de contrôle permet d'observer le signal mesuré.

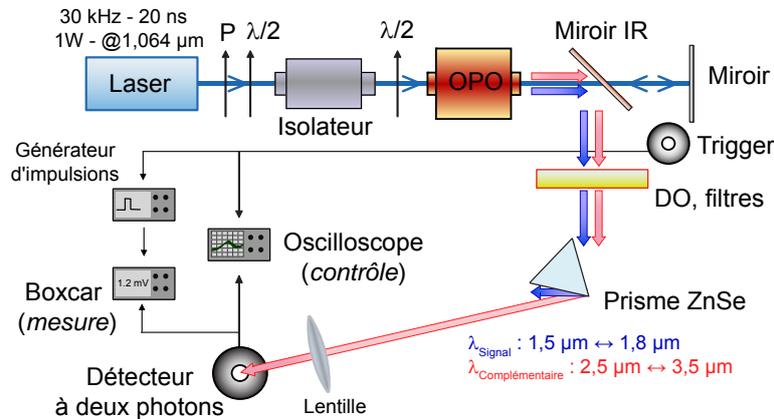


Figure 1.3: Montage expérimental de caractérisation du régime d'absorption à deux photons en régime impulsif nanoseconde dans des photodiodes PIN.

1.2.2 Mise en évidence de l'absorption à deux photons en régime impulsif nanoseconde

Photodiode PIN en InGaAs : un semiconducteur à transition directe

Le signal d'absorption à deux photons d'une photodiode PIN en InGaAs DET 410 de Thorlabs (à laquelle on a ôté la vitre de protection qui absorbe au dessus de 2,6 μm) a été caractérisé avec le complémentaire issu de l'OPO entre 2,5 μm et 3,5 μm . La réponse du détecteur est présentée sur la figure 1.4. Du fait du régime impulsif, il est plus difficile de remonter à la valeur du coefficient

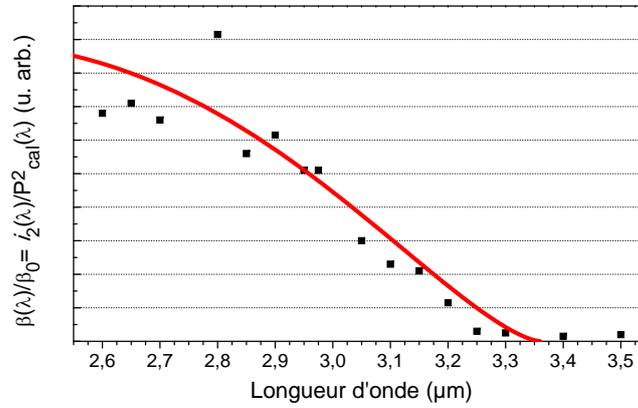


Figure 1.4: Absorption relative du coefficient d'absorption à deux photons β en fonction de la longueur d'onde d'excitation d'une photodiode InGaAs.

d'absorption à deux photons et nous nous contentons d'étudier son évolution en fonction de la longueur d'onde. La puissance moyenne de la source est calibrée en fonction de la longueur d'onde, ce qui va permettre d'observer l'évolution de la valeur relative du coefficient d'absorption :

$$\frac{\beta(\lambda)}{\beta_0} = \frac{i_2(\lambda)}{P_{cal.}^2(\lambda)} \quad (1.14)$$

où $i_2(\lambda)$ est l'intensité mesurée aux bornes de la photodiode à la longueur d'onde λ et $P_{cal.}(\lambda)$ est la puissance reçue par le détecteur à la longueur d'onde λ . La courbe rouge représente l'évolution théorique de β en fonction de la longueur d'onde à partir de la formule donnée par Wherrett [Whe84, VS85] :

$$\beta(\omega) \propto \frac{(2\hbar\omega - E_g)^{3/2}}{(2\hbar\omega)^5} \quad (1.15)$$

où ω est la fréquence de l'onde incidente. Le facteur de proportionnalité comprend des paramètres intrinsèques au matériau qui ne nous intéressent pas ici. Le bon accord entre la théorie et l'expérience valide ainsi ce premier montage expérimental et confirme que l'absorption à deux photons, malgré son très faible rendement, est un processus assez aisément observable et mesurable.

Photodiodes en Si : un semiconducteur à transition indirecte

Deux types de détecteur silicium ont été testés, une photodiode pin DET 210 de Thorlabs et une photodiode à avalanche à gain variable APD 110 de MenloSystems. Pour les deux détecteurs, l'excitation entre 1,5 μm et 1,8 μm n'induit aucun signal. Le seul phénomène observé est le chauffage à blanc des fils connecteurs lors du désalignement du détecteur, induisant un signal de détection.

La réponse à deux photons de ces détecteurs a alors été testée à l'aide d'un OPO délivrant des impulsions de 10 ps à une cadence de 75 MHz entre 1,85 μm et 2 μm d'une puissance moyenne de l'ordre du watt car les impulsions brèves favorisent les phénomènes non linéaires. Même dans de telles conditions, aucune réponse n'a toutefois été observée à l'exception, là encore, de celle due à l'émission des fils de câblage dans certains cas particuliers.

L'absence de réponse de ces détecteurs silicium dans ce régime impulsionnel de fort flux est assez surprenante, voir incompréhensible, puisque la valeur du coefficient d'absorption à deux photons β ne permet d'envisager qu'un seul ordre de grandeur de différence par rapport à l'intensité mesurée avec les détecteurs précédents (Tab. 1.3), valeur qui demeure largement supérieure à notre seuil de détection. Nous verrons dans la partie suivante que nous avons eu d'autres difficultés avec les détecteurs Silicium que nous n'avons pas été à même d'expliquer.

	GaAs (@ 1 μm)	Si (@ 1,2 μm)
β (cm/GW)	22	0,5

Table 1.3: Valeurs des coefficients d'absorption à deux photons β de GaAs [Hut92] et Si [Lin07].

1.3 Caractérisation de l'absorption à deux photons en régime de comptage

Une des contraintes imposées par notre objectif d'étudier des sources continues et quantiques est le fonctionnement du détecteur à de "faibles" flux de photons. Dès lors, nous pouvons exclure de notre choix les détecteurs qui sont peu amplifiés comme le détecteur Thorlabs DET 410 précédent. L'étude du comportement des détecteurs que nous allons présenter ici permet de mieux appréhender le phénomène et de bien caractériser le matériau semiconducteur⁶. En effet, l'appréciation et le traitement des résultats exposés dans les chapitres 3 et 4 ne sont possibles que grâce à la très bonne connaissance des limites et à la compréhension du comportement du semiconducteur.

6. Des expériences préliminaires ont été mises en place avec un détecteur H7360-01 de Hamamatsu équipé d'une photocathode multi-alcalines qui n'a pas permis d'obtenir un signal à deux photons. Au vue des questions restées sans réponse de la part du constructeur sur la composition exacte de la photocathode, ce photomultiplicateur n'a, bien entendu, pas retenu notre attention plus longtemps.

1.3.1 Montage expérimental

Les détecteurs à deux photons utilisés dans cette partie fonctionnent en mode Geiger, *i.e.* en mode de comptage, et à une tension fixée pour assurer la répétabilité des expériences. Il s'agit d'un photomultiplicateur équipé d'une photocathode en arséniure de gallium et d'une photodiode à avalanche en silicium.

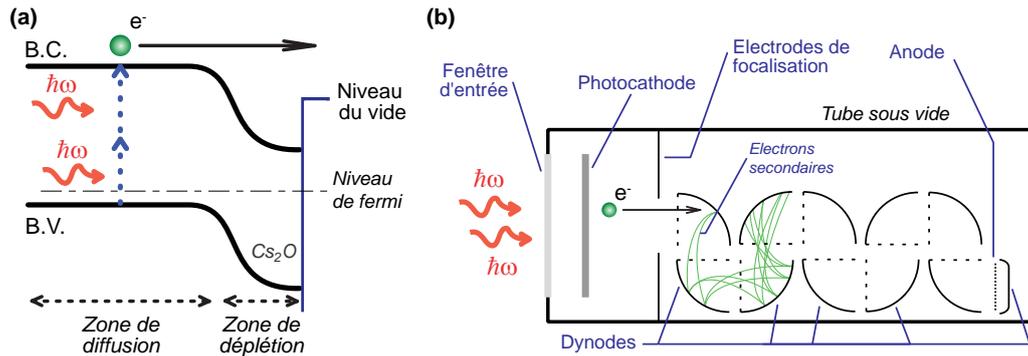


Figure 1.5: Photomultiplicateur équipé d'une photocathode en GaAs :
 (a) Illustration de la détection à deux photons à l'aide des bandes d'énergie.
 (b) Principe de la détection à deux photons et de la multiplication des électrons par les dynodes.

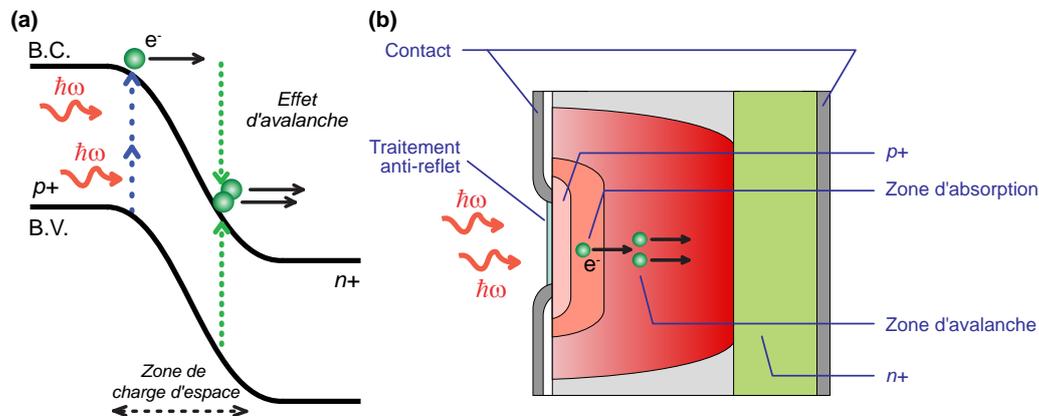


Figure 1.6: Photodiode à avalanche Si :
 (a) Illustration de la détection à deux photons et de son amplification à l'aide d'un diagramme de bandes.
 (b) Principe de fonctionnement de la détection et de la multiplication des électrons dans la zone d'avalanche.

Dans le cas d'un photomultiplicateur, chaque couple de photons détecté engendre l'émission d'un photoélectron de la zone de charge d'espace dans le vide qui est alors amplifié via les dynodes pour produire un photocourant (Fig. 1.5). Dans le cas d'une photodiode à avalanche, le photoélectron déclenche l'amplification du courant dans la zone d'avalanche (Fig. 1.6). Un discriminateur transforme ce photocourant mesuré en une unique impulsion électrique d'environ 3 V et d'une durée de l'ordre

de 30 ns (fonction du détecteur). Les impulsions sont envoyées vers un compteur d'impulsions, CT2 Counter Timer commercialisé par Electron Tubes, qui permet d'enregistrer le nombre de coups d'un échantillon sur une durée d'intégration variant de 10 ms à 300 s. La mesure se fait en accumulant les échantillons, jusqu'à 32000 au maximum. La valeur de chaque échantillon est transmise à un ordinateur qui permet le contrôle et l'enregistrement des données. Le nombre moyen de coups sombres de la chaîne de détection est préalablement mesuré et systématiquement retranché des valeurs moyennes présentées dans la suite de ce chapitre.

Le montage expérimental utilisé pour caractériser l'absorption à deux photons est présenté sur la figure 1.7. En amont du détecteur se trouve une lentille asphérique qui permet de focaliser le faisceau sur la photocathode du photomultiplicateur⁷ située à 19 mm de la face d'entrée du détecteur. La qualité de cette optique est particulièrement importante puisqu'il est nécessaire d'obtenir la plus petite tache focale pour maximiser la détectivité à deux photons. Différentes optiques ont été simulées à l'aide du logiciel Oslo et essayées, de la lentille plan-convexe à l'objectif de microscope très longue focale. Les meilleures performances ont été obtenues avec un objectif de microscope Mitutoyo M Plan APO 20x, 0.42-N.A., ainsi qu'avec une lentille asphérique Thorlabs AL3026-C de focale 26 mm en S-LAH64 fabriquée par Ohara. Le choix s'est naturellement orienté vers la lentille asphérique, bien meilleur marché.

La partie "source" de l'expérience est constituée soit d'un laser DFB fibré à 1,55 μm Thorlabs S3FC 1550 nm, soit d'une source d'émission spontanée amplifiée (ASE) dopée Erbium centrée à 1,53 μm FiberAmp BT1200 de Photonetics. La sortie de la fibre monomode est placée au foyer d'un doublet achromatique Thorlabs AC300-100-C de focale 100 mm. La puissance de la source est contrôlée et mesurée à l'aide d'un atténuateur/puissance-mètre fibré situé en aval de la source. Les fibres n'étant pas à maintien de polarisation, un cube polariseur glan est placé juste après le doublet achromatique de collimation pour fixer la polarisation. Enfin, de manière à protéger le détecteur de tout rayonnement parasite qui conduirait à une absorption parasite à un photon, un filtre laissant passer les hautes longueurs d'onde a été placé devant le détecteur. Il s'agit soit d'un filtre RG1000, soit d'une lame de Silicium.

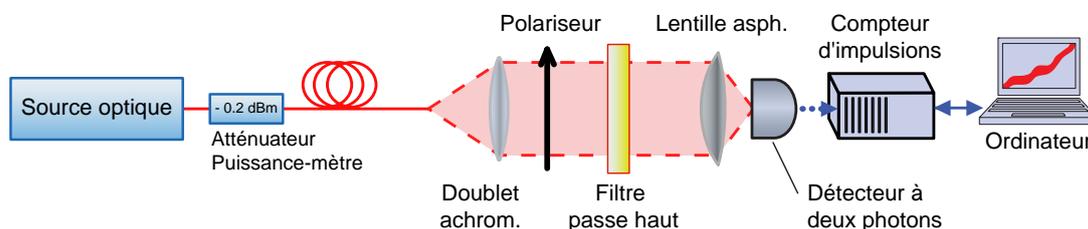


Figure 1.7: Montage expérimental utilisé pour la mise en évidence et la caractérisation de l'absorption à deux photons. Le faisceau issu d'une source fibrée à environ 1,5 μm est collimaté puis focalisé sur le détecteur à deux photons.

7. Cette optique peut être remplacée par un objectif de microscope si il est possible de s'approcher très près du détecteur. Le photomultiplicateur étant le détecteur le plus contraignant de ce point de vue, le montage a été adapté à ses spécificités de manière à pouvoir assurer la comparaison avec le détecteur silicium.

1.3.2 Utilisation d'un détecteur à avalanche Silicium

Les détecteurs à avalanche présentent une alternative avantageuse par rapport aux photomultiplicateurs puisqu'il est envisageable d'optimiser leur structure en confinant l'onde à l'aide de microcavités ou de guides d'ondes, par exemple, ce qui permettrait d'augmenter le signal à deux photons [Lau94, Fol02a, Fol02b]. Tout comme la technologie GaAs, les procédés de fabrication des détecteurs silicium permettent d'atteindre le régime de comptage de photons et ces photodiodes sont déjà employées dans la caractérisation de source impulsionnelle par absorption à deux photons [Xu02, Rot02]. Le coefficient d'absorption à deux photons du silicium, de l'ordre du cm.GW^{-1} , est toutefois plus faible que celui de l'arséniure de gallium, de l'ordre de la dizaine de cm.GW^{-1} (Tab. 1.3). Le détecteur à deux photons en silicium utilisé est une photodiode à avalanche en silicium SPCM-AQR13 de PerkinElmer (à l'origine EG&G). Le nombre de coups sombres est évalué à 250 cps.s^{-1} .

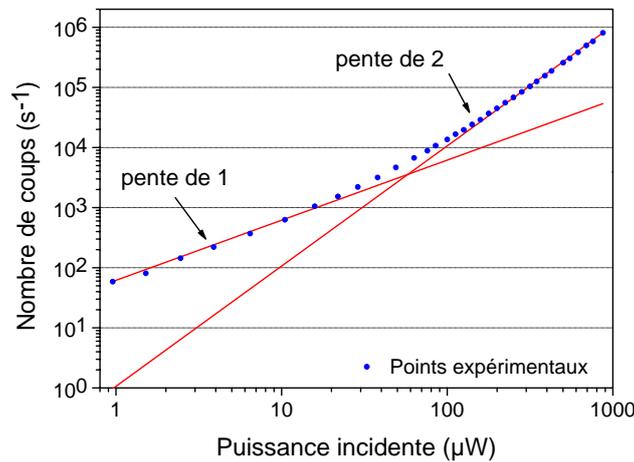


Figure 1.8: Nombre de photoélectrons mesurés à l'aide d'une photodiode à avalanche Silicium en fonction de la puissance incidente d'une diode laser fibrée à $1,55 \mu\text{m}$.

Dans notre étude du comportement des détecteurs à deux photons, la première étape est de vérifier que l'on se trouve bien dans le régime d'absorption à deux photons dont les principales caractéristiques sont présentées dans l'équation 1.7. Il s'agit de l'évolution de la réponse en fonction de la puissance et de la taille du spot ainsi que de celle de la constante d'absorption à deux photons en fonction de la longueur d'onde. En premier lieu, il s'agit de vérifier la réponse du détecteur en fonction du flux incident. La mesure de cette réponse est présentée sur la figure 1.8 et n'est pas quadratique en fonction du flux. En effet, pour des flux élevés, la réponse est bien quadratique mais pour des flux plus faibles elle devient linéaire avec la puissance incidente. Le phénomène a déjà été relaté dans la littérature et fut attribué à la présence de défauts profonds dans le silicium [Kik98, Xu02]. Toutefois, sans plus d'information sur la densité de ces défauts⁸, le temps caractéristique de thermalisation des électrons,

8. Sans informations complémentaires, leur section efficace de capture peut se situer entre 10^{-20} et 10^{-15} cm^2 et leur densité entre 10^9 et 10^{15} cm^{-2} ; soit une indétermination sur le temps de capture-émission de 30 ordres de grandeurs.

i.e. le temps pendant lequel ces niveaux vont être peuplés, peut varier de la femtoseconde à quelques secondes.

Si l'on suppose que le temps de thermalisation est relativement court, d'autres processus doivent être considérés. En effet, comme la réponse est constante au cours du temps pour une puissance incidente donnée, ces niveaux ne sont pas initialement peuplés. Les transitions à deux photons se feraient alors préférentiellement via les niveaux des défauts mais ces derniers joueraient encore le rôle de niveaux intermédiaires et n'influenceraient pas l'ordre du processus. Une des pistes à développer est la mise en évidence d'effets du type Franz-Keldysh (classique dans l'absorption à un photon) déjà observés à deux photons dans des photodiodes HgCdTe [Cui08]. Le problème a été traité théoriquement par Garcia *et al.* [Gar06a, Gar06b] pour l'absorption à n -photons. Nous supposons ici qu'il y a concurrence entre l'absorption à deux photons et un effet de type Franz-Keldysh à un photon. Au cours de ce processus, un photon est absorbé en excitant un électron. Ce dernier, situé sur son niveau virtuel ou sur un défaut très profond, passe alors dans la bande de conduction par effet tunnel, phénomène rendu possible par la courbure de bande due à l'important champ électrique appliqué à la structure (Fig. 1.9). L'évolution de la constante d'absorption à un photon α est donnée par [Gar06a] :

$$\alpha = \frac{\alpha_b m_\mu f^{1/3}}{2\pi \hbar^2} \left[-\epsilon_0 Ai^2(\epsilon_0) + [Ai'(\epsilon_0)]^2 \right] \quad (1.16)$$

avec :

$$\left. \begin{aligned} f &= \frac{2eFm_\mu}{\hbar^2} \\ \alpha_b &= \frac{8\pi^2 |P_{vc}|^2 e^2}{nc m_0^2 \omega} \end{aligned} \right| \quad \left. \begin{aligned} \epsilon_0 &= \frac{E_g - \hbar\omega}{E_\mu} \\ E_\mu &= \left[\frac{\hbar^2 e^2 F^2}{2m_\mu} \right]^{1/3} \end{aligned} \right| \quad \frac{1}{m_\mu} = \frac{1}{m_v} + \frac{1}{m_c}$$

où e est la charge de l'électron, F la valeur du champ électrique continu, m_0 est la masse de l'électron libre, m_μ est la masse réduite fonction de la masse de l'électron m_c et du trou m_v dans le semiconducteur, \hbar la constante de Planck, E_g l'énergie de la bande interdite et Ai est la fonction d'Airy associée à la transparence tunnel de la barrière triangulaire. Lorsque le champ électrique au sein du semiconducteur est intense et que l'énergie du photon est inférieure à celle de la bande interdite, on retrouve le courant tunnel Zener de décroissance exponentielle en ϵ_0 (soit avec l'énergie du photon $\hbar\omega$ ou avec l'inverse de tension électrique exposant $2/3$, $\frac{1}{F^{2/3}}$). Cette transition peut être interprétée comme une absorption assistée par effet tunnel induit par un champ électrique [Gar06b].

L'équation 1.16 montre que la mise en évidence de ce phénomène est alors possible par l'étude de la réponse en fonction du champ électrique ou de la longueur d'onde d'excitation. En particulier, l'évolution des coordonnées du point de rupture de la pente de la figure 1.8 en fonction de ces grandeurs devrait permettre de conclure sur la nature du phénomène. Toutefois, le champ électrique au sein du détecteur à avalanche PerkinElmer est fixé et il n'est pas possible de le faire varier. De plus, nous ne disposons pas de sources continues accordables d'une puissance convenable permettant d'étudier la réponse du détecteur sur une large gamme de longueurs d'ondes.

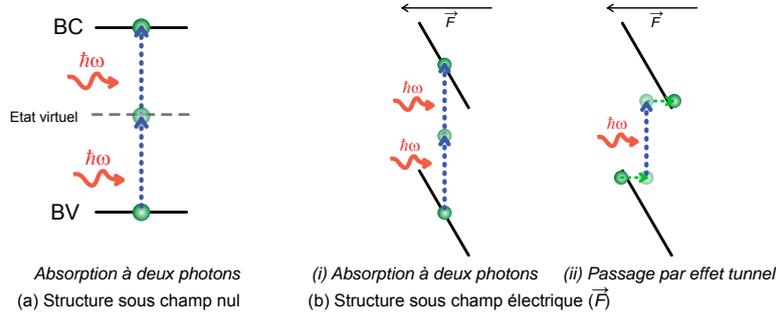


Figure 1.9: Principe de l'effet Franz-Keldysh pouvant expliquer la linéarité du détecteur à avalanche silicium aux faibles flux.

L'étude de la réponse du détecteur à avalanche silicium en régime picoseconde pourrait permettre de résoudre le problème sur une courte plage de longueurs d'ondes. Du fait du destin tragique de ce détecteur (détail en annexe B.3), les expériences n'ont pu être conduites. De plus, malgré les efforts entrepris, l'observation de la réponse à deux photons dans les détecteurs faiblement amplifiés (une simple photodiode ou une photodiode à avalanche) n'ayant pas été possible, nous n'avons pas pu conclure sur la nature du phénomène.

Les différentes opinions rencontrées dans la littérature demeurent partagées sur le "potentiel à deux photons" de l'utilisation des détecteurs silicium. En effet, si plusieurs auteurs ont observé le comportement linéaire du silicium lors de l'absorption à deux photons à bas flux qui limite son utilisation à deux photons [Xu02, Kik98], d'autres n'en font pas mention et soulignent évidemment la maîtrise de ses technologies [Rez03].

Finalement, le manque de compréhension du comportement de ces détecteurs silicium les écarte naturellement de notre sélection⁹.

1.3.3 Caractérisation d'un photomultiplicateur équipé d'une photocathode en GaAs

Le détecteur utilisé est un photomultiplicateur Hamamatsu H7421-50 équipé d'une photocathode en GaAs refroidie par effet Peltier. Il s'agit du même modèle de détecteur que celui utilisé par Roth *et al.* pour étudier l'autocorrélation d'une source femtoseconde de faible puissance [Rot02]. La bande interdite de l'arséniure de gallium est d'environ 1,4 eV à température ambiante, ce qui permet l'absorption à deux photons entre 890 et 1750 nm. Ces valeurs sont approximatives dans la mesure où elles vont dépendre du type et de la concentration de dopant ainsi que de la valeur du champ électrique imposé à la structure. Enfin, le nombre de coups sombres, certifié par le constructeur et vérifié expérimentalement, s'élève à 28 cps.s⁻¹.

9. Il faut noter par ailleurs que certains problèmes annexes rencontrés expérimentalement n'ont pas été reportés ici. On peut citer par exemple l'effet Fabry-Pérot entre le traitement anti-reflet visible sur la face supérieure du semiconducteur et la plaque métallique conductrice sur la face inférieure. Cette mise en cavité accidentelle a été brièvement traitée et modélisée par Reza *et al.* et souligne ainsi la sensibilité du détecteur à la qualité du cristal semiconducteur utilisé et particulièrement à son état de surface [Rez03].

Comme précédemment avec le détecteur à avalanche, il s'agit tout d'abord de vérifier la réponse du détecteur en fonction du flux incident. Cette réponse est présentée sur la figure 1.10. Les droites rouge et bleue représentent respectivement le comportement idéal du détecteur à deux photons et à un photon. La réponse du détecteur est clairement quadratique sur trois ordres de grandeur avec la puissance incidente, de $0,2 \mu\text{W}$ (équivalent à environ 10^{12} photons. s^{-1}) à $100 \mu\text{W}$ (10^{15} photons. s^{-1}), soit sur six ordres de grandeur en photocourant. La déviation à l'idéalité pour des puissances plus élevées est due au recouvrement des temps morts du détecteur. Chaque impulsion issue du détecteur étant de 30 ns , si la fréquence d'arrivée des photons est trop élevée, deux impulsions consécutives ne peuvent être résolues et sont comptabilisées comme un unique coup. Ce problème a été traité à un photon par, entre autre, Johnson *et al.* [Joh66] et il existe des algorithmes qui sont aisément transposables à deux photons et permettent de corriger ce point. L'utilisation de ces méthodes de correction nécessite toutefois de connaître la statistique de photons arrivant sur le détecteur ainsi que celle de sa réponse. Par ailleurs, l'absence de signal parasite à un photon, même à de très faibles flux, est très prometteuse pour la suite de cette étude.

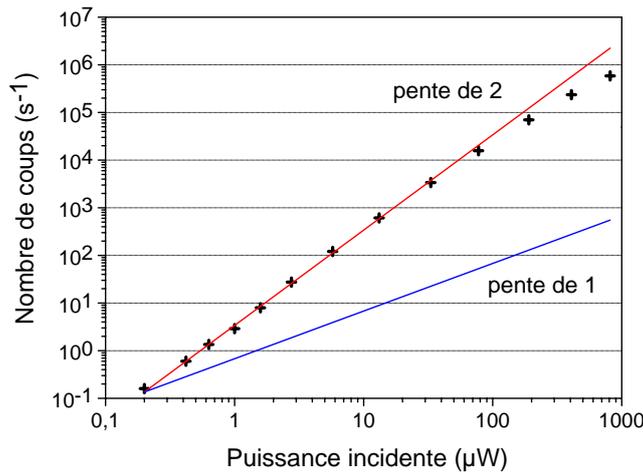


Figure 1.10: Nombre de photoélectrons mesurés en fonction de la puissance incidente d'une diode laser fibrée à $1,55 \mu\text{m}$.

Après avoir vérifié la dépendance quadratique en puissance de la réponse, l'équation 1.7 nous amène naturellement à nous intéresser à l'évolution de la réponse avec celle de la taille du spot [SB90, SB92]. Pour cela, nous supposons que le faisceau est absorbé sur une longueur L du semiconducteur et qu'il reste de diamètre constant sur cette longueur¹⁰. La figure 1.11(b) représente l'évolution de la réponse du détecteur lorsque celui-ci est déplacé selon l'axe du faisceau incident, l'axe z , et que la puissance incidente est constante, égale à $25 \mu\text{W}$. En supposant le faisceau gaussien, l'évolution de son rayon w dans la zone d'absorption de cristal semiconducteur ($z = z_{Abs}$) en fonction de la position z_{det} du

¹⁰. La longueur L est la longueur sur laquelle l'absorption à deux photons peut donner lieu à l'émission d'un photoélectron dans le vide c'est-à-dire celle de la zone de charge d'espace ($\sim 1 \mu\text{m}$). L'absorption a cependant lieu sur toute la longueur du cristal soit près de $300 \mu\text{m}$.

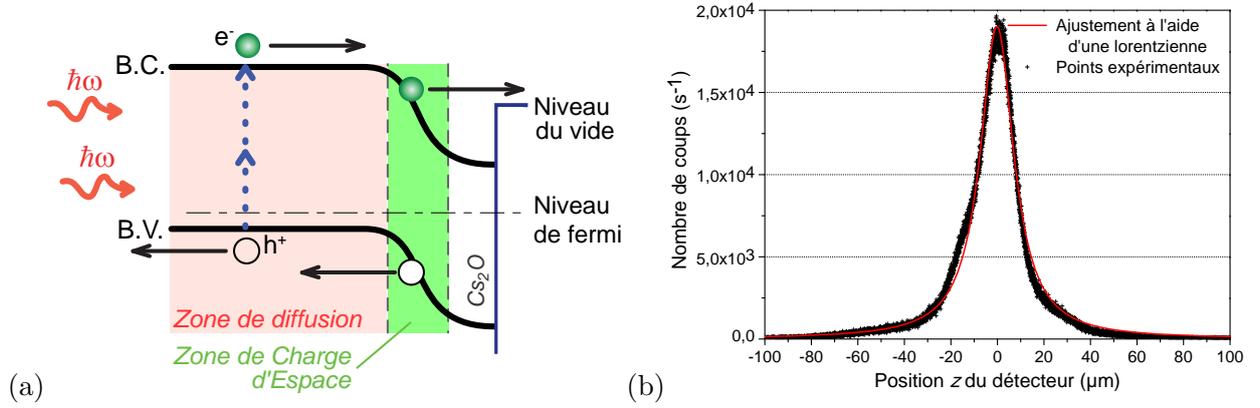


Figure 1.11: (a) Illustration de l'absorption à deux photons dans une photocathode en GaAs. L'absorption à deux photons se produit tout le long du matériau mais la contribution au signal mesuré n'est concentrée que dans la zone de charge d'espace. (b) Évolution du signal en fonction de la position du foyer du faisceau incident par rapport à la ZCE du détecteur - *Expérience de z-scan*.

détecteur est donnée par :

$$w^2(z_{Abs}) = w_0^2 \left[1 + \left(\frac{z_{det}}{z_0} \right)^2 \right] \quad (1.17)$$

où w_0 est le rayon du faisceau au foyer et $z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ est la distance de Rayleigh. En injectant la formule du rayon dans l'équation 1.7, l'évolution de la réponse avec la position est donnée par une lorentzienne :

$$N_2 = \frac{\beta' P^2}{\pi w_0^2} \frac{1}{1 + \left(\frac{z_{det}}{z_0} \right)^2} \quad (1.18)$$

où N_2 est le nombre de coups mesurés. La courbe rouge de la figure 1.11(b) représente l'ajustement des points expérimentaux avec une courbe lorentzienne. L'identification des paramètres permet de déduire les valeurs du rayon $w_0 = 2,1 \mu\text{m}$ et du coefficient de comptage à deux photons en régime de comptage de photons $\beta' = 402 \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. Pour remonter des valeurs en comptage de photons à des unités plus communes, le coefficient de comptage peut être rapporté au coefficient usuel par (*e.g.* Chap. 2) :

$$\beta = \frac{2hc}{L\lambda} \beta' \quad (1.19)$$

où h est la constante de Planck, c la vitesse de la lumière, λ la longueur d'onde de la source et L la longueur d'interaction – celle de la zone de charge d'espace ($1 \mu\text{m}$ - représentant la zone utile d'absorption - Fig. 1.11(a)). La valeur correspondante pour le coefficient d'absorption à deux photons β , de $10,25 \text{ cm} \cdot \text{GW}^{-1}$ à $1,55 \mu\text{m}$, est un peu plus faible que la valeur attendue¹¹ de $13,6 \text{ cm} \cdot \text{GW}^{-1}$. On peut toutefois noter qu'il s'agit d'un accord tout à fait acceptable si on considère que peu de caracté-

11. La valeur du coefficient d'absorption à deux photons de $13,6 \text{ cm} \cdot \text{GW}^{-1}$ à $1,55 \mu\text{m}$ est extrapolée de la valeur à $1,064 \mu\text{m}$ de $22 \text{ cm} \cdot \text{GW}^{-1}$ issue de [Hut92] à l'aide de l'équation 1.15. Les incertitudes de mesures reportées dans la littérature lors de la mesure de β par *z-scan* sont relativement grandes et on peut trouver aisément un facteur deux ou trois entre différentes mesures.

ristiques sur les pertes au sein du détecteur sont connues, comme par exemple l'efficacité d'émission des électrons dans le vide ou les propriétés anti-reflets de la vitre d'entrée ou du cristal de GaAs du détecteur. Enfin, l'ajustement de la lorentzienne (Fig. 1.11(b)) est très proche de la courbe expérimentale et la valeur du rayon minimum du faisceau correspond bien aux prévisions réalisées lors de la conception de l'expérience.

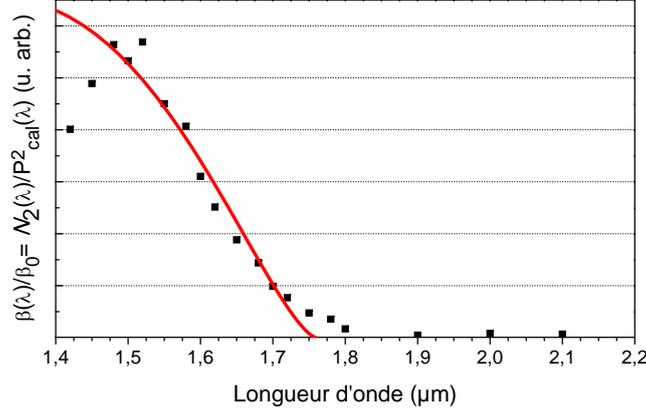


Figure 1.12: Absorption relative du coefficient d'absorption à deux photons β en fonction de la longueur d'onde d'excitation.

L'un des derniers points permettant de conclure sur la nature du phénomène observé et la validité de l'équation 1.7 est l'évolution de la constante d'absorption à deux photons en fonction de la longueur d'onde. Pour cela, le laser fibré est remplacé par un supercontinuum Koheras fortement atténué. La source délivre des impulsions de 20 ns à 25 kHz d'une puissance moyenne totale de 125 mW avec un spectre continu de 700 nm à 2,2 μm . Le signal est atténué à l'aide de différentes densités optiques et filtré par une lame de silicium pour s'assurer de l'absence de résidu de signal à un photon. L'analyse en longueur d'onde sera réalisée grâce à un filtre interférentiel tournant¹² qui nous impose la plus courte longueur d'onde (1,4 μm). L'évolution relative du coefficient d'absorption à deux photons est présentée sur la figure 1.12. La source et le filtre sont calibrés en fonction de la longueur d'onde ce qui va permettre d'extrapoler la valeur relative du coefficient d'absorption. La courbe rouge correspond à l'évolution théorique du coefficient d'absorption à deux photons, prévue par l'équation 1.15 et adaptée au comptage de photons :

$$\beta'(\omega) \propto \frac{(2\hbar\omega - E_g)^{3/2}}{(2\hbar\omega)^6}. \quad (1.20)$$

L'accord entre les deux courbes est assez bon. La déviation aux basses longueurs d'ondes est due à l'endommagement local du filtre interférentiel. Le fait que le signal ne s'annule pas complètement aux plus hautes longueurs d'ondes est probablement dû à la présence de bandes de défauts de type *Urbach tails* [Gre95]. Enfin, la courbe illustre la très grande bande passante du détecteur permettant d'étudier par absorption à deux photons différentes sources entre 1,1 μm et 1,7 μm ¹³.

12. Il s'agit d'un filtre dont la longueur d'onde transmise varie en fonction du point d'impact du faisceau sur le filtre.

13. La limite basse en longueur d'onde est imposée par le filtre en Silicium destiné à protéger notre détecteur. La limite haute est donnée par la moitié de l'énergie de la bande de transition. On notera cependant que l'incertitude de

1.3.4 Histogrammes de comptage à deux photons

L'étude de sources continues au moyen du comptage à deux photons étant récente, peu de données existent sur la réponse des détecteurs. En particulier, aucune donnée expérimentale n'a pu être trouvée en ce qui concerne les statistiques de comptage à deux photons. La figure 1.13(a) représente des histogrammes typiques obtenus à partir d'une source ASE, d'une lampe halogène et d'un laser. On y observe la probabilité de mesurer N_2 coups d'absorption à deux photons en fonction du nombre de coups N_2 mesuré durant un intervalle T, ici de 10 ms. Les courbes bleues représentent l'ajustement des histogrammes avec une statistique poissonnienne. La similitude entre les statistiques apparaît clairement mais est quelque peu surprenante à première vue. En effet si les statistiques à un photon sont poissonniennes avec le nombre de photons incidents $n(t)$, la statistique à deux photons issu du processus en $n(t)^2$ devrait être super-poissonnienne. Le rapport entre la variance $(\Delta N_2)^2$ et la moyenne $\langle N_2 \rangle$ du signal à deux photons observé avec la source ASE est présenté sur la figure 1.13(b) en fonction de la puissance incidente. La statistique reste poissonnienne et indépendante de la puissance. Ce comportement poissonnien, remis en question par le bruit de partition d'un détecteur avec une faible efficacité quantique, requiert donc une analyse plus approfondie pour un détecteur non linéaire. Ce traitement sera effectué au chapitre 2.

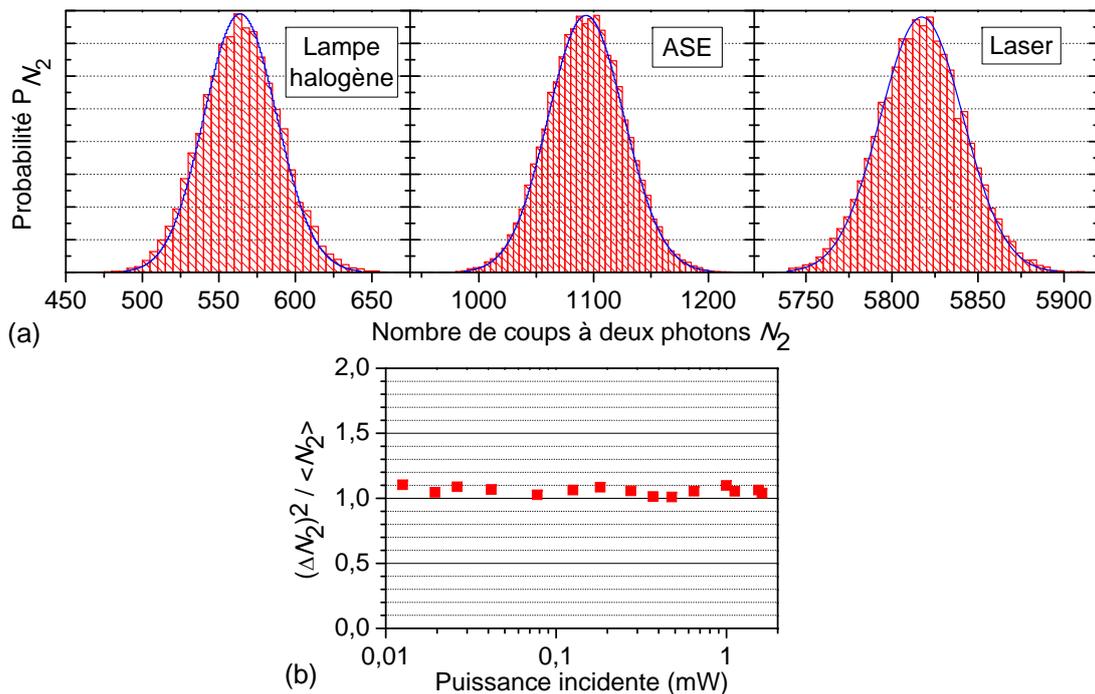


Figure 1.13: (a) Histogrammes du nombre de coups à deux photons N_2 pour deux types de sources chaotiques, une source ASE et une lampe halogène, et un laser. La courbe bleue représente l'ajustement par une distribution poissonnienne. (b) Rapport de la variance $(\Delta N_2)^2$ et de la moyenne $\langle N_2 \rangle$ de la statistique à deux photons d'une source ASE en fonction de la puissance incidente.

mesure est relativement grande (due au filtre tournant) et qu'il n'est donc pas possible de déterminer précisément cette valeur. Ce point peut s'avérer d'une importance certaine si l'on veut modéliser le comportement du détecteur lors de l'absorption à deux photons de longueurs d'ondes différentes (partie 1.4 et annexe D).

Le photomultiplicateur équipé d'une photocathode en GaAs répond ainsi parfaitement à nos attentes. D'une part, sa réponse reste quadratique sur plusieurs ordres de grandeur et d'autre part, son énergie de bande interdite permet de détecter, entre autres, les signaux aux longueurs d'ondes télécom pour lesquels différentes applications sont envisageables et où de nombreuses sources ont été développées.

1.3.5 Influence de la polarisation sur l'absorption à deux photons

Comme nous l'avons vu dans la partie 1.1.2, l'analyse de l'influence de la polarisation sur la réponse peut fournir différentes indications sur l'orientation cristalline du détecteur. Deux comportements de la réponse vont nous intéresser particulièrement. Tout d'abord l'influence de l'angle de la polarisation en polarisation rectiligne dans le plan du cristal puis l'influence du degré d'ellipticité de l'onde incidente. Le vecteur champ électrique est supposé parallèle au plan du détecteur et donc perpendiculaire à l'axe de propagation du faisceau. Le montage expérimental est basé sur celui présenté à la figure 1.7. La source est la diode laser à $1,55 \mu\text{m}$ à une puissance de $70 \mu\text{W}$. De manière à asseoir la véracité des résultats, les expériences ont été réalisées sur les deux détecteurs en mode Geiger, la photodiode à avalanche Si et le photomultiplicateur GaAs.

Pour les deux détecteurs, lorsque la lumière est polarisée linéairement, la variation de l'angle de polarisation à l'aide d'une lame demi-onde n'a aucune influence sur la réponse à deux photons. Le silicium étant normalement isotrope, ce comportement n'est pas surprenant et n'apporte pas d'indication supplémentaire. En revanche l'arséniure de gallium étant anisotrope, l'axe de croissance est désormais connu. Le tableau 1.2 confirme que l'indépendance à l'angle de polarisation d'un cristal anisotrope n'est possible que si il est orienté selon l'axe $[111]$ ¹⁴.

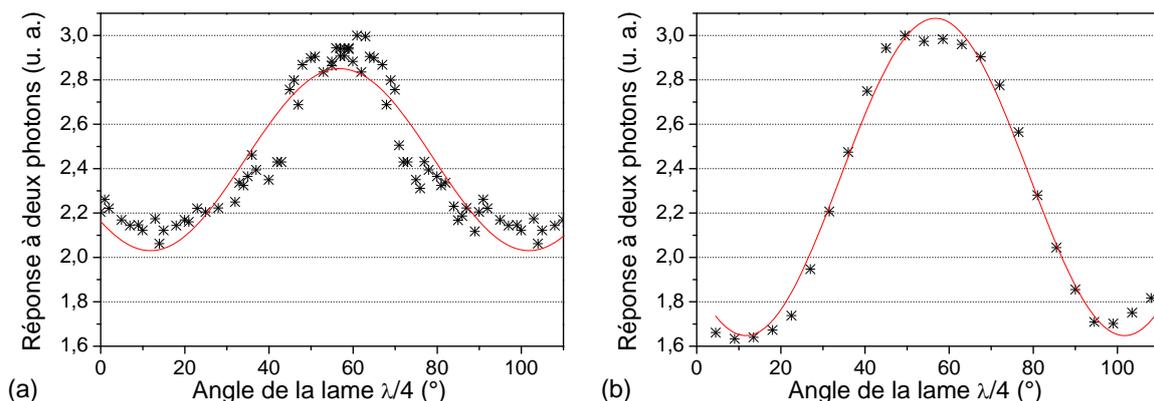


Figure 1.14: Influence du degré d'ellipticité de l'onde sur la réponse à deux photons du (a) détecteur à avalanche Si et du (b) photomultiplicateur GaAs.

14. Il est intéressant de constater que cette indépendance permet aussi d'exclure l'existence de processus parasites comme le doublage de fréquence dans le GaAs suivi de l'absorption immédiate du photon créé. En effet, le rendement de ce type de processus dépendrait de la polarisation. Dans le cas de l'orientation selon l'axe $[111]$, une modulation de l'intensité mesurée de l'ordre de 20% avec l'angle de la polarisation est attendue.

L'étude de l'influence du degré d'ellipticité est réalisée à l'aide d'une lame quart d'onde placée en aval de la lame demi onde. Comme le montre la figure 1.14, l'influence de la polarisation est ici fortement marquée. Le maximum d'intensité est atteint pour la polarisation linéaire tandis que le minimum correspond à une polarisation circulaire. Le rapport des intensités maximum et minimum conduit à :

- pour Si :
$$\frac{\beta_{lin}}{\beta_{circ}} = 1,4;$$
- pour GaAs :
$$\frac{\beta_{lin}}{\beta_{circ}} = 1,8.$$

Le rapport expérimental obtenu avec le silicium est proche de la valeur théorique de 1,5 mais celui obtenu avec l'arséniure de gallium est relativement élevé. Le montage expérimental est le même pour les deux détecteurs et la déviation observée n'est pas mentionnée dans la littérature – assez pauvre sur le sujet – et constitue l'unique “anomalie” pour ce détecteur. Ce comportement se retrouve en différents points du détecteur.

1.3.6 Comparaison entre l'absorption à deux photons et la somme de fréquences

Nous nous proposons de comparer théoriquement les processus de somme de fréquences et d'absorption à deux photons. Il va s'agir de déterminer les caractéristiques d'un cristal doubleur de fréquence permettant d'étudier les propriétés des sources accessibles au moyen du détecteur équipé d'une photocathode en GaAs. Les résultats présentés dans la littérature font régulièrement mention de très bon rendement en ce qui concerne les dispositifs de détection reposant sur la somme de fréquences. Bien souvent, les deux techniques, l'absorption à deux photons et la somme de fréquences, sont concurrentes et si l'on accorde l'avantage de la simplicité à un montage d'absorption à deux photons, on lui reproche son très faible rendement.

La bande interdite du GaAs permet l'étude d'une source dont le spectre, que l'on supposera rectangulaire par soucis de simplicité, s'étend de 1,1 μm à 1,7 μm . Au vu de ces bonnes propriétés et de sa forte utilisation, nous considérerons un cristal non linéaire de niobate de lithium, LiNbO_3 périodiquement retourné, selon son coefficient d_{33} qui possède la meilleure efficacité de conversion, soit un coefficient effectif $d_{eff} = \frac{2}{\pi}d_{33}$. Pour réaliser la conversion de fréquence de 1400 nm vers 700 nm, le pas du cristal Λ , de deux longueurs de cohérence L_c , doit être de :

$$\Lambda = 2L_c = \frac{\pi c}{\Delta n \omega_0} \quad (1.21)$$

où ω_0 est la fréquence centrale de la source et $\Delta n = n_{2\omega_0} - n_{\omega_0}$ la différence d'indice au sein du cristal. Du fait du retournement périodique des domaines, le désaccord de phase Δk_{max} pour des fréquences $\omega = \omega_0 + \frac{\Delta\omega}{2}$ en bord de spectre s'écrit :

$$\Delta k_{max} = \frac{\Delta n \Delta\omega}{c}. \quad (1.22)$$

L'intensité générée de seconde harmonique $I_{2\omega}$ à partir d'une source de largeur $\Delta\omega$ peut être estimée par [Ros02] :

$$I_{2\omega} \simeq 2 \left(\frac{Z_0}{n_{2\omega_0}} \right)^3 (\omega_0 \varepsilon_0 d_{eff} L_{max})^2 \text{sinc}^2 \frac{\Delta k_{max} L_{max}}{2} \left(\frac{I_\omega}{2} \right)^2 \quad (1.23)$$

où Z_0 est l'impédance du vide, $n_{2\omega_0}$ l'indice de réfraction du cristal à la fréquence $2\omega_0$, d le coefficient non linéaire, L_{max} la longueur maximum du cristal correspondant à la bande passante $\Delta\omega$ et Δk_{max} le désaccord de phase en bord de spectre. Pour que la bande passante du cristal soit accordée avec celle de la source, la longueur du cristal ne doit pas dépasser la valeur critique $\Delta k_{max} L_{max} = \pi$, soit :

$$L_{max} = \frac{\pi c}{\Delta n \Delta \omega} = \frac{2\omega_0}{\Delta \omega} L_c. \quad (1.24)$$

En supposant que toute la lumière générée par sommes de fréquences sur une surface S est détectée par un compteur à un photon de rendement quantique unitaire, le taux de comptage des photons 2ω est donné par :

$$J_2^{SHG} \simeq \frac{4}{\hbar \omega_0} \left(\frac{Z_0}{n_{2\omega}} \right)^3 \left(\frac{c \varepsilon_0 d_{33}}{\Delta n} \right)^2 \frac{1}{(\Delta \omega / \omega)^2} \frac{P_\omega^2}{S} = \beta^{SFG} \frac{P_\omega^2}{S}. \quad (1.25)$$

En comparant l'expression de β^{SFG} et celle de $\beta^{(2ph)}$, le dénominateur $(\Delta \omega / \omega)^2$ n'apparaît pas dans l'expression à deux photons et est en fait une conséquence des contraintes dues à l'accord de phase dans les processus de sommes de fréquences. Cette composante montre l'intérêt de l'absorption à deux photons pour des sources larges spectralement. Par exemple, en considérant un cristal de PPLN ($d_{33} = 27$ pm/V) avec une acceptation spectrale s'étendant de $1,1 \mu\text{m}$ à $1,7 \mu\text{m}$ ($\Delta \omega / \omega \simeq 0,45$), une différence d'indice estimé à $1,4 \mu\text{m}$ égal à $\Delta n = 0,047$ (soit $L_c = 7,4 \mu\text{m}$ et $L_{max} = 33 \mu\text{m}$) le calcul du coefficient de doublage β^{SFG} aboutit à :

$$\beta^{SFG} \simeq 1655 \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}.$$

Dans le cas de la technique d'absorption à deux photons, le coefficient d'absorption à deux photons est de $21,5 \text{ cm} \cdot \text{GW}^{-1}$ à $1,4 \mu\text{m}$ pour une couche d'absorption de l'ordre du micromètre, ce qui correspond à une valeur de :

$$\beta^{(2ph)} = 755 \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}.$$

Les deux techniques ont donc des efficacités théoriques comparables. Cependant, celles reposant sur les processus de sommes de fréquences nécessitent des cristaux périodiquement retournés de seulement quelques dizaines de micromètres d'épaisseur dont la réalisation et la manipulation seraient plus que délicates et expérimentalement inenvisageable.

L'arséniure de gallium est bien plus réputé pour la valeur très élevée de son coefficient non linéaire d'ordre deux et on peut s'interroger sur la nature du processus dominant dans le cristal entre la somme de fréquences et l'absorption à deux photons. En étendant les considérations précédentes au cristal de GaAs du détecteur, et en supposant que tous les photons créés sont détectés, le taux de comptage est

donné par :

$$J_{2GaAs}^{SHG} \simeq \frac{1}{4\hbar\omega_0} \left(\frac{Z_0}{n_{2\omega}} \right)^3 (\omega_0 \varepsilon_0 d_{eff} L_{int})^2 \frac{P_\omega^2}{S} = \beta_{GaAs}^{SFG} \frac{P_\omega^2}{S} \quad (1.26)$$

où le coefficient d_{eff} est de l'ordre de 100 pm/V et la longueur d'interaction de l'ordre de celle de la zone de déplétion (1 μ m). Le calcul du coefficient de doublage dans le cristal détecteur β_{GaAs}^{SFG} aboutit à :

$$\beta_{GaAs}^{SFG} \simeq 3,4 \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$$

qui est négligeable devant l'efficacité de l'absorption à deux photons, confirmant ainsi les résultats expérimentaux de la partie 1.3.3 et 1.3.5.

1.4 Une première application au comptage de photons infrarouges par absorption à deux photons non dégénérés

L'objectif de cette partie est double. Il s'agit d'une part d'étudier le comportement d'un détecteur à deux photons non dégénérés, c'est-à-dire qui n'ont pas la même longueur d'onde, et d'autre part de montrer la faisabilité d'une nouvelle architecture de détection aux longueurs d'ondes télécom pouvant, à terme, pallier certaines limites actuelles. En effet, les communications quantiques se développent à ces longueurs d'ondes de manière à pouvoir s'intégrer facilement au réseau fibré existant [Rib00]. À l'heure actuelle, les semiconducteurs utilisés sont l'InGaAs/InP dont les détecteurs à avalanches ont une efficacité quantique de l'ordre de 15% et souffrent d'un nombre de coups d'obscurité important, jusqu'à $10^5 \text{ cps} \cdot \text{s}^{-1}$ à température ambiante [Rib98]. Ce bruit est dû en partie à la faible énergie de la bande interdite, ce qui n'est pas le cas des détecteurs visibles réalisés à partir de Si ou GaAs. Cependant, l'énergie de transition de ces derniers est cette fois-ci trop élevée pour permettre la détection de photons aux longueurs d'ondes concernées. Récemment, l'utilisation de processus de sommes de fréquences dans un cristal non linéaire a permis de contourner cette difficulté avec un très bon rendement quantique, supérieur à 40%, limité toutefois par la bande passante très réduite du processus de conversion de fréquence [Lan05, The08, Tem06].

En parallèle à nos travaux et s'inspirant de travaux réalisés à la fin des années cinquante par Bloembergen à partir de transition à deux photons via des niveaux réels dans un atome [Blo59, Est68], Hayat *et al.* ont proposé théoriquement d'utiliser l'absorption à deux photons non dégénérés pour détecter des photons infrarouges à l'aide d'une photodiode à avalanche silicium [Hay08].

1.4.1 Principe de l'expérience

Nous supposons ici que les transitions à un photon aux deux longueurs d'onde en présence sont impossibles, *i.e.* que les énergies des photons pompe $\hbar\omega_p$ et signal $\hbar\omega_s$ sont inférieures à celle de la bande interdite E_g :

$$\hbar\omega_p < E_g \quad \text{et} \quad \hbar\omega_s < E_g. \quad (1.27)$$

Le principe de l'absorption à deux photons non dégénérés est présenté sur la figure 1.15(a). Pour pouvoir prétendre à ce type d'absorption, il est nécessaire que la transition constituée d'un photon signal et d'un photon pompe soit autorisée :

$$\hbar\omega_p + \hbar\omega_s > E_g. \quad (1.28)$$

On peut souligner ici quelques avantages d'un tel dispositif, soulignant par ailleurs son originalité :

- L'évolution du courant d'obscurité (et donc le bruit) d'un détecteur évolue en fonction de la température, en $e^{-\frac{E_g}{kT}}$. Pour des semiconducteurs à grand gap, ce bruit est faible.
- La transition à deux photons s'effectuant entre des bandes d'énergie et non des niveaux résonnants comme dans l'idée originale de Bloembergen¹⁵, la bande de détection est donc très large, couvrant l'ensemble de la bande télécom.

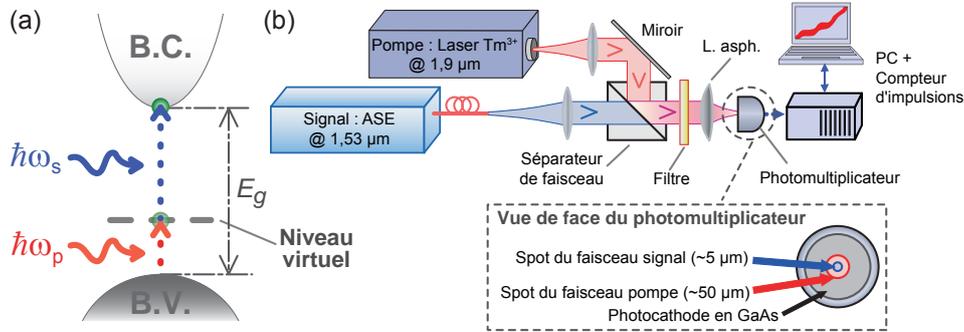


Figure 1.15: (a) Principe de l'absorption à deux photons non dégénérés. (b) Montage expérimental.

Une des conditions nécessaires à une bonne détectivité est l'impossibilité des photons de pompes à être absorbés par un processus à deux photons. Si l'énergie $\hbar\omega_p$ est inférieure à la moitié de celle de la bande interdite :

$$2\hbar\omega_p < E_g, \quad (1.29)$$

la puissance de la pompe, même très élevée, ne perturbera pas la réponse non dégénérée ($\hbar\omega_p + \hbar\omega_s$) par une réponse dégénérée parasite ($2\hbar\omega_p$)¹⁶.

Dans le cas présent, le rôle de la pompe est tenu par un laser thulium continu à 1,9 μm de 6 nm de largeur à mi-hauteur et de forte intensité (1 W). Le signal est émis par la source ASE présentée à la partie 1.3.1. Le montage expérimental est décrit sur la figure 1.15(b). Les deux faisceaux sont recombinaés à l'aide d'un cube séparateur 50/50. Une épaisse lame de silicium (4 mm) sert à filtrer les rayonnements parasites de longueurs d'ondes inférieures à 1 μm pour s'assurer de l'absence d'absorption à un photon. Les faisceaux sont ensuite focalisés sur le photomultiplicateur équipé d'une photocathode en GaAs (caractérisé à la partie 1.3). De manière à s'affranchir des problèmes mécaniques de vibration, la tache focale du faisceau de pompe est assez large (50 μm) pour contenir celle du spot signal (5 μm).

15. Bloembergen désigna ce type de détecteur sous le terme de *Solid State Infrared Quantum Counters* [Blo59].

16. Bien sûr cela réduit légèrement la bande passante du dispositif puisqu'il faut toujours que la somme des énergies soit supérieure à celle de la bande interdite.

Les moyennes sont effectuées sur 200 points, chaque point représentant le nombre de coups mesurés pendant 100 ms.

1.4.2 Caractérisation de la réponse du détecteur à deux photons non dégénérés

Dans une approche semi-classique, le nombre moyen de photoélectrons émis depuis la zone de charge d'espace de la photocathode en GaAs est donné par une approximation des équations couplées [Hut92]¹⁷ :

$$\langle n \rangle = \langle n_{s,s} \rangle + \langle n_{p,p} \rangle + \langle n_{s,p} \rangle = \eta_s P_s^2 + \eta_p P_p^2 + \eta_{s,p} P_s P_p' \quad (1.30)$$

où $\langle n_{s,s} \rangle$ et $\langle n_{p,p} \rangle$ sont les nombres de coups dus à l'absorption dégénérée du signal ($2\hbar\omega_s$) et de la pompe ($2\hbar\omega_p$), respectivement. Le terme $\langle n_{s,p} \rangle$ quant à lui représente la réponse due à l'absorption non dégénérée ($\hbar\omega_p + \hbar\omega_s$). Les efficacités d'absorption et les puissances utiles¹⁸ sont associées à η et P liés à leurs sources indiquées en indice. Les efficacités dégénérées et non dégénérées dépendent de la constante d'absorption à deux photons¹⁹ et de la taille des taches focales :

$$\eta_s \propto \frac{\beta_s}{(S_s)_{GaAs}} \quad \text{et} \quad \eta_{s,p} \propto \frac{\beta_{s,p}}{(S_s \cap S_p)_{GaAs}} \quad (1.31)$$

où $(S_s)_{GaAs}$ et $(S_s \cap S_p)_{GaAs}$ représentent la taille des taches dues au signal et à l'intersection du signal et de la pompe sur le détecteur, respectivement.

L'équation 1.30 est illustrée par les résultats présentés sur la figure 1.16. La réponse à deux photons du détecteur due à la pompe seule, c'est-à-dire avec une puissance signal nulle, est présentée en fonction de la puissance de pompe sur la figure 1.16(a). Le caractère quadratique du signal observé est la preuve de la réponse résiduelle à deux photons due à l'absorption dégénérée de la pompe. Cette réponse résiduelle est inattendue puisque l'énergie des photons de pompe, 0,65 eV, est plus faible que la moitié de celle de la bande interdite, $E_g/2 = 0,71$ eV. Cependant, comparée au signal d'absorption à deux photons dégénérés à 1,53 μm représenté par la courbe rouge sur la figure 1.16(b), l'efficacité du processus précédent est très faible. L'absorption parasite de la pompe peut être attribuée à la présence de défauts profonds situés au sein de la bande interdite du semiconducteur ou à des effets de type Franz-Keldysh à deux photons [Gar06a]. La figure 1.16(b) montre l'évolution de la réponse où l'absorption parasite a été soustraite en fonction de la puissance du signal pour différentes puissances de pompe. Elle représente donc $\langle n \rangle - \langle n_{p,p} \rangle = \langle n_{s,s} \rangle + \langle n_{s,p} \rangle$, *i.e.* le nombre de photons signaux mesurés en fonction de la puissance incidente. L'ajout de la pompe augmente considérablement le nombre des photons signaux détectés, d'un facteur pouvant atteindre 300, comme l'encart de la figure 1.16(b)

17. La relation 1.30 est en réalité une solution approximative des équations couplées qui suppose que les puissances $P_{s,p}$ ne varient pas sur la longueur d'absorption L . Aux vues des rendements de l'absorption à deux photons, l'hypothèse est bien entendu vérifiée sur de nombreux ordres de grandeur.

18. Les puissances utiles sont les fractions des puissances incidentes susceptibles de participer à l'absorption à deux photons non dégénérés. Ainsi si la puissance P_p est celle de la pompe, la puissance P_p' est donnée par : $P_p' = P_p \frac{(S_s \cap S_p)_{GaAs}}{(S_p)_{GaAs}}$.

19. Le coefficient d'absorption à deux photons non dégénérés en régime de comptage de photons est proportionnel à [SB91] : $\beta(\omega_1; \omega_2) \propto \frac{[\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 - E_g]^{3/2}}{\omega_1^2 \omega_2^2} \left[\frac{1}{\hbar\omega_1} + \frac{1}{\hbar\omega_2} \right]^2$.

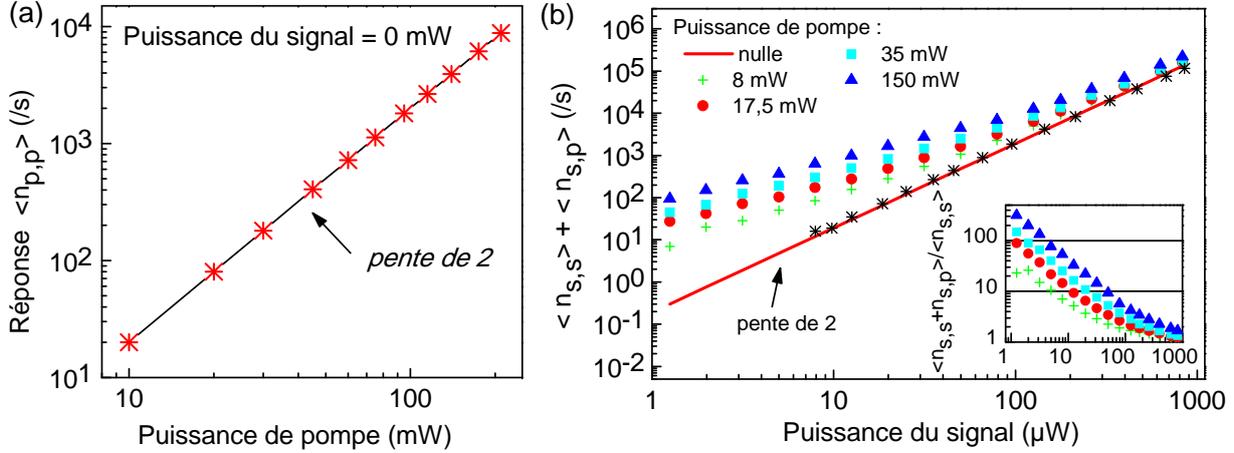


Figure 1.16: (a) Absorption à deux photons dégénérés de la pompe $\langle n_{p,p} \rangle$ en fonction de la puissance de pompe, soustrait dans les graphes suivants. (b) Nombre de coups dus à l'absorption dégénérée et non dégénérée des photons signal $\langle n_{s,s} + n_{s,p} \rangle$ à différentes puissances de pompes fixées en fonction de la puissance du signal. Les croix noires (la courbe rouge) représentent la réponse expérimentale (l'extrapolation) à deux photons lorsque l'intensité de pompe est nulle. L'encart montre l'amplification de la réponse due à l'effet d'addition non dégénérée relativement au signal à deux photons dégénérés.

le souligne. Cette démultiplication de la réponse diminue lorsque la puissance du signal augmente, la réponse du signal dégénéré à $1,53 \mu\text{m}$ prenant le pas sur celle de l'addition pompe-signal. Pour isoler la contribution issue de l'absorption non dégénérée uniquement, il suffit de soustraire la réponse du signal dégénéré (la courbe rouge sur la figure 1.16(b)) conduisant à $\langle n_{s,p} \rangle = \langle n \rangle - \langle n_{p,p} \rangle - \langle n_{s,s} \rangle$. Le résultat, présenté sur la figure 1.17(a), correspond donc à la réponse due à l'absorption non dégénérée en fonction de la puissance du signal pour différentes puissances de pompe. Comme prévu par l'équation 1.30, la variation de $\langle n_{s,p} \rangle$ est bien linéaire. Dans l'encart de la figure 1.17(a), on peut observer l'évolution de la contribution non dégénérée en fonction de la longueur d'onde sur 80 nm , limite imposée par la source accordable TUNICS. La lente évolution de la réponse suit les variations du coefficient d'absorption à deux photons β lorsque $\hbar\omega_p + \hbar\omega_s$ s'approche de l'énergie de la bande interdite. Clairement, cela montre la large bande passante de détection puisqu'aucune condition d'accord de phase ou de résonance ne doit être satisfaite. La valeur de l'efficacité de détection à deux photons non dégénérés $\eta_{s,p}$ peut être évaluée expérimentalement à partir de :

$$\eta_{s,p} = \frac{\langle n \rangle - \langle n_{p,p} \rangle - \langle n_{s,s} \rangle}{P_s P'_p} \quad (1.32)$$

où la valeur de la puissance de pompe P'_p est calculée en prenant en compte le recouvrement des taches focales de la pompe et du signal, supposées gaussiennes. Les résultats de ce calcul apparaissent sur la figure 1.17(b) pour différentes puissances de signal et de pompe. L'efficacité quantique obtenue dans ces conditions expérimentales²⁰ est de $10^{-10}\%$ ce qui correspond à une efficacité quantique à peu près

²⁰. L'efficacité de $10^{-10}\%$ correspond au nombre de photons signal détecté par rapport au nombre de photon signal total.

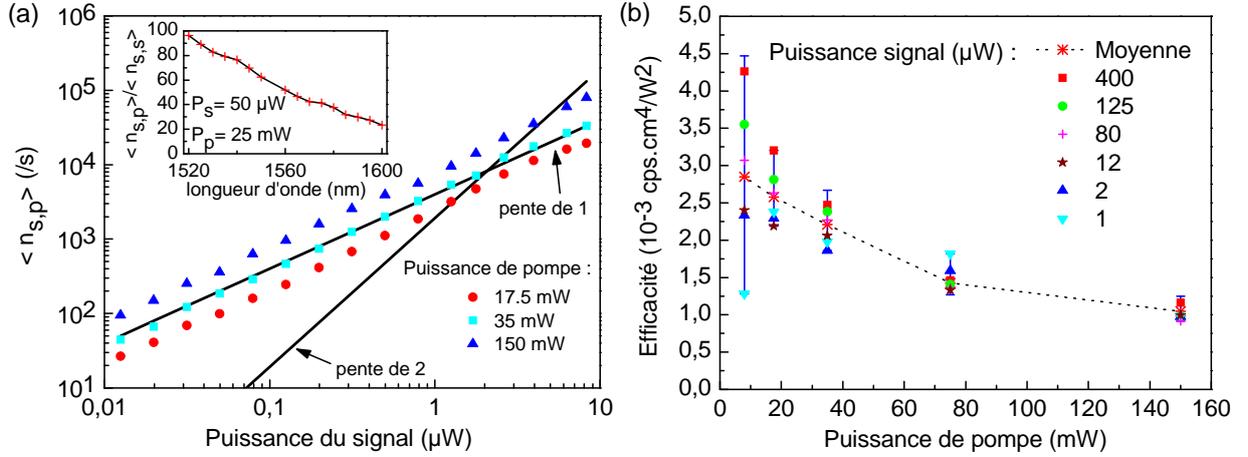


Figure 1.17: (a) Nombre de coups $\langle n_{s,p} \rangle$ dus à l'absorption à deux photons du signal non dégénéré en fonction de la puissance du signal pour différentes puissances de pompe fixées. Les deux droites noires représentent un comportement linéaire (pente de 1) et quadratique (pente de 2). L'encart montre le rapport $\langle n_{s,p} \rangle / \langle n_{s,s} \rangle$ à des puissances de pompe et de signal fixées en fonction de la longueur d'onde signal. (b) Efficacité de détection à deux photons non dégénérés pour différentes puissances signal fixées en fonction de la puissance de pompe.

constante de $\eta_{s,p} \simeq 2.10^{-3} \text{ cm}^4 \cdot \text{W}^2$ pour une puissance de pompe inférieure à $3,5.10^3 \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Pour des puissances de pompes supérieures, cette efficacité diminue, probablement du fait d'effets thermiques dans le détecteur.

À notre connaissance, ceci constitue la première réalisation de la proposition de *Solid State Infrared Quantum Counters*. L'efficacité du processus est certes très faible, mais au vu des améliorations envisageables du détecteur, le résultat est prometteur. En premier lieu, la détectivité peut être augmentée en allongeant la longueur d'interaction, dans un guide d'onde par exemple [Lau94]. Ensuite, l'intensité de la pompe reste faible et il est possible de l'augmenter considérablement. Là encore une structure guidante semble être un bon exemple tout comme une micro-cavité [Fol02a, Fol02b]. Enfin, au détriment de la bande passante, les détecteurs à puits quantiques semblent posséder de très bonnes propriétés d'absorption à deux photons comme le rapportent les travaux de Schneider *et al.* [Sch08].

Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons insisté sur quatre propriétés qui permettent de caractériser le régime d'absorption à deux photons dans un semiconducteur : (i) la réponse quadratique du détecteur en fonction du flux lumineux incident, (ii) la réponse inversement proportionnelle à la taille de la tache focale sur le détecteur, (iii) l'évolution de la constante d'absorption à deux photons avec la longueur d'onde et enfin (iv) la dépendance de l'absorption à deux photons à la polarisation du champ incident. Nous avons vu l'illustration et la vérification expérimentale de ces propriétés dans un détecteur équipé d'une photocathode en GaAs. De plus, nous avons observé que les sources "classiques", comme un corps noir, une source ASE, ou un laser, conduisent irrémédiablement à l'observation d'histogrammes à deux photons relevant d'une statistique poissonnienne. L'étude d'autres semiconducteurs, en particulier le silicium et l'InGaAs, nous a permis de conclure quant à la validité de notre choix de détecteur. Par exemple, la déviation au comportement usuel à deux photons du détecteur silicium est problématique pour l'application visée. Enfin, nous avons montré la faisabilité d'une détection par absorption à deux photons à des longueurs d'onde non dégénérées, réalisant pour la première fois la proposition de Bloembergen de *Solid State Infrared Quantum Counters*.

Dans le prochain chapitre, nous allons nous attacher à développer les aspects théoriques qui ne sont pas couverts par l'optique non linéaire.

Chapitre 2

Développement d'un modèle quantique de comptage à deux photons

Objectifs

Si l'influence de l'absorption à deux photons sur la lumière a été largement étudiée depuis quelques dizaines d'années, d'un point de vue théorique mais aussi pratique, très peu de travaux permettent cependant de décrire la situation "inverse", c'est-à-dire la relation entre le flux lumineux incident et la statistique des photo-électrons d'un détecteur à deux photons. L'objet du présent chapitre est de présenter brièvement les différentes approches semi-quantiques existantes et d'établir les bases d'un modèle quantique de comptage à deux photons afin de pouvoir interpréter les statistiques observées au chapitre 1 et analyser en détail ce processus.

Dans la plupart des cas, il s'agira d'étendre le modèle de détection à un photon vers un modèle à deux photons. Nous nous intéresserons ainsi dans un premier temps à la description semi-classique du comptage à deux photons et nous verrons comment il est possible d'intégrer les fluctuations temporelles du flux lumineux afin de rendre compte des statistiques observées expérimentalement. Par la suite, nous verrons en quoi les opérateurs quantiques de détection – étendus à deux photons – permettent de refléter les résultats expérimentaux lorsque l'efficacité du processus est très faible – sans toutefois pouvoir les justifier rigoureusement. Pour établir une expression rigoureuse de l'opérateur de comptage à deux photons, la prise en compte de l'efficacité du processus est nécessaire. Pour cela, nous reprendrons et étendrons à deux photons la démarche développée par Mollow [Mol68a] permettant l'établissement de l'opérateur de comptage à un photon, opérateur reflétant entre autre l'influence de l'efficacité de détection sur le champ incident aussi bien que sur le photo-courant mesuré.

Depuis l'apparition du laser, de nombreuses études ont porté sur la description statistique de la lumière et sur les outils permettant sa mesure tels les compteurs de photons [Mor66]. Elles ont contribué à l'établissement de la théorie quantique actuelle dont le formalisme permet de décrire les propriétés statistiques des champs de photons tout autant que les variations introduites par le biais de la mesure – et de son imperfection. À titre d'exemple, on peut citer les travaux sur les premières mesures des statistiques de photons d'un laser au dessus et en dessous du seuil¹, réalisés par Freed et Haus [Bel64, Fre65, Fre66]. Ces différents travaux ont donné lieu à des développements théoriques permettant d'expliquer les statistiques de mesure à un photon. Parmi les résultats les plus remarquables sur la description de la détection figurent ceux de Kelley et Kleiner [Kel64] et de Mollow [Mol68a] (Annexe A.1). Les premiers, par leur approche statistique fort complexe, ont démontré les conséquences d'une mesure imparfaite de manière équivalente à une description à l'aide de $POVM^2$ et ce avant que leurs développements mathématiques ne soient utilisés en physique [Hel76]. Mollow, quant à lui, a permis de réconcilier l'approche perturbative semi-classique, valable dans la limite des faibles rendements d'absorption, et l'approche hamiltonienne purement quantique : en considérant astucieusement le grand nombre de mauvais détecteurs constitués par chaque atome contenu dans un détecteur, il est possible d'étudier l'influence d'un rendement quantique quelconque³ – pouvant être idéal.

2.1 Approche semi-classique de l'absorption à deux photons

Pour rendre compte des résultats expérimentaux des statistiques de comptage à deux photons (Chap. 1), le premier modèle utilisé consiste en une approche semi-classique⁴ – usuellement utilisé pour calculer les coefficients non-linéaires d'ordre trois [But90] – où les électrons au sein du semiconducteur seront traités par la mécanique quantique tandis que la lumière sera considérée comme une onde électromagnétique⁵ de fréquence ω et d'amplitude complexe E^+ . Les énergies des électrons dans le semiconducteur se répartissent sur celles des bandes de valence et de conduction, séparées par l'énergie de la bande interdite E_g . Afin de ne prendre en compte que les transitions à deux photons, la fréquence de l'onde incidente sera prise de manière à se trouver entre celle de la bande interdite et la moitié de

1. Les distributions de Poisson et de Bose-Einstein observées expérimentalement sont souvent associées à la statistique des photons issus respectivement d'un laser monomode et d'un corps noir. Il est évident que le détecteur utilisé par les auteurs n'a pas été à même de résoudre temporellement la cohérence du corps noir qui aurait permis l'observation de cette statistique [Joh66, Jak68]. Il s'agit en fait des vibrations mécaniques du montage – celles non souhaitées d'un miroir vers 100 Hz – qui a conduit à l'introduction d'une phase supplémentaire possédant un temps de cohérence mesurable expérimentalement.

2. $POVM$: *Positive Operator Valued Measure*.

3. On doit par ailleurs à cette approche une élégante validation du modèle quantique d'un détecteur imparfait par un séparateur de faisceau placé devant un détecteur hypothétiquement idéal.

4. Une description corpusculaire stochastique à deux photons est proposée à l'annexe A.2. De part son approche purement statistique, cette approche permet de retrouver certains des résultats expérimentaux mais manque cruellement de "réalité" physique.

5. On trouvera au fil des parties 2.1 et 2.2 le terme "photon". Il se rapporte ici à l'approche corpusculaire simple visant à faire le parallèle avec la théorie quantique. Dans ce cas, le nombre de photon évoqué est simplement donné par $\frac{P}{\hbar\omega}$.

celle-ci :

$$\frac{E_g}{2} < \hbar\omega < E_g. \quad (2.1)$$

Nous limiterons la présente étude à celle de l'absorption à deux photons⁶.

2.1.1 Traitement perturbatif du système par la seconde règle d'or de Fermi

Suite à un traitement perturbatif de l'Hamiltonien du système, la probabilité de création d'une paire électron-trou par unité de temps et de volume est donnée par la seconde règle d'or de Fermi, soit par une expression de la forme [GM31, Ros02] :

$$R^{(2)} = \xi^{(2)} |E^+|^4 = \xi^{(2)} (E^- E^+)^2 = \frac{4n}{\varepsilon c} \xi^{(2)} I^2 \quad (2.2)$$

qui demeure vraie tant que le rendement du processus est faible. $I = E^- E^+$ est l'intensité de l'onde incidente, n et ε sont respectivement l'indice de réfraction et la permittivité électrique au sein du matériau. $\xi^{(2)}$ est donné par [Ros02] :

$$\xi^{(2)} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \sum_n \frac{\langle f | q\hat{z} | n \rangle \langle n | q\hat{z} | i \rangle}{E_n - E_i - \hbar\omega} \right|^2 \delta_T(E_{fi} - 2\hbar\omega) \quad (2.3)$$

où les états $|i\rangle$ et $|f\rangle$ sont les états de Bloch de l'électron dans, respectivement, les bandes de valence d'énergie E_i et de conduction d'énergie E_f . Les états $|n\rangle$ quant à eux sont les états intermédiaires d'énergie E_n qui permettent la transition à deux photons. La fonction δ_T permet d'assurer la conservation de l'énergie au cours du processus à deux photons⁷. L'évaluation de $\xi^{(2)}$ est un problème physique complexe et nous n'aurons pas la prétention de pouvoir le résumer ici [But90, SB91, Ave94].

Du fait de la délocalisation de l'électron dans l'ensemble du cristal, le taux de transition $R^{(2)}$ s'exprime en $\text{s}^{-1} \cdot \text{W}^{-1}$ [Ros02]. Comme lors de l'approche basée sur l'optique non linéaire (Partie 1.1.1), nous supposons ici, pour pouvoir remonter aisément à la réponse du détecteur, que le faisceau est de section constante dans le semiconducteur, de puissance incidente $P = IS$, et qu'il se propage selon l'axe z . L'absorption à deux photons conduit à une évolution dP de la puissance incidente donnée par :

$$dP = -2\hbar\omega R^{(2)} S dz = -\frac{8\hbar\omega \xi^{(2)} P^2}{(\varepsilon \frac{c}{n})^2 S} dz. \quad (2.4)$$

Cette expression de l'équation de propagation est de la forme :

$$\frac{dP}{dz} = -\beta' \frac{P^2}{S} \quad (2.5)$$

6. De ce fait, les autres processus de troisième ordre – impliquant la partie réelle du tenseur non linéaire $Re\chi^{(3)}$ par exemple – ainsi que les absorptions d'ordres supérieures – d'une très faibles probabilités – seront négligés.

7. Les états intermédiaires $|n\rangle$ sont des niveaux réels qui peuvent se trouver bien plus haut dans la bande de conduction lorsque le système est "au repos". C'est en s'appuyant sur la relation de dispersion de Heisenberg, qui permet la "délocalisation" en énergie d'un état durant un très bref intervalle temporel, que la transition à deux photons est possible. L'incertitude sur le niveau d'énergie des états $|n\rangle$ engendre l'existence de l'état virtuel, non stationnaire, brièvement introduit à la partie 1.3.1 (Fig. 1.2).

où β' est le coefficient d'absorption à deux photons, de l'ordre de 20 cm.GW^{-1} dans le GaAs, matériau constitutif de la photocathode du détecteur choisi pour conduire nos expériences. En intégrant, l'expression de la puissance $P(z)$ est obtenue immédiatement :

$$P(z) = \frac{P(0)}{1 + \beta' \frac{P(0)z}{S}} \quad (2.6)$$

et conduit aisément à celle du taux d'absorption η_1 de la puissance incidente sur une distance l donnée par :

$$\eta_1 = \frac{P(0) - P(l)}{P(0)} = \frac{\beta' \frac{P(0)z}{S}}{1 + \beta' \frac{P(0)z}{S}}. \quad (2.7)$$

Ce facteur η_1 peut être considéré comme l'efficacité quantique d'interaction à deux photons {flux lumineux + cristal semiconducteur}.

2.1.2 Réponse du compteur à deux photons

Pour pouvoir remonter à la réponse du détecteur, il est nécessaire de prendre en compte quelques caractéristiques supplémentaires. Dans un semiconducteur de type p , les électrons créés dans la zone de charge d'espace ou capturés par diffusion depuis les zones neutres sont fortement accélérés par le champ électrique appliqué (Fig. 1.5). Une partie η_2 de ces électrons est recueillie et émise dans le vide du photomultiplicateur, conduisant à l'avalanche amplificatrice via les dynodes. Un discriminateur électronique transforme alors ces pics de courant en impulsions, permettant le comptage et donnant accès au taux de comptage à deux photons N_2 en "nombre de coups. s^{-1} ". Ce taux de comptage est alors donné simplement par la moitié du nombre de photons absorbés à deux photons multiplié par le rendement de collection η_2 :

$$N_2 = \frac{1}{2} \eta_1 \eta_2 \frac{P(0)}{\hbar\omega}. \quad (2.8)$$

Haute efficacité quantique

En étendant la seconde règle d'or de Fermi à des rendements d'absorption élevés⁸, on peut s'intéresser au cas où les rendements de l'absorption à deux photons sont proches de l'unité. Dans ce cas, la puissance restante après avoir parcouru une distance l dans le semiconducteur tend vers zéro $P(l) \rightarrow 0$, ce qui implique que $\beta' P(0)l \gg S$ (Eq. 2.6) et conduit bien à un rendement quantique parfait, $\eta_1 \approx 1$. Deux photons du champ incident conduisent alors nécessairement à l'émission d'un photo-électron et le nombre de coups mesurés N_2 n'est autre que la moitié du nombre de photons incident :

$$N_2 \approx \frac{1}{2} \frac{P(0)}{\hbar\omega}. \quad (2.9)$$

Il est intéressant de constater que le traitement semi-classique perturbatif, établi à l'origine pour de faibles efficacités, reste néanmoins conforme à l'intuition aux plus forts rendements de détection. On

8. Nous justifierons de la validité de ce traitement à la partie 2.4.

notera par ailleurs que le flux de photo-électron varie désormais linéairement avec la puissance – ce qui n’est pas souhaitable pour les mesures de corrélation !

Faible efficacité quantique

Expérimentalement, le taux d’absorption local est très faible $\beta' \frac{P(0)z}{S} \ll 1$ et l’expression de l’équation 2.7 se résume alors simplement à :

$$\eta_1 \approx \beta' \frac{P(0)z}{S}. \quad (2.10)$$

L’efficacité du processus à deux photons augmente linéairement avec la puissance incidente ou à mesure que la taille du faisceau diminue, demeurant toujours extrêmement faible – de l’ordre de 10^{-10} dans notre cas. En injectant l’expression ci-dessus dans l’équation 2.8, on aboutit à une expression bien connue du nombre de coups mesurés N_2 :

$$N_2 = \frac{1}{2} \eta_1 \eta_2 \frac{P(0)}{\hbar\omega} \approx \beta \frac{P^2(0)}{S} \quad (2.11)$$

où $\beta = 4\eta_2 l \frac{\xi^{(2)}}{(\epsilon \frac{\xi}{n})^2}$ est la constante d’absorption à deux photons du détecteur à semiconducteur. L’introduction du rendement de collection η_2 permet de considérer la distance $\eta_2 l$ comme la distance effective de collection des électrons (Fig. 1.11(a)). Même si cette distance est difficile à connaître précisément, on peut estimer qu’elle se situe entre $1 \mu\text{m}$ et $10 \mu\text{m}$, ordres de grandeur des longueurs de, respectivement, la zone de déplétion et celle de diffusion des électrons.

L’expression 2.11 montre que la réponse à deux photons reste conforme à l’intuition comme le produit de la moitié du flux de photons incidents $\frac{P}{\hbar\omega}$ et des deux rendements quantiques à deux photons η_1 et η_2 du détecteur. Par ailleurs, l’expression de la réponse 2.11 (approche semi-classique explicite) est naturellement en adéquation avec celle obtenue à l’équation 1.7 (formalisme de l’optique non linéaire). La réponse est bien quadratique en puissance et confirme toujours les expériences de *z-scan* présentées à la figure 1.11.

2.2 Introduction de la dépendance temporelle

Dans le cadre de la théorie semi-classique que nous venons brièvement de développer au début de ce chapitre, le taux moyen de transition à deux photons est calculé à partir d’un traitement perturbatif de l’Hamiltonien. L’expression ainsi obtenue de la valeur moyenne de ce taux de transition par le biais de la seconde règle d’or de Fermi ne reflète pas directement la statistique du champ incident mais plutôt la nature aléatoire des transitions électroniques.

2.2.1 Approche phénoménologique des faibles rendements quantiques

La théorie statistique des transitions induites à deux photons a été étudiée de manière phénoménologique par Teich et Diamant [Tei69]. Nous présentons ici un bref aperçu de leur travaux qui sera

utile dans la suite du chapitre. À l'origine ce modèle repose sur l'approche semi-classique développée précédemment auquel s'ajoutent une hypothèse supplémentaires [Fox06] et peut être formulé ainsi :

1. La probabilité d'émission d'un photoélectron provoquée par l'absorption à deux photons dans un court intervalle de temps dt est donnée par la seconde règle d'or de Fermi (Eq. 2.2) et est proportionnelle au carré de l'intensité de la lumière incidente $I^2(t)$ et à la durée de l'intervalle dt . Ces considérations préliminaires conduisent à une probabilité élémentaire d'observer un évènement de la forme :

$$R^{(2)} dt = \xi^{(2)} I^2(t) dt. \quad (2.12)$$

L'expression ainsi obtenue est très proche de celle de l'équation 2.2 mais souligne l'importance de l'intervalle d'observation. La probabilité de transition devient négligeable si l'intervalle de temps dt est choisi suffisamment court [Lou00].

2. Les émissions de photo-électron aux différents instants sont indépendantes les uns des autres.

Partant de ces deux hypothèses, il est relativement facile de montrer que la probabilité de compter l'émission de N_2 photo-électrons entre les instants t et $t+T$ est donnée par une extension de la formule de Mandel [Man95] :

$$P_{N_2}^{(2)}(T) = \left\langle \frac{\nu^{N_2}}{N_2!} e^{-\nu} \right\rangle \quad (2.13)$$

où $\langle \rangle$ représente la moyenne sur les fluctuations de l'intensité, *i.e.* sur le temps t . ν est le nombre moyen de photo-électrons émis durant le temps T :

$$\nu = \xi^{(2)} \langle I^2(t,T) \rangle T \quad (2.14)$$

où la valeur moyenne du carré de l'intensité incidente $\langle I^2(t,T) \rangle$ est donnée par :

$$\langle I^2(t,T) \rangle = \frac{1}{T} \int_t^{t+T} dt' I^2(t'). \quad (2.15)$$

Dans le cas d'un laser monomode stable, l'intensité instantanée de l'équation 2.15 peut être sortie de l'intégrale. La distribution $P_{N_2}^{(2)}(T)$, la valeur moyenne $\langle N_2 \rangle$ et la variance $(\Delta N_2)^2$ du nombre de photo-électrons produits par absorption à deux photons sont données par

$$P_{N_2}^{(2)}(T) = \frac{\nu^{N_2}}{N_2!} e^{-\nu} \quad (2.16)$$

$$\langle N_2 \rangle = \nu = \xi^{(2)} I^2 T \quad (2.17)$$

$$(\Delta N_2)^2 = \langle N_2^2 \rangle - \langle N_2 \rangle^2 = \langle N_2 \rangle. \quad (2.18)$$

Les résultats obtenus sont semblables pour une lumière chaotique si le temps d'intégration du détecteur est bien plus grand que le temps caractéristique des fluctuations d'intensité. Ceci est bien entendu le cas dans les expériences réalisées avec des sources chaotiques présentées au chapitre 1 dont le

temps caractéristique est au maximum de la dizaine picosecondes alors que le temps d'intégration des détecteurs est de plusieurs dizaines de nanosecondes dans notre cas.

L'extension de la théorie semi-classique par ces considérations statistiques permet d'expliquer les résultats obtenus au cours du premier chapitre. Elles conduisent entre autres à l'obtention de statistiques poissonniennes indifféremment du type de sources employées (Fig. 1.13). Toutefois, il est regrettable qu'elle soit défini de manière *ad hoc* : l'obtention d'une statistique poissonnienne suite à l'hypothèse d'une statistique poissonnienne n'est pas réellement surprenante. Notons enfin que, de part ses hypothèses fondatrices, ce modèle n'est valable que si le rendement d'absorption à deux photons est très faible.

2.2.2 Conséquences de l'absorption à deux photons sur la distribution de photons

L'accroissement des rendements d'absorption est intimement lié à l'augmentation de la longueur d'interaction effective⁹. Pour illustrer l'influence de cette longueur sur le comptage à deux photons, nous allons dans un premier temps nous intéresser à la relation entre la statistique du flux lumineux et la distance d'interaction. L'absorption à deux photons, comme l'absorption à un photon d'ailleurs, est évidemment favorisée pour des puissances instantanées élevées. Toutefois, du fait de la non linéarité du processus, cette tendance va être nettement plus marquée et, de façon schématique, va "sélectionner" les puissances instantanées les plus élevées. Dans une approche corpusculaire naïve illustrée sur la figure 2.1, l'absorption à deux photons "régule" le flux de photons en absorbant préférentiellement les photons rapprochés dans le temps – correspondant aux puissances instantanées élevées¹⁰.

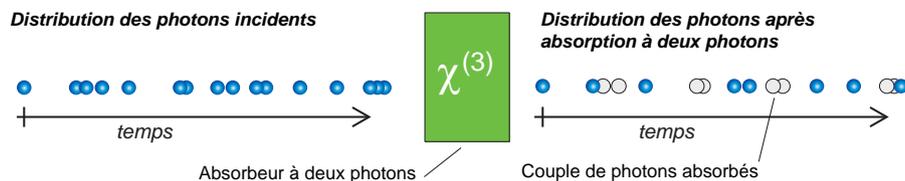


Figure 2.1: Schéma de principe illustrant la modification de la distribution des photons par l'absorption à deux photons. Les photons arrivant par deux sont absorbés préférentiellement.

Ce problème a été traité par Weber [Web71] dans le cadre de la théorie classique en se basant sur une description stochastique de la lumière, toujours très proche des approches précédentes¹¹.

9. On notera ici que cet accroissement dans un détecteur semiconducteur peut se faire par l'utilisation de structure résonnante. Une autre méthode prometteuse consiste en l'utilisation de structures qui vont confiner le champ et accroître ainsi sa puissance instantanée locale. À l'heure actuelle, ces propositions sont à l'étude et aucun résultat présentant une efficacité élevée n'est jusqu'alors disponible. Les démarches entreprises sont toutefois très encourageante [Lau94, Ros95, Zhe97, Fol02b, Lia05, Sch08].

10. La faculté du processus d'absorption à deux photons à sélectionner préférentiellement deux photons rapprochés dans le temps a été très étudié théoriquement pour mettre en évidence la possibilité de modifier la statistique des photons grâce à une interaction partielle – du fait du faible rendement – avec un milieu absorbant à deux photons et donc ainsi produire un flux de photons "antibunchés" – souvent interprétés comme un flux de photons régulièrement espacés dans le temps. On notera qu'un faisceau de photons antibunchés est purement quantique et qu'il n'en sera évidemment pas question dans cette sous-partie.

11. Au chapitre 3 par exemple, nous verrons que, malgré sa simplicité, ce type de description permet la modélisation des propriétés de corrélation des sources thermiques (ou chaotiques). Dans ce cadre, la loi de distribution d'une

L'intensité instantanée est décrite par une loi de distribution $p(I)$. La probabilité que l'intensité soit comprise entre I et $I + dI$ pendant un temps suffisamment court – petit devant celui des fluctuations – est alors donnée par $p(I)dI$.

Dans le cas d'une source gaussienne, la loi de probabilité de l'intensité incidente $\langle I_0 \rangle$ s'écrit :

$$p(I_0) = \frac{1}{\langle I_0 \rangle} e^{-\frac{I_0}{\langle I_0 \rangle}} dI_0. \quad (2.19)$$

À l'aide de l'équation 2.6, on peut que montrer la probabilité du flux incident $p(I_0)dI_0$ peut être reliée à l'intensité I_z restante après la propagation sur une distance z dans un milieu absorbant à deux photons :

$$p(I_0)dI_0 = p(I)dI = \begin{cases} \frac{1}{\langle I_0 \rangle (1 - \beta z I_z)^2} \exp\left(-\frac{I_z}{\langle I_0 \rangle (1 - \beta z I_z)}\right) dI_z & \text{pour } 0 \leq I_z \leq \frac{1}{\beta z} \\ 0 & \text{pour } I_z > \frac{1}{\beta z} \end{cases} \quad (2.20)$$

Il est alors possible d'évaluer l'intensité moyenne $\langle I_z \rangle$, la variance $(\Delta I_z)^2$ du flux lumineux ainsi que l'intensité absorbée ($\langle I_0 \rangle - \langle I_z \rangle$) en fonction de la distance d'interaction z :

$$\langle I_z \rangle = \int_0^{\infty} I p(I) dI \quad (2.21)$$

$$(\Delta I_z)^2 = \langle I_z^2 \rangle - \langle I_z \rangle^2 = \int_0^{\infty} I^2 p(I) dI - \left(\int_0^{\infty} I p(I) dI \right)^2. \quad (2.22)$$

Ces différentes grandeurs sont présentées sur la figure 2.2 en fonction de la longueur d'interaction z . D'une part, on observe que les propriétés statistiques du champ incident $\langle I_0 \rangle$ ne sont que très peu affectées pour des longueurs d'interaction inférieures à 10 cm¹². D'autre part, la pente de la droite en encart de la figure 2.2(a) montre que l'intensité absorbée varie globalement de façon linéaire avec la longueur d'interaction (pente de 1).

De ce bref aperçu des travaux existants sur le comptage à deux photons, nous pouvons déjà souligner plusieurs points intéressants issus de cette approche semi-classique :

- La dépendance de la réponse à deux photons avec le flux incident est quadratique, comme observé expérimentalement.
- À défaut de les justifier rigoureusement, on retrouve bien les statistiques poissonniennes observées quelle que soit le type de sources utilisées.

source gaussienne utilisée à l'équation 2.19 permet en particulier de décrire la distribution des photons issus des sources chaotiques que nous caractériserons [Lou00].

12. L'augmentation de la longueur d'interaction jusqu'à 10 cm peut être interprétée comme une augmentation de la durée d'interaction. Les photo-électrons produit vont alors refléter les propriétés moyennes du flux incident sur l'intégralité de cette longueur, soit près d'une nanoseconde.

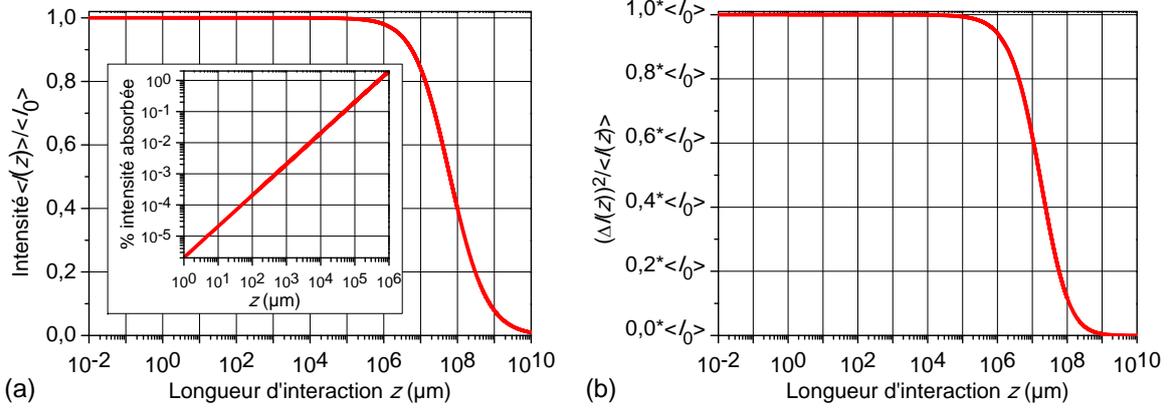


Figure 2.2: Propriété de l'intensité lumineuse d'une source gaussienne en fonction de la longueur d'interaction z avec un absorbant à deux photons. (a) Rapport de l'intensité lumineuse moyenne $\langle I_z \rangle$ sur l'intensité incidente initiale $\langle I_0 \rangle$. Le pourcentage de l'intensité moyenne absorbée à deux photons est présenté en encart. (b) Évolution du rapport de la variance $(\Delta I_z)^2$ sur l'intensité moyenne $\langle I_z \rangle$. ($z_{\text{expérimentale}} \sim 1 \mu\text{m}$; paramètres expérimentaux du Chap. 1 utilisés ici : $I_0 = 5.10^3 \text{ W.cm}^{-2}$; $\beta = 20 \text{ cm.GW}^{-1}$)

- Elle permet une approche simple et intuitive de l'influence du rendement quantique d'absorption, définissant ainsi les domaines de validité des approximations et justifiant de la possibilité d'améliorer le rendement des détecteurs sans altérer leur réponse quadratique.

Malgré ces points positifs, la théorie semi-classique ne permet pas de justifier rigoureusement les statistiques observées. Nous allons donc recourir à l'approche quantique en incluant désormais la quantification du champ incident¹³.

2.3 Quantification du champ dans le comptage à deux photons

Dans ses travaux initiateurs du formalisme actuel de l'optique quantique, Glauber a développé une description purement quantique de la détection à un photon fournissant ainsi une théorie complète de la détection regroupant au sein de son formalisme les aspects ondulatoires et corpusculaires [Gla63]. Par exemple, il a introduit l'opérateur $\hat{I} = \hat{E}^- \hat{E}^+$ c'est-à-dire l'observable de détection à un photon, où \hat{E}^+ est l'opérateur champ électrique complexe et \hat{E}^- son conjugué hermitien. Grâce à cet opérateur, il a pu établir clairement le lien entre les états cohérents $|\alpha\rangle$ – les états quantiques s'approchant le plus de la description ondulatoire – et la statistique poissonnienne de détection. Aussi loin qu'il est possible d'aller dans la description de l'absorption à deux photons, l'établissement d'une théorie complète soulignant tous les aspects du processus est une tâche difficile que nous ne tenterons pas de réaliser ici. Cette partie est plus orientée vers l'illustration des limites de la théorie actuelle et le développement des hypothèses simplificatrices permettant l'utilisation de différents opérateurs.

13. On notera par ailleurs que la théorie semi-classique utilisée ici ne permet pas non plus de rendre compte des modifications apportées par l'absorption à deux photons sur la statistique d'un état cohérent (qui va devenir antibunché dès le début de l'interaction). De ce fait, l'étude réalisée à la partie 2.2.2 n'est que qualitative.

2.3.1 Rendement quantique parfait

Opérateur de comptage à deux photons

Dans un premier temps, il est utile de voir la réponse d'un détecteur parfait où toutes les paires de photons incidents engendrent la création de photo-électrons. Le candidat à priori idéal en tant qu'observable de détection \hat{N}_2 associée à l'absorption à deux photons d'un champ monomode est directement dérivé de l'opérateur usuellement utilisé :

$$\hat{N}_2 = \frac{1}{2} \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a} \quad (2.23)$$

où \hat{a} est l'opérateur de destruction du photon¹⁴. Le facteur $\frac{1}{2}$ provient du fait que deux photons ne peuvent engendrer qu'un unique photo-électron lors de l'absorption mais est régulièrement omis dans les ouvrages qui traitent de la théorie quantique de l'absorption à deux photons [Lou00]. Les limites d'un tel opérateur apparaissent tout de suite. En effet, s'il est appliqué à l'état nombre $|n\rangle$, le nombre moyen de photo-électrons générés est :

$$\langle \hat{N}_2 \rangle = \frac{1}{2} n(n-1) \quad (2.24)$$

qui conduit à des valeurs aberrantes si $n > 2$. Le nombre maximum de photo-électrons produit étant de $\frac{n}{2}$, l'équation 2.24 n'est valable que pour les trois premiers états de Fock $|0\rangle$, $|1\rangle$, $|2\rangle$.

Opérateur de détection à deux photons

De manière à rendre compte du processus expérimental de détection à deux photons, une autre approche est envisageable en utilisant, cette fois-ci, des projecteurs. En effet, quel que soit le nombre de photons qui arrivent durant un intervalle de temps τ_D , caractéristique du détecteur¹⁵, le nombre de coups mesurés à la sortie du détecteur sera de 0 ou 1. L'opérateur de détection s'écrit alors :

$$\hat{N}_2 = \hat{1} - |0\rangle \langle 0| - |1\rangle \langle 1| \quad (2.25)$$

où l'opérateur $\hat{1}$ renvoie la valeur 1 quel que soit l'état projeté auquel on soustrait le nombre de photons dans l'état $|0\rangle$ et l'état $|1\rangle$ qui ne peuvent prétendre à l'absorption à deux photons. Cette approche projective a le mérite de concorder avec l'opérateur de comptage de photons de l'équation 2.23 pour les trois premiers états de Fock et de ne pas conduire aux mêmes aberrations pour les états suivants. S'il n'est pas évident de mettre en défaut cet opérateur, il est d'autant plus lourd d'y introduire une dépendance temporelle par l'utilisation d'opérateurs d'évolution qui permettrait de le rapprocher des grandeurs expérimentales mesurées.

14. On trouvera à la partie 4.4 un bref rappel des propriétés des opérateurs de création et de destruction. Le sujet est par ailleurs traité dans la plupart des livres d'introduction à l'optique quantique [Lou00].

15. Ce temps caractéristique inclut le temps mort du détecteur ainsi que le fait que plus de deux photons puissent arriver aux mêmes instants.

Ces deux propositions d'opérateur illustrent bien la difficulté d'établir une théorie complète pour l'absorption à deux photons. Toutefois, si l'opérateur de détection (Eq. 2.25) n'est pas aisément comparable aux valeurs expérimentales, l'opérateur de comptage (Eq. 2.23) apparaît relativement prometteur si l'on introduit le faible rendement quantique de l'absorption à deux photons.

2.3.2 Faible rendement quantique

S'inspirant des résultats issus des travaux de Mollow sur l'absorption à un photon [Mol68a], la construction de l'opérateur va donc s'opérer autour de nos conditions expérimentales, celles d'une (très) faible efficacité quantique de transition à deux photons. Comme dans le cas du traitement d'un détecteur à un photon non idéal, il est nécessaire de prendre en compte le bruit de partition introduit lors de la mesure par le caractère aléatoire des pertes consécutives à la non-idéalité des efficacités de détection. Depuis la démonstration de Mollow, la non-idéalité d'un détecteur à un photon est

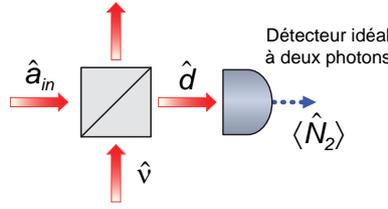


Figure 2.3: Modélisation d'un détecteur réel par l'introduction d'un séparateur de faisceau devant un détecteur hypothétique idéal.

rigoureusement équivalente à l'introduction d'un séparateur de faisceau devant un détecteur parfait permettant l'introduction des fluctuations du vide à l'origine du bruit de partition dans la statistique de détection (Fig. 2.3) [Mol68a, Lou00]. En étendant ce résultat à la détection à deux photons, l'opérateur de détection à deux photons \hat{N}_2 s'écrit alors sous la forme :

$$\hat{N}_2 = \frac{1}{2} \hat{d}^\dagger \hat{d}^\dagger \hat{d} \hat{d} \quad (2.26)$$

où :

$$\hat{d} = \eta^{\frac{1}{4}} \hat{a}_{in} + \sqrt{1 - \eta^{\frac{1}{2}}} \hat{v}. \quad (2.27)$$

Dans cette expression, l'opérateur \hat{a}_{in} (respectivement \hat{v}) est l'opérateur de création associé au flux monomode incident (respectivement du vide). L'opérateur \hat{d} permet d'exprimer la relation entre l'entrée et la sortie d'un séparateur de faisceau qui représente l'inefficacité de la détection à deux photons¹⁶. Là encore, le facteur $\frac{1}{2}$ est important puisqu'il rend compte du fait que l'absorption de deux photons ne conduira qu'à la production d'un seul coup par le détecteur.

16. En se rapportant au modèle semi-classique exposé à la partie 2.1, le paramètre η est à rapprocher du produit $\eta_1 \eta_2$. On notera toutefois que si la description de l'efficacité de collection η_2 par un séparateur de faisceau est habituelle [Mol68a, Lou00], celle de l'efficacité du processus d'absorption à deux photons est nettement moins usuelle. Nous n'essaierons pas de la justifier ici.

Calcul de la valeur moyenne

Le nombre moyen de coups engendré par l'absorption à deux photons d'un état quelconque $|\Psi\rangle$ est alors donné par :

$$\langle \hat{N}_2 \rangle = \frac{\eta}{2} \langle \Psi, 0 | \hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in} \hat{a}_{in} | \Psi, 0 \rangle = \frac{\eta}{2} \langle : \hat{n}^2 : \rangle \quad (2.28)$$

qui est bien l'équivalent quantique de l'approche phénoménologique présentée à l'équation 2.17. Le symbole $::$ est l'indicateur de réordonnement normal [Lou00].

Plus spécifiquement, nous pouvons nous intéresser à la valeur moyenne $\langle \hat{N}_2 \rangle$ dans les deux cas particuliers que nous avons traités expérimentalement, à savoir l'état cohérent produit par un laser et un champ de photon chaotique. En appliquant l'équation 2.28 à l'état cohérent $|\alpha\rangle$, le résultat est immédiat :

$$\langle \hat{N}_2 \rangle^{\text{Coh.}} = \frac{\eta}{2} \langle \alpha | \hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in} \hat{a}_{in} | \alpha \rangle = \frac{\eta}{2} |\alpha|^4 = \frac{\eta}{2} \bar{n}^2 \quad (2.29)$$

tandis que pour un champ chaotique décrit par un mélange statistique :

$$\langle \hat{N}_2 \rangle^{\text{Chao.}} = \text{Tr} \left[\rho \frac{\eta}{2} \hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in} \hat{a}_{in} \right] = \frac{\eta}{2} \sum_n \frac{\bar{n}^n}{(1 + \bar{n})^{n+1}} n(n-1) = \eta \bar{n}^2 \quad (2.30)$$

où ρ est la matrice densité décrivant le champ de photon.

En comparant les résultats obtenus aux équations 2.29 et 2.30, on peut remarquer que :

- l'évolution du nombre de coups moyen $\langle \hat{N}_2 \rangle$ est bien quadratique avec le nombre de photons incidents \bar{n} ;
- le rapport des valeurs moyennes entre un champ chaotique et cohérent est bien de 2, ce qui reflète l'effet Hanbury Brown & Twiss dû à l'arrivée par groupe des photons chaotiques que nous étudierons en détail au chapitre 3.

Calcul de la variance

Afin de vérifier la validité de notre approche, il est important de calculer la valeur de la variance $(\Delta \hat{N}_2)^2 = \langle \hat{N}_2^2 \rangle - \langle \hat{N}_2 \rangle^2$.

Commençons par calculer $\hat{N}_2 |\Psi, 0\rangle$:

$$\begin{aligned} \hat{N}_2 |\Psi, 0\rangle &= \frac{\eta^{\frac{1}{2}}}{2} \left(\eta^{\frac{1}{4}} \hat{a}_{in}^\dagger + \sqrt{1 - \eta^{\frac{1}{2}}} \hat{\nu}^\dagger \right) \hat{a}_{in}^2 |\Psi, 0\rangle \\ \hat{N}_2 |\Psi, 0\rangle &= \frac{\eta^{\frac{1}{2}}}{2} \left(\eta^{\frac{1}{2}} \hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in} \hat{a}_{in} |\Psi, 0\rangle + 2\sqrt{\eta^{\frac{1}{2}} (1 - \eta^{\frac{1}{2}})} \hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in} \hat{a}_{in} |\Psi, 1\rangle \right. \\ &\quad \left. + \sqrt{2} (1 - \eta^{\frac{1}{2}}) \hat{a}_{in} \hat{a}_{in} |\Psi, 2\rangle \right). \end{aligned} \quad (2.31)$$

Il est alors possible de calculer la valeur moyenne de l'opérateur \hat{N}_2^2 :

$$\langle \Psi, 0 | \hat{N}_2^2 | \Psi, 0 \rangle = \frac{\eta}{4} \left(\eta \langle : \hat{n}^2 : \rangle^2 + 4\eta^{\frac{1}{2}} (1 - \eta^{\frac{1}{2}}) \langle \hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in} \hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in} \hat{a}_{in} \rangle \right)$$

$$+2 \left(1 - \eta^{\frac{1}{2}}\right)^2 \langle : \hat{n}^2 : \rangle. \quad (2.32)$$

En utilisant les règles de commutations, la variance de l'opérateur \hat{N}_2 est alors donnée par :

$$\begin{aligned} (\Delta \hat{N}_2)^2 &= \frac{\eta^2}{4} (\Delta \hat{n}^2)^2 + \eta^{\frac{3}{2}} (1 - \eta^{\frac{1}{2}}) \langle : (\hat{a}_{in}^\dagger \hat{a}_{in})^3 : \rangle + \frac{\eta}{2} (1 - \eta) \langle : \hat{n}^2 : \rangle \\ (\Delta \hat{N}_2)^2 &\approx \frac{\eta}{2} \langle : \hat{n}^2 : \rangle = \langle \hat{N}_2 \rangle \quad \text{pour } \eta \ll 1. \end{aligned} \quad (2.33)$$

Pour les très faibles rendements quantiques ($\eta \ll 1$), la variance du nombre de coups est alors égale à sa moyenne, ce qui est bien la caractéristique de la statistique poissonnienne observée expérimentalement.

2.3.3 Approche multimodale aux faibles rendements quantiques

Pour rendre compte de la dépendance temporelle à laquelle nous sommes confrontés expérimentalement, il est nécessaire de pouvoir étendre le formalisme monomode précédent à un continuum de mode. Pour une source multimode décrite à l'aide des opérateurs de destruction $\hat{a}_{in}(\omega)$ répartis en fréquences, l'opérateur de destruction $\hat{a}_{in}(t)$ reflétant la dépendance temporelle s'exprime :

$$\hat{E}^+(t) \approx \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \hat{a}_{in}(\omega) e^{-i\omega t} dt \quad (2.34)$$

et l'opérateur de flux de photons $\hat{\phi}(t)$ est défini comme :

$$\hat{\phi}(t) = \hat{E}^-(t) \hat{E}^+(t). \quad (2.35)$$

En suivant la méthode utilisée par Loudon pour établir le modèle quantique de la détection à un photon [Lou00], l'opérateur de détection à deux photons d'un détecteur imparfait s'écrit alors :

$$\hat{N}_2(T) = \frac{1}{2} \int_0^T \hat{d}^\dagger(t) \hat{d}^\dagger(t) \hat{d}(t) \hat{d}(t) dt \quad (2.36)$$

où $\hat{d}(t)$ est l'opérateur dépendant du temps relatif à l'opérateur de l'équation 2.27. La valeur moyenne sur un intervalle de temps T est alors donnée par :

$$\begin{aligned} \langle \hat{N}_2(T) \rangle &= \frac{\eta}{2} \int_0^T \langle \hat{E}^-(t) \hat{E}^-(t) \hat{E}^+(t) \hat{E}^+(t) \rangle dt \\ &= \frac{\eta}{2} \left(\int_0^T \langle \hat{\phi}(t)^2 \rangle dt - \int_0^T \langle \hat{\phi}(t) \rangle dt \right) \\ \langle \hat{N}_2(T) \rangle &\approx \frac{\eta}{2} \int_0^T \langle \hat{\phi}(t)^2 \rangle dt \quad \text{pour } \langle \hat{\phi}(t) \rangle \gg 1. \end{aligned} \quad (2.37)$$

Cette expression de la moyenne est alors l'exacte réplique de l'équation 2.17. De façon semblable à l'équation 2.33, la variance d'un continuum de mode est donnée par :

$$\left(\Delta\hat{N}_2(T)\right)^2 \approx \langle\hat{N}_2(T)\rangle \quad \text{pour } \eta \ll 1 \quad (2.38)$$

et correspond bien à la statistique observée expérimentalement avec des sources multimodes.

2.3.4 Probabilités de comptage à deux photons dans la limite d'une faible efficacité

Une seconde approche a été développée en se basant sur les travaux de Kelley et Kleiner [Kel64] (Annexe A.1.3) sur la probabilité de détection à un photons. En supposant que l'évolution temporelle du nombre de coups mesurés $N_2(T)$, donnée par la seconde loi de Fermi à l'équation 2.11, puisse être étendue simplement à la théorie quantique – en remplaçant les amplitudes par leur opérateur associé –, le raisonnement de Kelley et Kleiner¹⁷ peut être étendu à deux photons et conduit à l'opérateur “ N_2 -Coups” à deux photons [Kel64] :

$$\hat{C}_{N_2}(T) =: \frac{\left(\eta\hat{a}^\dagger\hat{a}^\dagger\hat{a}\hat{a}\right)^{N_2}}{N_2!} e^{-\eta\hat{a}^\dagger\hat{a}^\dagger\hat{a}\hat{a}} : . \quad (2.39)$$

La probabilité $P_{N_2}(T)$ de compter N_2 coups durant l'intervalle de temps T est alors donnée par la valeur moyenne de l'opérateur $\hat{C}_{N_2}(T)$:

$$P_{N_2}(T) = Tr \left[\rho \hat{C}_{N_2}(T) \right] = Tr \left[\rho : \frac{\left(\eta\hat{a}^\dagger\hat{a}^\dagger\hat{a}\hat{a}\right)^{N_2}}{N_2!} e^{-\eta\hat{a}^\dagger\hat{a}^\dagger\hat{a}\hat{a}} : \right] \quad (2.40)$$

où ρ est la matrice densité associée au champ de photons incidents. La moyenne et la variance du nombre de coups d'absorption à deux photons mesurés sont alors données par :

$$\langle\hat{N}_2(T)\rangle = \sum N_2 P_{N_2}(T) \quad (2.41)$$

$$\left(\Delta\hat{N}_2(T)\right)^2 = \sum N_2^2 P_{N_2}(T). \quad (2.42)$$

Application à l'état cohérent

Pour valider l'expression de cet opérateur, on se propose de commencer par étudier les valeurs mesurées sur un état cohérent $|\alpha\rangle$. La probabilité $P_{N_2,|\alpha\rangle}(T)$ de compter N_2 coups durant l'intervalle

17. Leurs développements d'une grande complexité ne permet pas de traiter l'atténuation du champ et ne donnent accès qu'aux propriétés statistiques de la mesure en fonction de celle du champs de photons incidents [Mol68a]. Ceci a de grandes conséquences à deux photons puisque l'absorption à deux photons va modifier la statistique des photons incidents durant le processus d'absorption et justifie que l'opérateur étendu à deux photons n'est valable que dans la limite d'une faible rendement d'absorption.

T pour un tel état s'écrit alors :

$$\begin{aligned}
 P_{N_2,|\alpha\rangle}(T) &= \frac{\eta^{N_2}}{N_2!} \left\langle \alpha \left| \sum_l \frac{(-\eta)^l}{l!} (\hat{a}^\dagger)^{2(N_2+l)} (\hat{a})^{2(N_2+l)} \right| \alpha \right\rangle \\
 &= \frac{\eta^{N_2}}{N_2!} \sum_l \frac{(-\eta)^l}{l!} |\alpha|^{4(N_2+l)} \\
 &= \frac{(\eta |\alpha|^4)^{N_2}}{N_2!} e^{-\eta |\alpha|^4} \\
 P_{N_2,|\alpha\rangle}(T) &= \frac{(\eta \bar{n}^2)^{N_2}}{N_2!} e^{-\eta \bar{n}^2} \quad \text{avec } \bar{n} = |\alpha|^2 \text{ le nombre moyen de photon.} \quad (2.43)
 \end{aligned}$$

Le résultat est le même que celui obtenu lors de l'approche semi-classique (partie 2.2.1) et conduit de ce fait aux mêmes conclusions sur la statistique de mesure, *i.e.* à l'obtention d'une distribution poissonnienne du nombre de coups N_2 (Fig. 2.4(b)) ainsi qu'à la dépendance quadratique du nombre de coups moyen $\langle \hat{N}_2 \rangle$ avec le nombre de photons incidents (Fig. 2.4(a)).

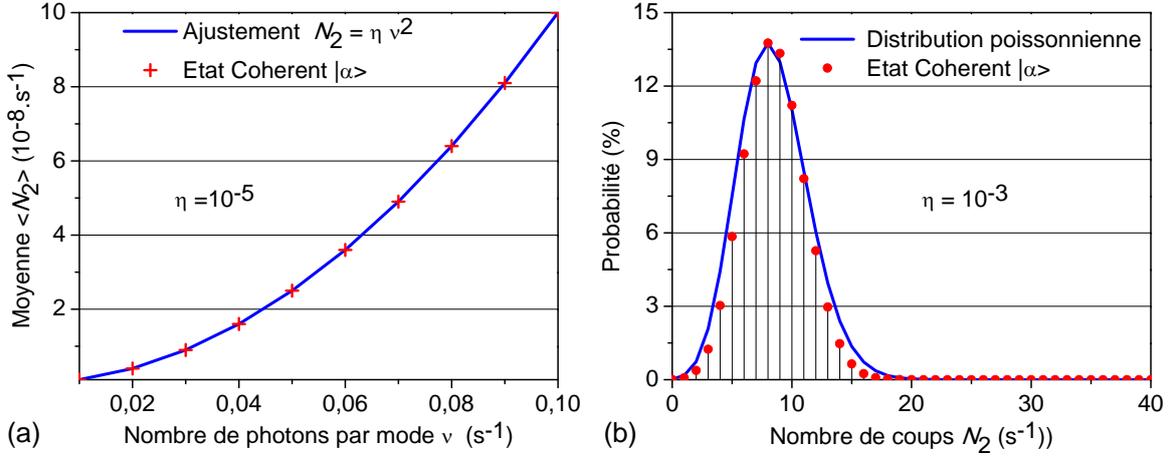


Figure 2.4: Application à un état cohérent $|\alpha\rangle$ de l'opérateur de Kelley-Kleiner étendu à deux photons : (a) Évolution du nombre moyen de coups d'absorption à deux photons $\langle \hat{N}_2 \rangle$ en fonction du nombre moyen de photons incident ν . (b) Distribution du nombre de coups à deux photons.

Application à l'état nombre

On peut appliquer l'opérateur $\hat{C}_{N_2}(T)$ à l'état nombre $|n\rangle$. Bien que cet état soit hypothétique, ce calcul conduit à un certain nombre de propriétés intéressantes. La probabilité de compter un nombre N_2 de coups à deux photons est de :

$$P_{N_2,|n\rangle}(T) = \frac{\eta^{N_2}}{N_2!} \left\langle n \left| \sum_l \frac{(-\eta)^l}{l!} (\hat{a}^\dagger)^{2(N_2+l)} (\hat{a})^{2(N_2+l)} \right| n \right\rangle$$

$$P_{N_2,|n\rangle}(T) = \frac{\eta^{N_2} \frac{n}{2} - N_2}{N_2!} \sum_{l=0}^{\frac{n}{2} - N_2} \frac{(-\eta)^l}{l!} \frac{n!}{(n - 2(m + l))!}. \quad (2.44)$$

On voit immédiatement que pour les deux premiers états de Fock, $|0\rangle$ et $|1\rangle$, la probabilité d'absorption est bien nulle. Il en est de même pour la probabilité d'observer un nombre de coups N_2 supérieur à la moitié du nombre de photons $\frac{n}{2}$. Les figures 2.5(a) et 2.5(b) montrent que la valeur moyenne du nombre de coups varie comme le carré du nombre de photons incidents et proportionnellement à l'efficacité d'absorption à deux photons η , confirmant ainsi les dépendances escomptées. Aux très faibles efficacités, l'écart entre la variance et la moyenne est minime et la mise en évidence de la distribution sous-poissonnienne due à l'absorption à deux photons d'états nombres n'est pas envisageable expérimentalement (Fig. 2.5(c)). Toutefois, la distribution du nombre de coups N_2 présentée à la figure 2.5(d) tend à montrer qu'il serait possible d'observer ces distributions pour des efficacités un peu plus élevées.

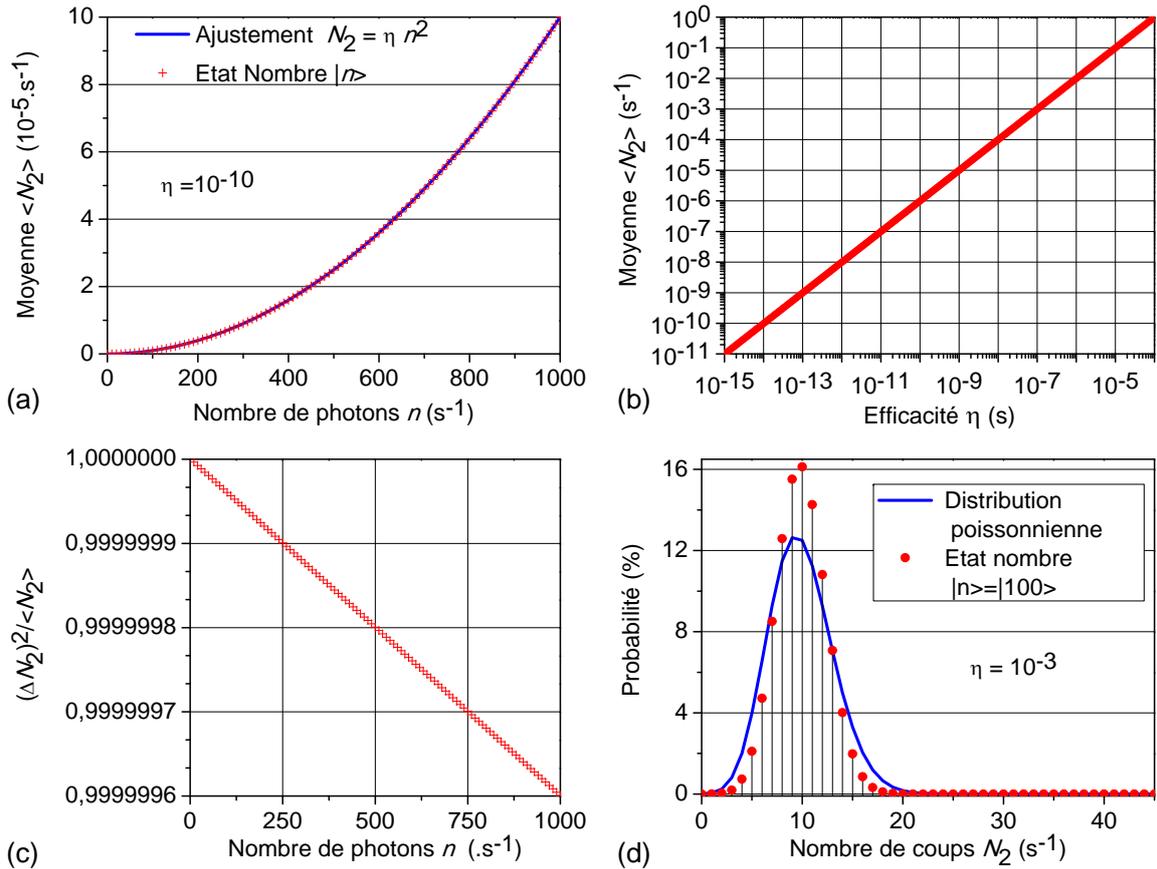


Figure 2.5: Application à l'état nombre $|n\rangle$ de l'opérateur de Kelley-Kleiner étendu à deux photons : Évolution du nombre moyen de coups d'absorption à deux photons $\langle \hat{N}_2 \rangle$ en fonction (a) du nombre moyen de photons incident n , (b) du rendement d'absorption à deux photons η . (c) Évolution du rapport de la variance et de la moyenne du nombre de coups d'absorption à deux photons $\frac{(\Delta \hat{N}_2)^2}{\langle \hat{N}_2 \rangle}$ en fonction du nombre moyen de photons incident n . (d) Distribution du nombre de coups à deux photons.

Application à un mélange statistique

Dans un dernier temps, nous avons appliqué l'opérateur à un mélange statistique reflétant les distributions de photons issus de sources chaotiques ou thermiques. La probabilité du nombre de coups pour un tel mélange est de :

$$P_{N_2, \text{Stat.}}(T) = \frac{\eta^{N_2}}{N_2!} \sum_{n=2N_2}^{\infty} \frac{\nu^n}{(1+\nu)^{n+1}} \sum_{l=0}^{\frac{n}{2}-N_2} \frac{(-\eta)^l}{l!} \frac{n!}{(n-2(m+l))!}. \quad (2.45)$$

Là encore, l'évaluation numérique des valeurs moyennes du nombre de coups $\langle \hat{N}_2 \rangle$ conduit aux dépendances classiques en efficacité d'absorption (Fig. 2.6(a)) et en intensité (Fig. 2.6(b)). La statistique du nombre de coups aux faibles rendements quantiques est aussi proche d'une distribution poissonnienne et la faible déviation de la distribution réelle à celle de Poisson ne peut être mise en évidence expérimentalement (du fait des incertitudes de mesure).

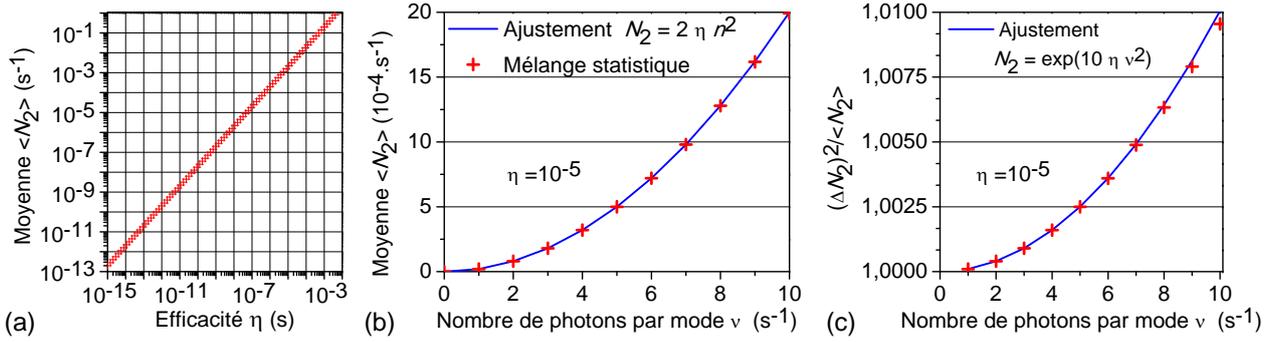


Figure 2.6: Application à un mélange statistique de l'opérateur de Kelley-Kleiner étendu à deux photons : Évolution du nombre moyen de coups d'absorption à deux photons $\langle \hat{N}_2 \rangle$ en fonction (a) du rendement d'absorption à deux photons η , (b) du nombre moyen de photons incident ν . (c) Évolution du rapport de la variance et de la moyenne du nombre de coups d'absorption à deux photons $\frac{(\Delta \hat{N}_2)^2}{\langle \hat{N}_2 \rangle}$ en fonction du nombre moyen de photons incident ν .

L'opérateur de comptage à deux photons défini aux équations 2.26 et 2.36 ainsi que ceux décrivant les probabilités de comptage rendent convenablement compte des trois caractéristiques expérimentales principales à savoir :

- la faible efficacité de l'absorption à deux photons η par l'introduction d'un séparateur de faisceau ;
- la réponse quadratique du détecteur $\langle \hat{N}_2 \rangle$ en fonction du nombre de photons incidents \bar{n} ;
- la statistique poissonnienne du nombre de coups mesurés pour une source cohérente, chaotique ou multimode.

Si ces opérateurs rendent compte des observations expérimentales, leur expression n'a toutefois pas été rigoureusement démontrée. Nous nous proposons d'établir les bases à une démonstration rigoureuse d'un opérateur de comptage à deux photons.

2.4 Bases d'une théorie quantique *non perturbative* du comptage à deux photons

Différents travaux ont porté sur l'absorption à deux photons et en particulier sur sa faculté à modifier les statistiques des flux de photons. De manière analogue aux processus non linéaires d'ordre deux, ceux d'ordre trois ont aussi la faculté de comprimer les fluctuations des flux de photons classiques pour conduire à la formation d'état comprimé (*squeezed state*). Adressé au cas de l'absorption à deux photons, ce phénomène a été largement étudié de façon théorique [She67, McN74, McN76, Lou84, Aga87] mais n'a été démontré expérimentalement, dans un polymère organique, qu'au début de la décennie [Isp00]. Il est aussi intéressant de noter que le processus d'absorption à deux photons, par sa non-linéarité, ne détruit pas les propriétés d'un champ incident comprimé comme le font les processus linéaire¹⁸ [Sim75, Sim78, Gil93]. L'ensemble de ces travaux ne s'adresse toutefois qu'aux propriétés de la lumière et aucun lien ne peut être directement fait avec l'émission de photo-électron.

Pour décrire pleinement le système, nous nous sommes contentés dans la partie précédente d'étendre les résultats communément utilisés pour la détection à un photon et de vérifier que les propriétés des opérateurs obtenues coïncidaient avec nos résultats expérimentaux. Pour démontrer rigoureusement l'existence d'un opérateur à deux photons, nous nous proposons ici de reprendre à la base la démarche de Mollow [Mol68a] sur la détection à un photon qui a permis, à partir de considérations physiques "simples",

- d'expliquer comment une assemblée de N atomes faiblement excités peuvent absorber tout ou partie de la lumière incidente ;
- de lier les statistiques des photo-électrons (ou du nombre de coups mesurés) à celles des photons ;
- de rendre compte et de justifier de l'influence du rendement quantique sur les statistiques de photons mesurées.

2.4.1 Description hamiltonienne du système

Le système restreint est simplement composé d'un détecteur et d'un champ incident dont on va étudier l'interaction [Mol68a] :

- Le détecteur est constitué d'un grand nombre N d'atomes (Fig. 2.7). Le niveau fondamental en énergie de l'atome i est noté $|a_i\rangle$ tandis que ses niveaux excités formant un quasi-continuum sont notés $|b_{ji}\rangle$ où $j = \{1..k\}$ sont associées aux énergies croissantes avec j , notées $E_{b_j} = E_a + \hbar\omega_j$ ¹⁹.
- Le champ incident est supposé monomode de fréquence ω .

L'Hamiltonien de ce système s'écrit :

$$\hat{H} = \hat{H}_{ats.} + \hat{H}_{ray.} + \hat{H}_{int.} \quad (2.46)$$

¹⁸. Il ne conduit pas à une statistique poissonnienne – comme le font les processus linéaire – mais à une statistique comprimée! Ceci est dû à l'existence d'un coefficient hors-diagonal non nul dans l'Hamiltonien d'interaction. On notera que les propriétés du champ sont tout de même altérées.

¹⁹. Nous verrons plus loin que chaque niveau d'énergie peut être décrit par un oscillateur harmonique si l'excitation est faible.

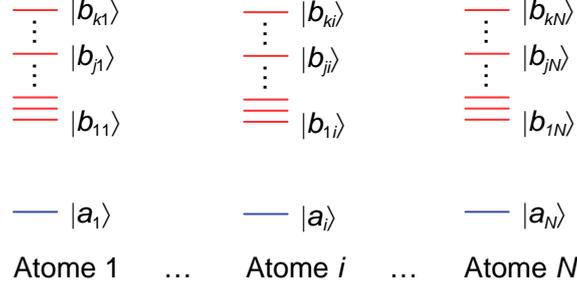


Figure 2.7: Description d'un détecteur comme une assemblée de N atomes.

avec :

- $\hat{H}_{ats.}$, l'Hamiltonien associé aux atomes libres de l'interaction avec le champ incident et sans interaction entre eux. En supposant que le niveau d'énergie $E_a = 0$, il peut s'écrire comme la somme d'Hamiltoniens d'oscillateurs harmoniques [Gry10] :

$$\hat{H}_{ats.} = \sum_j \hbar\omega_j \sum_i |b_{ji}\rangle \langle b_{ji}| ;$$

- $\hat{H}_{ray.}$, l'Hamiltonien relatif au champ incident sans interaction avec les atomes. En supposant que le niveau d'énergie $\frac{\hbar}{2}$ est le niveau d'énergie nulle, il peut s'écrire [Gry10] :

$$\hat{H}_{ray.} = \hbar\omega \hat{a}^\dagger \hat{a} ; \quad (2.47)$$

- $\hat{H}_{int.}$, l'Hamiltonien d'interaction entre les atomes et le champ incident, dérivé de celui de James-Cumming²⁰, s'écrit [McN74, Sim78, Gil93] :

$$\begin{aligned} \hat{H}_{int.} &\simeq -i \sum_j \hbar g_j \sum_i \left(\hat{a} \hat{a} |b_{ji}\rangle \langle a_i| - \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger |a_i\rangle \langle b_{ji}| \right) \\ &= -i\hbar \sum_j g_j \sum_i \left(\hat{a} \hat{a} \hat{S}_{ji}^+ - \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{S}_{ji}^- \right) \quad \text{avec} \quad \hat{S}_{ji}^+ = |b_{ji}\rangle \langle a_i| \end{aligned}$$

où g_j le coefficient de couplage entre le champ et l'atome²¹ et \hat{S}_{ji}^+ est l'opérateur de "montée" qui va permettre la transition d'un électron du niveau fondamental $|a_i\rangle$ vers un niveau excité $|b_{ji}\rangle$ tout en détruisant deux photons d'énergie $\hbar\omega$.

L'Hamiltonien du système défini ci-dessus est semblable à ceux utilisés dans les précédentes études sur l'absorption à deux photons²² [McN74, Sim78, Gil93].

20. Pour obtenir ce type d'Hamiltonien, on suppose que la somme des énergies des photons incidents entre en résonance avec le niveau d'énergie $\hbar\omega_j$ qui nous permet de simplifier l'expression initiale. Il n'est pas question ici de justifier la forme de l'Hamiltonien d'interaction à deux photons couramment utilisée dans la littérature.

21. Le coefficient de couplage est proportionnel au coefficient d'absorption à deux photons β . nous y reviendrons plus loin.

22. En particulier, il faut noter que nous nous sommes naturellement placés dans l'approximation dipolaire et séculaire. De plus, nous négligerons volontairement le déphasage du champ incident entre les différents atomes.

2.4.2 Établissement du système d'équations d'évolution couplées

Le système d'équations couplées régissant l'évolution temporelle est donné en représentation d'interaction (ou de Heisenberg) par l'évolution des opérateurs. Nous allons considérer le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} i\hbar \frac{d}{dt} \hat{a}(t) = [\hat{a}(t), \hat{H}(t)] & = [\hat{a}(t), \hat{H}_{chp.}(t)] + [\hat{a}(t), \hat{H}_{int.}(t)] \\ i\hbar \frac{d}{dt} \hat{S}_{ji}^-(t) = [\hat{S}_{ji}^-(t), \hat{H}(t)] & = [\hat{S}_{ji}^-(t), \hat{H}_{ats.}(t)] + [\hat{S}_{ji}^-(t), \hat{H}_{int.}(t)] \end{cases} \quad (2.48)$$

En définissant l'opérateur $\hat{S}_{ji}^z = \frac{1}{2} [\hat{S}_{ji}^-, \hat{S}_{ji}^+] = \frac{1}{2} (|a_i\rangle \langle a_i| - |b_{ji}\rangle \langle b_{ji}|)$, le développement du système précédent conduit à :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \hat{a}(t) & = -i\omega \hat{a}(t) + 2 \sum_j g_j \hat{a}^\dagger(t) \sum_i \hat{S}_{ji}^-(t) \\ \frac{d}{dt} \hat{S}_{ji}^-(t) & = -i\omega_j \hat{S}_{ji}^-(t) - 2g_j \hat{a}(t) \hat{a}^\dagger(t) \hat{S}_{ji}^z(t) \end{cases} \quad (2.49)$$

En sommant la deuxième équation sur l'ensemble des N atomes, le système d'équations se récrit :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \hat{a}(t) & = -i\omega \hat{a}(t) + 2 \sum_j g_j \hat{a}^\dagger(t) \hat{S}_j^-(t) \\ \frac{d}{dt} \hat{S}_j^-(t) & = -i\omega_j \hat{S}_j^-(t) - 2g_j \hat{a}(t) \hat{a}^\dagger(t) \hat{S}_j^z(t) \end{cases} \quad (2.50)$$

avec :

$$\hat{S}_j^\pm(t) = \sum_i \hat{S}_{ji}^\pm(t) \quad \text{et} \quad \hat{S}_j^z(t) = \sum_i \hat{S}_{ji}^z(t). \quad (2.51)$$

Contrairement au système obtenu lors du traitement de l'absorption à un photon [Mol68a], le système 2.50 est bien évidemment non linéaire et il n'existe pas de solutions "évidentes". L'utilisation des opérateurs "globaux" \hat{S}_j^\pm et \hat{S}_j^z permet de bien refléter le phénomène comme étant l'interaction entre le champ incident et le détecteur – constitué d'une assemblée d'atomes qu'il n'est pas nécessaire de distinguer les uns des autres. Pour poursuivre notre analyse, nous allons nous atteler à simplifier ce système.

Dans un premier temps, on peut souligner deux points essentiels concernant ces opérateurs:

- les opérateurs \hat{S}_j^\pm et \hat{S}_j^z ont une structure proche de celle des opérateurs moments cinétiques puisqu'ils sont liés par l'égalité suivante :

$$\hat{S}_j^z = \frac{1}{2} [\hat{S}_j^-, \hat{S}_j^+]; \quad (2.52)$$

- les valeurs propres de l'opérateur \hat{S}_j^z sont évidentes. Celles extrêmes sont données par :

$$\begin{aligned} \hat{S}_j^z |a_1\rangle \otimes \cdots \otimes |a_N\rangle &= \frac{N}{2} |a_1\rangle \otimes \cdots \otimes |a_N\rangle \\ \hat{S}_j^z |b_{j1}\rangle \otimes \cdots \otimes |b_{jN}\rangle &= -\frac{N}{2} |b_{j1}\rangle \otimes \cdots \otimes |b_{jN}\rangle. \end{aligned}$$

Du fait du très grand nombre d'atomes qui sont en interaction avec le champ incident, il semble raisonnable de supposer que le système atomique demeure très faiblement perturbé [Mol68a, Gil93]. On considérera donc que les atomes restent globalement dans leur état fondamental au fil du temps et que l'opérateur \hat{S}_j^z est donc constant, à peu près égal à $\frac{N}{2}$:

$$\hat{S}_j^z \sim \frac{N}{2} \quad (2.53)$$

qui conduit à une valeur constante du commutant des opérateurs de spin (Eq. 2.52). Il est alors possible de définir un opérateur “quasi-bosonique” :

$$\hat{b}_j = \frac{\hat{S}_j^-}{\sqrt{n}} \quad (2.54)$$

qui respecte la relation $[\hat{b}_j, \hat{b}_j^\dagger] = \left[\frac{\hat{S}_j^-}{\sqrt{n}}, \frac{\hat{S}_j^+}{\sqrt{n}} \right] \sim 1$. L'opérateur \hat{b}_j a alors un comportement analogue à l'opérateur \hat{a} . En posant $A_j = 2\sqrt{N}g_j$, le coefficient de couplage entre le champ et le niveau d'énergie $\hbar\omega_j$ du détecteur, le système donné à l'équation 2.50 peut s'exprimer en fonction des seuls opérateurs \hat{a} et \hat{b}_j (et de leur conjugués) :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \hat{a}(t) &= -i\omega \hat{a}(t) + \sum_j A_j \hat{a}^\dagger(t) \hat{b}_j(t) \\ \frac{d}{dt} \hat{b}_j(t) &= -i\omega_j \hat{b}_j(t) - A_j \hat{a}(t) \hat{a}^\dagger(t) \end{cases} \quad (2.55)$$

2.4.3 Invariant du système

Nous venons de voir que le système d'équations couplées régissant l'évolution du système pouvait s'écrire simplement à l'aide des opérateurs $\hat{a}(t)$ et $\hat{b}_j(t)$ qui agissent de manière analogue sur, respectivement, les photons et les électrons. Ce comportement analogue se retrouve alors si l'on calcule les valeurs moyennes des opérateurs $\hat{n}(t) = \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t)$ et $\hat{N}_2(t) = \sum_j \hat{b}_j^\dagger(t) \hat{b}_j(t)$ qui conduisent respectivement aux nombres de photons $\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle$ et d'électrons $\langle \sum_j \hat{b}_j^\dagger \hat{b}_j \rangle$. Pour assurer la conservation de l'énergie, il serait naturel (et nécessaire) que l'opérateur “nombre d'excitations” $\hat{M}(t)$ soit constant au cours du temps. Nous avons pris le parti de définir cet opérateur en prenant le nombre d'électrons comme référence, ce qui permet d'écrire²³ :

$$\hat{M}(t) = \frac{1}{2} \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) + \sum_j \hat{b}_j^\dagger(t) \hat{b}_j(t) \quad (2.56)$$

23. On notera que rien ne change si l'on prend le nombre de photons comme référence. L'opérateur “nombre d'excitations” rapporté aux photons, noté \hat{m} , est simplement le double de l'opérateur rapporté aux électrons, *i.e.* $\hat{m} = 2\hat{M}$.

Pour montrer que cet opérateur est un invariant, il est utile d'introduire les opérateurs $\tilde{a}(t) = \hat{a}(t)e^{-i\omega t}$ et $\tilde{b}_j(t) = \hat{b}_j(t)e^{-i\omega_j t}$. En posant $\delta_j = 2\omega - \omega_j$, l'écart entre les fréquences de deux photons d'énergie $\hbar\omega$ et celle du niveau d'énergie $\hbar\omega_j$, le système 2.55 se réécrit :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt}\tilde{a}(t) &= \sum_j A_j \tilde{a}^\dagger(t)\tilde{b}_j(t)e^{i\delta_j t} \\ \frac{d}{dt}\tilde{b}_j(t) &= -\frac{A_j}{2}\tilde{a}(t)\tilde{a}(t)e^{-i\delta_j t} \end{cases} \quad (2.57)$$

Il est immédiat que $\hat{M} = \frac{1}{2}\tilde{a}^\dagger\tilde{a} + \sum_j \tilde{b}_j^\dagger\tilde{b}_j$ et on montre alors aisément que $\frac{d}{dt}\hat{M} = \hat{0}$, c'est-à-dire que \hat{M} est bien un opérateur invariant du système. Bien que conforme à l'intuition, ce résultat est d'une grande importance puisqu'il **démontre qu'il existe une relation "simple" liant les statistiques des photons incidents et celles des électrons excités à deux photons**. En supposant qu'à l'instant initial $t = 0$, tous les atomes sont dans leur état fondamental, *i.e.* à 0°K, la valeur du nombre d'excitation est connue et égale à la moitié du nombre de photons incidents $\langle \hat{M}(t) \rangle = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(0)\hat{a}(0) \rangle}{2}$.

2.4.4 Quelques considérations statistiques

Nous allons nous contenter ici de souligner deux conséquences immédiates des propriétés de l'opérateur \hat{M} sans toutefois nous aventurer plus loin dans les développements théoriques.

Simplifications du système d'équations couplées

Dans un premier temps, il est possible de faire certaines approximations qui permettent de résoudre partiellement les équations 2.57:

1. Les atomes sont à l'origine dans leur niveau fondamental, *i.e.* $\langle \tilde{b}_j(0) \rangle = 0$.
2. L'enveloppe du champ varie lentement durant toute la durée de l'interaction.
3. On supposera que le processus est à mémoire courte.

Ces différentes hypothèses²⁴ permettent d'aboutir à l'équation de propagation d'allure bien connue en optique non linéaire:

$$\frac{d}{dt}\langle \tilde{a}(t) \rangle = -\kappa \langle \tilde{a}^\dagger(t)\tilde{a}(t)\tilde{a}(t) \rangle \quad (2.58)$$

$$\frac{d}{dt}\langle \hat{n}(t) \rangle = -2\kappa \langle \hat{a}^\dagger(t)\hat{a}^\dagger(t)\hat{a}(t)\hat{a}(t) \rangle = -2\kappa \left(\langle \hat{n}^2(t) \rangle - \langle \hat{n}(t) \rangle^2 \right) \quad (2.59)$$

où κ est une constante liée au coefficient de couplage et à la densité des niveaux d'énergies dans le continuum autour de la fréquence 2ω .

24. L'hypothèse (1) permet d'avoir une définition intégrale de l'opérateur $\tilde{b}_j(t)$ en fonction de $\tilde{a}(t)$. L'hypothèse (2) permet de "sortir" l'opérateur $\tilde{a}(t)$ de l'intégrale. L'hypothèse (3) permet de faire tendre les bornes des intégrales vers des temps infinis. Ceci permet de définir : $\sum_j \frac{A_j^2}{2} \int_0^\infty dt' e^{-i\delta_j(t-t')} = \frac{\pi}{2} A_{j0}^2 \rho(2\omega = \omega_{j0}) = \kappa$ où $\rho(\omega_{j0})$ est la densité d'état dans le continuum de mode.

Résolution des valeurs moyennes des équations d'évolution

Ce "recours" aux valeurs moyennes ne permet pas de justifier des distributions observées mais conduit toutefois à retrouver les résultats bien connus de l'optique non linéaire et de la théorie semi-classique (Eq. 1.7 et 2.6). En s'appuyant par la suite sur les propriétés de l'opérateur \hat{M} , on trouve la relation conduisant à la réponse moyenne du détecteur, analogue quantique des Eq. 1.8 et 2.11, "justifiant" ainsi l'utilisation de la seconde loi de Fermi à haut flux :

$$\langle \hat{N}_2(T) \rangle = \kappa \langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \hat{a}(t) \rangle. \quad (2.60)$$

Démarche d'une résolution complète

Comme nous l'avons stipulé dans l'introduction de cette partie, le processus d'absorption à deux photons, et en particulier son influence sur les propriétés du champ de photons, a été largement traité. Lier nos travaux et les précédents [Sim75, Sim78, Gla91, Gil93, Lou00] s'avère être une tâche ardue et surtout longue que nous n'aurons pas la prétention de mener ici. Si l'on peut se réjouir que le formalisme utilisé dans les années 1970 soit toujours d'actualité, les méthodes de résolutions envisageables de l'équation 2.58, tout autant que les solutions auxquelles elles aboutissent, sont complexes [Sim75, Sim78, Gil93]. Pour faire ce lien, il sera nécessaire dans un premier temps d'étendre les propriétés de l'opérateur \hat{M} à l'ensemble des champs de photons possible par l'utilisation de la matrice densité, puis d'injecter les solutions des équations 2.58 tirées de la littérature dans l'expression de l'opérateur \hat{M} généralisé.

Synthèse

Cette étude a permis dans un premier temps de faire le lien entre les approches classiques et semi-classiques couramment utilisées pour décrire le processus d'absorption à deux photons d'une part et avec le comptage à deux photons d'autre part. Ces différentes théories permettent de rendre compte de manière satisfaisante d'un certain nombre de propriétés observées expérimentalement, telle que la dépendance quadratique de la réponse à l'intensité du flux de photons incidents. Dans un second temps, nous avons montré que, pour justifier de la distribution statistique de la réponse à deux photons et s'affranchir d'une description *ad-hoc* du processus de mesure, l'utilisation de la théorie quantique semblait nécessaire.

Nous avons donc entrepris d'esquisser les différents points qui permettraient l'établissement d'opérateurs de comptage à deux photons. Dans un premier temps, l'utilisation d'opérateurs à deux photons directement dérivés des opérateurs à un photon [Kel64, Mol68a] ont permis de retrouver les résultats bien connus issus de la théorie semi-classique lorsque l'efficacité de détection est faible ainsi que de prévoir la réponse pour des états purement quantiques – voire hypothétiques – que sont les états nombres. Dans un second temps, nous avons entrepris de reprendre la démarche de Mollow utilisée pour justifier de la réponse d'un détecteur à un photon imparfait. Nous avons ainsi montré que le nombre de quanta d'excitation était bien un invariant du système et qu'il permettait de lier les statistiques des photons à celles des électrons. Si l'obtention d'un opérateur "général" n'a pas été possible, nous avons été à même de démontrer la validité des modèles usuels utilisés pour décrire le processus d'absorption à deux photons dans le cas de faibles rendements d'absorption.

Deuxième partie :
Étude des corrélations de photons issus
de sources à large spectre

Chapitre 3

Expériences d'autocorrélation à deux photons de sources classiques

Objectifs

Le but de ce chapitre est d'étudier au moyen d'un dispositif équipé d'un compteur à deux photons en GaAs les corrélations de photons issus de sources classiques, telles qu'un corps noir, une source ASE, ou un laser. De manière à valider notre montage interférométrique à deux photons, il sera aussi nécessaire de confronter nos mesures aux prévisions théoriques. Dans un premier temps, nous étudierons le principe de l'expérience d'autocorrélation à deux photons que nous illustrerons par des résultats obtenus à partir d'une source incohérente. Puis, nous extrairons les informations pertinentes issues de l'interférogramme qui nous permettent de remonter à, entre autres, la fonction de corrélation d'ordre deux, ou fonction d'autocorrélation en intensité, de la source. Pour cela, nous exposerons un calcul d'optique ondulatoire, mis en vis-à-vis de son homologue quantique, qui nous permettra d'interpréter totalement l'interférogramme. Enfin nous appliquerons notre étude aux différentes sources considérées.

3.1 Contexte

L'étude des corrélations de photons commença en 1956 avec l'expérience de Hanbury Brown et Twiss [HB56a, Twi57b]. Ils ont mesuré le temps qui sépare l'arrivée de deux photons issus d'un même faisceau provenant d'une source partiellement cohérente sur deux détecteurs différents et ont mis en évidence un phénomène interprété comme le *bunching* de photons ou l'arrivée de photons par paquet. Le dispositif HBT permet en fait de mesurer le degré de cohérence du second ordre, autrement appelé fonction de corrélation d'ordre deux ou fonction d'autocorrélation en intensité¹ :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t + \tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2}$$

où $I(t)$ est l'intensité du champ, τ est la différence de chemin optique entre les deux détecteurs et où $\langle \rangle$ indique une moyenne statistique. Un calcul relativement simple sur lequel nous reviendrons permet de montrer que le degré de cohérence d'ordre deux $g^{(2)}(0)$ est toujours supérieur à 1 pour des sources classiques et que sa valeur en $\tau = 0$ est égale à 2 pour des sources chaotiques stationnaires [Lou00]. L'expérience a d'abord été réalisée dans le domaine de fréquences radio, en utilisant des radiotélescopes, où la nature ondulatoire du rayonnement électromagnétique était indiscutable. Hanbury Brown et Twiss ont étendu le champ de leur expérience au domaine optique où ils ont mesuré à l'aide de compteur de photons la valeur de $g^{(2)}(0) = 1,93$ pour la raie à 546,1 nm du mercure dans une lampe à décharge suivie d'un filtre interférentiel² [Ber83].

Les expériences HBT sont réalisées en séparant un faisceau en deux à l'aide d'une lame semi réfléchissante puis en envoyant ces sous-faisceaux sur deux détecteurs distincts dont la position est ajustée pour faire varier le retard τ d'une voie par rapport à l'autre (Fig. 4). La limite de cette technique réside dans le temps de réponse τ_r des détecteurs. En effet, il a été montré par Scarl en 1968 que, pour une source chaotique classique, la valeur de $g^{(2)}(0) - 1$ mesurée est proportionnelle à τ_c/τ_r où τ_c est l'inverse de la largeur spectrale de la source, équivalent au temps de cohérence [Sca68]. La mesure n'est donc pertinente que si le temps de cohérence est au moins de l'ordre de grandeur du temps de réponse des détecteurs, soit de l'ordre de la nanoseconde. Le dispositif de l'époque n'a donc pas permis d'étudier des sources larges spectralement et les expériences réalisées reposaient sur le comportement de pseudo-corps noirs réalisés au moyen de disques diffusants en rotation [Are66] ou des sources affinées à l'aide de filtres [HB56a, Sca68]. Sans revenir sur l'ensemble des techniques développées pour s'affranchir de cette limite de résolution temporelle, l'idée a été de déplacer le problème du temps de réponse, c'est-à-dire de l'électronique, à un problème mécanique, celui de la platine de translation, en recombinaison des faisceaux sur un détecteur directement sensible au

1. La grandeur $Q = \langle N \rangle (g^{(2)}(0) - 1)$, connue sous le nom de paramètre Q de Mandel, est parfois utilisée pour caractériser les propriétés de cohérence du second ordre [Man79, Lou00]. Il existe aussi un autre paramètre, appelé facteur de Fano, égal à $Q + 1$ qui sert la même fonction.

2. Il faut souligner ici que la valeur de 1,93 n'a pas été obtenue directement à partir de la mesure et a nécessité la prise en compte des différentes caractéristiques des détecteurs ainsi que sur le faisceau lumineux. Expérimentalement, l'exaltation du signal observé en sortie de l'autocorrélateur était très faible et le temps d'acquisition d'un unique point était de 90 min.

produit des intensités [Abr86, Rot02, Day05, O'D09, Sen10]. Quelle que soit la technique considérée, absorption à deux photons ou somme de fréquences, les processus de “somme de photons” sont très brefs³.

Nous avons vu lors du développement de la description quantique au chapitre 2 que le taux de comptage à deux photons est lié à la valeur moyenne de l'opérateur [Mol68b, Lou00] :

$$\hat{E}^-(t)\hat{E}^-(t)\hat{E}^+(t)\hat{E}^+(t)$$

où $\hat{E}^+(t)$ et $\hat{E}^-(t)$ sont, respectivement, l'opérateur champ électrique et son conjugué Hermitien. Cette dernière expression apparaît alors très proche de celle de la fonction de corrélation d'ordre deux obtenue dans le cadre d'une approche quantique [Gla63, Gla64]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{E}^-(t+\tau)\hat{E}^-(t)\hat{E}^+(t)\hat{E}^+(t+\tau) \rangle}{\langle \hat{E}^-(t)\hat{E}^+(t) \rangle^2}. \quad (3.1)$$

Si Georgiades *et al.* [Geo95, Geo97] ont démontré expérimentalement la capacité des transitions atomiques à deux photons à refléter le comportement non classique du champ incident, les processus à deux photons dans les semiconducteurs où les transitions se font entre bandes d'énergie sont restés cantonnés à la caractérisation des impulsions ultra-brèves [Tak92, Rot02] et n'ont pas été exploités pour la caractérisation des effets statistiques des corrélations de la lumière. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, la maturité actuelle des technologies semiconducteurs a apporté des détecteurs extrêmement performants et permettent désormais d'envisager la détection à deux photons d'un flux continu inférieur au microwatt et l'étude de ses propriétés de corrélations.

3.2 Principe de l'expérience d'autocorrélation à deux photons

3.2.1 Montage expérimental

Le schéma de principe de l'expérience d'autocorrélation à deux photons est relativement simple. Il s'agit de faire passer un faisceau lumineux à travers un interféromètre de Michelson dont le signal de sortie est focalisé sur un détecteur à deux photons. Le dispositif expérimental est présenté sur la figure 3.1. L'interféromètre est composé d'un cube séparateur de faisceau 50/50 qui dirige le faisceau vers deux miroirs dorés plans. Le miroir M est fixe tandis que le miroir M_τ est placé sur une platine de translation reliée à un vérin motorisé. Les faisceaux recombinaés sont ensuite focalisés à l'aide d'une

3. Par exemple, la résolution temporelle de l'absorption à deux photons dans les semiconducteurs est limitée par le temps de vie de l'état virtuel, donné par l'inégalité de Heisenberg [CT77] :

$$\Delta E \Delta t \sim \frac{\hbar}{2}$$

où ΔE est l'écart en énergie, la moitié de l'énergie de la bande interdite, et Δt est la durée de l'interaction. Dans le cas d'un détecteur en GaAs ($E_g/2 \approx 0,7e$ V), comme celui utilisé dans ce chapitre, le temps de vie de l'état virtuel est de l'ordre de 0,5 fs.

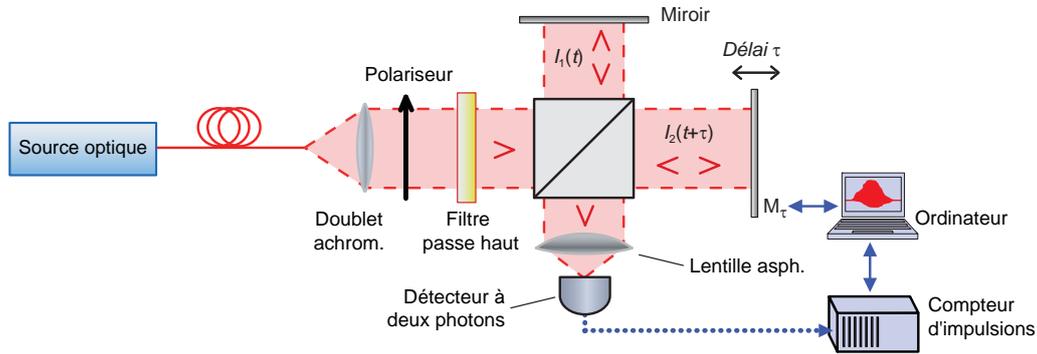


Figure 3.1: Montage expérimental de l'interféromètre de Michelson à deux photons permettant la mesure de corrélation. Le faisceau issu d'une source fibrée est envoyé collimaté dans l'interféromètre de Michelson et le faisceau en sortie est focalisé sur le détecteur à deux photons.

lentille asphérique sur le photomultiplicateur équipé d'une photocathode en GaAs caractérisé à la partie 1.3.3⁴.

Au cours des différentes mesures, deux types de résolutions sont alors observées et à prendre en compte :

- La première résolution temporelle découle des paramètres de la mesure (vitesse de translation du miroir, temps d'intégration du compteur). De cette résolution va découler l'observation des phénomènes interférentiels (oscillant) en champs. Ainsi, les franges d'interférences issues de la configuration de l'interféromètre de Michelson vont pouvoir être observées avec une résolution de 0,06 fs avec les paramètres retenus pour réaliser les mesures ($V_{\text{miroir}} = 0,2 \mu\text{m.s}^{-1}$; $T_{\text{intégration}} = 100 \text{ ms}$)⁵.
- La deuxième résolution est quant à elle fixée par le temps de vie du niveau virtuel dans le cristal semiconducteur de GaAs, de l'ordre de la femtoseconde. De cette résolution va découler la précision de la mesure de corrélation présentée plus loin dans le chapitre⁶.

Différentes sources classiques ont été caractérisées à l'aide de cet interféromètre, une source laser DFB à 1,55 μm ainsi que deux sources incohérentes. La première source incohérente est une source ASE fibrée présentée à la partie 1.3.1 et dont le spectre apparaît à la figure 3.2 tandis que la seconde est une lampe halogène dont le spectre s'approche de celui d'un corps noir à 3000 K ($\pm 100 \text{ K}$)⁷. De

4. Le vérin motorisé, LTA-HS de Newport, fixé à la platine permettant le déplacement du Miroir $M\tau$ est d'une course de 25 mm. Il est piloté par ordinateur via un contrôleur SMC100 et fonctionne en boucle fermée. Les impulsions issues du photomultiplicateur sont enregistrées par un compteur de photons qui envoie le résultat à l'ordinateur. Les mesures sont réalisées en déplaçant le miroir continûment à une vitesse fixée de $0,2 \mu\text{m.s}^{-1}$ tandis que l'échantillonnage du signal est fait toutes les 100 ms. Ces deux paramètres ont été optimisés de manière à maximiser le rapport signal sur bruit tout en réalisant les mesures dans un temps raisonnable.

5. La limite expérimentale est de 2 as et est obtenue avec les paramètres de mesures ($V_{\text{miroir}} = 0,05 \mu\text{m.s}^{-1}$; $T_{\text{intégration}} = 10 \text{ ms}$). À de telles échelles, la dérive de la vitesse du vérin peut poser problème lors des longs déplacements de la platine.

6. On peut d'ores et déjà souligner que cette résolution est suffisante pour étudier des sources avec un spectre de plusieurs centaines de nanomètres de large.

7. La lampe halogène n'est pas à proprement parler un corps noir mais un corps gris qui présente un spectre proche de celui du corps noir. L'introduction d'un paramètre de luminance dans l'équation du spectre d'un corps noir permet de retrouver le spectre de la lampe.

plus, les degrés de cohérence du premier ordre des deux sources incohérentes ont été étudiés à l'aide de notre interféromètre équipé d'un détecteur DET 410 (InGaAs) directement sensible à un photon. Ces interférogrammes, visibles sur la figure 3.3, permettent d'avoir un ordre de grandeur des temps de cohérences attendus, de l'ordre de la picoseconde pour la source ASE et de quelques dizaines de femtosecondes pour la lampe halogène.

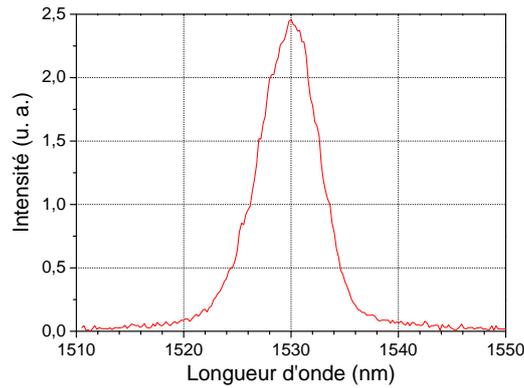


Figure 3.2: Spectre de la source ASE dopée Erbium Photonetics BT 1200.

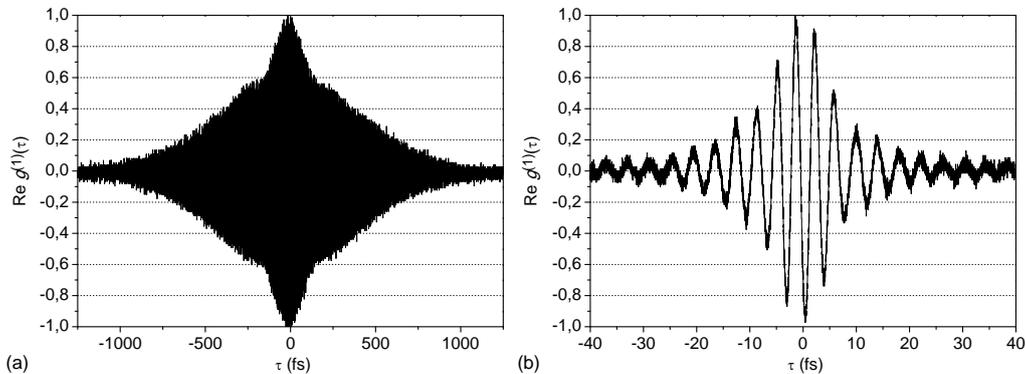


Figure 3.3: Partie réelle des fonctions de corrélation du premier ordre $g^{(1)}(\tau)$ pour (a) une source ASE et (b) une lampe halogène.

Avant d'enregistrer l'interférogramme à deux photons, l'alignement est d'abord réalisé à l'aide d'une photodiode pin DET 410 puis la position du détecteur à deux photons est optimisée par *z-scan*. Enfin, l'alignement est finalisé à l'aide du signal à deux photons. On notera qu'un contraste de 1 observé à la photodiode ne conduit pas à la même qualité d'extinction à deux photons du fait de la dépendance quadratique au flux. L'interféromètre à deux photons est bien plus sensible à l'alignement qu'un interféromètre de Michelson usuel.

3.2.2 Éléments de résultat d'une source incohérente

Les expériences réalisées avec des sources incohérentes conduisent à des interférogrammes comme celui présenté à la figure 3.4. La figure représente le signal à deux photons en fonction du retard induit par la translation du miroir M_τ . Comme nous allons le voir dans la partie 3.3, l'évolution de l'enveloppe de l'interférogramme, ou celle de la courbe rouge sur la figure 3.4, est représentative des corrélations de photons tandis que les franges d'interférences sont dues aux interférences en champ, conséquences directes de l'architecture de notre dispositif⁸.

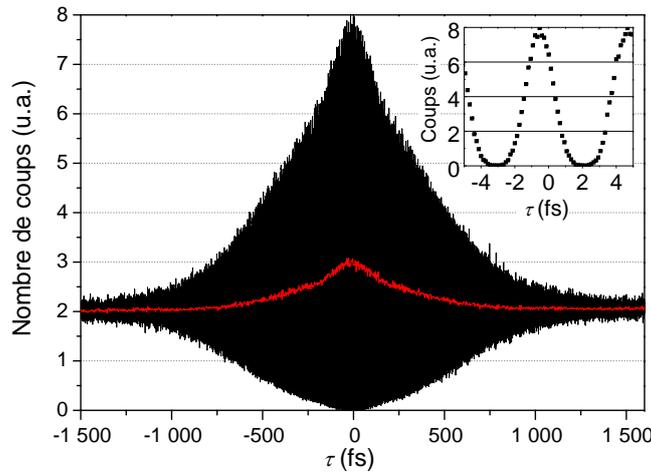


Figure 3.4: Interférogramme d'autocorrélation d'une source ASE à 200 μ W en fonction du retard τ introduit par le déplacement du Miroir. L'encart montre un agrandissement de l'interférogramme sur les franges centrales soulignant ainsi le premier type de résolution de l'interféromètre. Leurs asymétries soulignent la non-linéarité du processus.

3.3 Modélisation d'un interférogramme d'autocorrélation

3.3.1 Approche ondulatoire classique

La superposition des phénomènes d'interférences en intensité et en champ sur la figure 3.4 ne permet pas d'avoir accès directement aux propriétés de corrélation de la source. Pour traiter convenablement les interférogrammes, il est nécessaire de modéliser le signal obtenu. Le modèle développé ne traitera, par simplicité, que le cas d'une source monomode spatiale polarisée linéairement. En se plaçant dans le cadre de la théorie ondulatoire classique, le champ électrique $E_{total}(t)$ de fréquence porteuse ω_0 peut s'écrire comme la superposition des champs issus des deux bras de l'interféromètre avec une différence de marche équivalente à un temps τ :

$$E_{total}(t) = \left(E(t) e^{-i\omega_0 t} + E(t + \tau) e^{-i\omega_0(t+\tau)} \right). \quad (3.2)$$

8. Notons l'asymétrie temporelle de ces franges, visible dans l'encart, qui signe la non-linéarité du processus optique.

L'intensité associée au champ en sortie d'interféromètre $I(t, \tau) = |E_{total}|^2$ est donnée par :

$$I(t, \tau) = |E(t)|^2 + |E(t + \tau)|^2 + E(t)E^*(t + \tau)e^{i\omega_0\tau} + E^*(t)E(t + \tau)e^{-i\omega_0\tau}.$$

La mesure d'autocorrélation reposant sur l'absorption à deux photons, il va de soi que l'on s'intéresse toujours à la valeur moyenne du carré de l'intensité. Lors du calcul de cette valeur moyenne, les termes oscillants avec le temps vont s'annuler :

$$\begin{aligned} \langle I^2(t, \tau) \rangle &= \langle |E(t)|^4 \rangle + \langle |E(t + \tau)|^4 \rangle + 4 \langle |E(t)|^2 |E(t + \tau)|^2 \rangle \\ &\quad + 4 \langle (|E(t)|^2 + |E(t + \tau)|^2) \operatorname{Re} [E(t)E^*(t + \tau)e^{i\omega_0\tau}] \rangle \\ &\quad + 2 \operatorname{Re} [\langle E^2(t)E^{*2}(t + \tau)e^{2i\omega_0\tau} \rangle]. \end{aligned} \quad (3.3)$$

En posant $\langle I_1(t) \rangle = \langle |E(t)|^2 \rangle$, l'intensité du champ issu de la voie 1 en sortie d'interféromètre, et $\langle I_2(t + \tau) \rangle = \langle |E(t + \tau)|^2 \rangle$, l'intensité du champ issu de la voie 2 en sortie d'interféromètre (Fig. 3.1), l'équation précédente se réécrit :

$$\begin{aligned} \langle I^2(t, \tau) \rangle &= \langle I_1^2(t) \rangle + \langle I_2^2(t + \tau) \rangle + 4 \langle I_1(t)I_2(t + \tau) \rangle \\ &\quad + 4 \langle (I_1(t) + I_2(t + \tau)) \operatorname{Re} [E(t)E^*(t + \tau)e^{i\omega_0\tau}] \rangle \\ &\quad + 2 \operatorname{Re} [\langle E^2(t)E^{*2}(t + \tau)e^{2i\omega_0\tau} \rangle]. \end{aligned} \quad (3.4)$$

Par construction, l'interféromètre de Michelson est toujours équilibré dans le cadre de la théorie classique. Ainsi, même si la lame séparatrice n'est pas parfaite, l'égalité $\langle I_0^2(t) \rangle = \langle I_1^2(t) \rangle = \langle I_2^2(t) \rangle$ est toujours vérifiée et on obtient finalement :

$$\begin{aligned} \langle I^2(t, \tau) \rangle &= 2 \langle I_0^2(t) \rangle + 4 \langle I_0^2(t) \rangle \frac{\langle I_1(t)I_2(t + \tau) \rangle}{\langle I_0^2(t) \rangle} \\ &\quad + 8 \langle I_0^2(t) \rangle \frac{\frac{1}{2} \langle (I_1(t) + I_2(t + \tau)) \operatorname{Re} [E(t)E^*(t + \tau)e^{i\omega_0\tau}] \rangle}{\langle I_0^2(t) \rangle} \\ &\quad + 2 \langle I_0^2(t) \rangle \frac{\operatorname{Re} [\langle E^2(t)E^{*2}(t + \tau)e^{2i\omega_0\tau} \rangle]}{\langle I_0^2(t) \rangle}. \end{aligned} \quad (3.5)$$

En normalisant ce signal par $2 \langle I_0^2(t) \rangle$, la réponse du détecteur à deux photons est donc de la forme :

$$S_2(\tau) = \frac{\langle I^2(t, \tau) \rangle}{2 \langle I_0^2(t) \rangle} = 1 + 2G^{(2)}(\tau) + 4 \operatorname{Re} [F_1(\tau)e^{-i\omega_0\tau}] + \operatorname{Re} [F_2(\tau)e^{-2i\omega_0\tau}] \quad (3.6)$$

où, en reprenant les notations de Mogi *et al.* [Mog88] utilisées pour une impulsion laser, on définit :

$$F_1(\tau) = \frac{\frac{1}{2} \langle (|E(t)|^2 + |E(t+\tau)|^2) E(t)E^*(t+\tau) \rangle}{\langle I_0^2(t) \rangle} \quad (3.7)$$

$$F_2(\tau) = \frac{\langle E^2(t)E^{*2}(t+\tau) \rangle}{\langle I_0^2(t) \rangle} \quad (3.8)$$

$$G^{(2)}(\tau) = \frac{\langle E(t)E^*(t)E(t+\tau)E^*(t+\tau) \rangle}{\langle I_0^2(t) \rangle} \quad (3.9)$$

Le signal mesuré est donc la superposition d'une composante basse fréquence et de deux composantes oscillantes aux fréquences ω_0 et $2\omega_0$. L'étude des composantes $F_1(\tau)$ et $F_2(\tau)$ va permettre d'accéder à des informations sur la phase mais aussi sur le spectre de la source. En effet, la fonction $F_1(\tau)$ est reliée – à une fonction près – au degré de cohérence d'ordre un, $g^{(1)}(\tau)$, obtenu lors de l'interférométrie en champ. La fonction $G^{(2)}(\tau)$ quant à elle peut être rapprochée de la fonction de corrélation du second ordre en supposant le signal complètement décorrélé pour un retard infini. Elle s'exprime alors⁹ :

$$G^{(2)}(\tau) = \frac{g^{(2)}(\tau)}{g^{(2)}(0)} \quad \text{ou encore} \quad g^{(2)}(\tau) = \frac{G^{(2)}(\tau)}{G^{(2)}(\infty)} \quad (3.10)$$

Application à une source cohérente monomode : Le résultat obtenu avec une source cohérente monofréquence continue est évident en considérant que les enveloppes sont de phases fixes et égales (temps de cohérence infini) :

$$F_1^{\text{coh.}}(\tau) = \frac{\frac{1}{2} \langle 2I_0^2(t) \rangle}{\langle I_0^2(t) \rangle} = 1 ; \quad F_2^{\text{coh.}}(\tau) = \frac{\langle I_0^2(t) \rangle}{\langle I_0^2(t) \rangle} = 1 ; \quad G^{(2)\text{coh.}}(\tau) = \frac{\langle I_0^2(t) \rangle}{\langle I_0^2(t) \rangle} = 1.$$

Il vient de suite l'expression du signal à deux photons :

$$S_2^{\text{coh.}}(\tau) = 3 + 4 \cos \omega_0 \tau + \cos 2\omega_0 \tau \quad (3.11)$$

qui conduit, quel que soit le retard τ entre les voies de l'interféromètre, à une valeur du degré de cohérence d'ordre deux constante et égale à :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 \quad \forall \tau \quad (3.12)$$

3.3.2 Application à une lumière chaotique

Une des principales caractéristiques d'une lumière chaotique est sa phase aléatoire. Le modèle décrit par Loudon propose de représenter les propriétés de cohérences d'une telle source par des considérations

9. Les deux équations sont théoriquement identiques puisque $g^{(2)}(\infty) = 1$. Toutefois, les limites expérimentales rencontrées (limite d'alignement, étalement spatial) et celles de notre modèle ($g^{(2)}(0)$ théorique différent - cf. Chap. 4) nous amèneront à considérer l'expression de droite engendrant moins d'incertitude ; les signaux décorrélés ($\tau \rightarrow \infty$) sont moins affectés par les limites expérimentales et théoriques.

statistiques sur la phase du champ électrique associé [Lou00]. L'amplitude du champ électrique d'une lumière chaotique peut être décrite comme la somme de champs électriques élémentaires produits par un grand nombre ν d'atomes indépendants de phase $\varphi_i(t)$ et de fréquence de transition ω_0 :

$$\begin{aligned}
 E(t) &= E_1(t) + E_2(t) + E_3(t) + \dots + E_\nu(t) \\
 &= E_0 e^{-i\omega_0 t} \left(e^{i\varphi_1(t)} + e^{i\varphi_2(t)} + \dots + e^{i\varphi_\nu(t)} \right) \\
 E(t) &= E_0 e^{-i\omega_0 t} \sum_{i=1}^{\nu} e^{i\varphi_i(t)}. \tag{3.13}
 \end{aligned}$$

Pour rapprocher les données expérimentales de la théorie, il est nécessaire de normaliser les différentes fonctions par la valeur moyenne du carré de l'intensité $\langle I^2(t) \rangle = \langle E^{*2}(t)E^2(t) \rangle$ qui peut être reliée à la valeur moyenne de l'intensité. En exprimant l'intensité à l'aide de l'expression des champs ci-dessus :

$$\langle I^2(t) \rangle = \langle E^{*2}(t)E^2(t) \rangle = E_0^4 \left\langle \left| \sum_{i=1}^{\nu} e^{i\varphi_i(t)} \right|^4 \right\rangle$$

et en ne conservant que les termes conjugués, les seuls qui ne s'annuleront pas, l'expression de la moyenne du carré de l'intensité s'écrit aisément en fonction du nombre d'atomes indépendants ν comme [Lou00] :

$$\begin{aligned}
 \langle I^2(t) \rangle &= E_0^4 \left\{ \sum_{i=1}^{\nu} \left\langle \left| e^{i\varphi_i(t)} \right|^4 \right\rangle + \sum_{i>j} \left\langle \left| 2e^{i\varphi_i(t)} e^{i\varphi_j(t)} \right|^2 \right\rangle \right\} \\
 &= E_0^4 (\nu + 2\nu(\nu - 1)) \\
 &= \left(2 - \frac{1}{\nu} \right) \langle I(t) \rangle^2 \\
 \langle I^2(t) \rangle &\approx 2 \langle I(t) \rangle^2 \quad \text{pour } \nu \gg 1. \tag{3.14}
 \end{aligned}$$

Calcul du degré de cohérence d'ordre un $g^{(1)}(\tau)$:

Il existe différents types de sources chaotiques en fonction de leur spectre. Nous considérerons ici deux types de causes provoquant l'élargissement spectral. Un spectre gaussien est habituellement attribué à un élargissement Doppler de la source tandis qu'un spectre lorentzien est à rapprocher d'un modèle collisionnel – ou émission spontanée.

Dans le cas de l'élargissement Doppler, le calcul de la fonction de cohérence du premier ordre est simple puisque la cohérence ne découle que de la distribution des fréquences de transitions des émetteurs de la source [Lou00] :

$$\langle E^*(t)E(t+\tau) \rangle = E_0^2 \sum_{i,j=1}^{\nu} \left\langle e^{i\{\omega_i t - \varphi_i - \omega_j(t+\tau) - \varphi_j\}} \right\rangle \tag{3.15}$$

où les phases φ_j , fixes et aléatoires, vont s'annuler lors de l'évaluation de la moyenne. L'expression précédente se simplifie en :

$$\begin{aligned}
 \langle E^*(t)E(t+\tau) \rangle &= E_0^2 \sum_{i,j=1}^{\nu} e^{-i\omega_i\tau} \\
 &= \nu E_0^2 \frac{1}{\sqrt{2\pi\Delta^2}} \int_0^{\infty} d\omega_i e^{-i\omega_i\tau} e^{-\frac{(\omega_0-\omega_i)^2}{2\Delta^2}} \\
 &= \nu E_0^2 e^{-i\omega_0\tau - 1/2\Delta^2\tau^2} \quad \text{avec} \quad \Delta = \frac{\sqrt{\pi}}{\tau_c},
 \end{aligned} \tag{3.16}$$

d'où :

$$g^{(1)}(\tau) = e^{-i\omega_0\tau - 1/2\Delta^2\tau^2}. \tag{3.17}$$

Nous soulignerons plus loin que le théorème de Wiener-Khinchine (Eq. 3.43) permet alors de remonter aisément au spectre gaussien.

Dans le cadre d'un modèle collisionnel, le calcul de la fonction de cohérence d'ordre un se rapporte cette fois à un calcul de la moyenne statistique :

$$\langle E^*(t)E(t+\tau) \rangle = E_0^2 e^{-i\omega_0\tau} \left\langle \left\{ \sum_{i=1}^{\nu} e^{-i\varphi_i(t)} \right\} \left\{ \sum_{i=1}^{\nu} e^{i\varphi_i(t+\tau)} \right\} \right\rangle. \tag{3.18}$$

Les phases résultantes des champs issus d'atomes différents vont s'annuler lors du calcul de la moyenne si bien que seuls les champs issus d'un même atome i sont susceptibles d'interférer entre eux. Ceci permet donc de simplifier l'équation 3.18 :

$$\begin{aligned}
 \langle E^*(t)E(t+\tau) \rangle &= E_0^2 e^{-i\omega_0\tau} \sum_{i=1}^{\nu} \left\langle e^{i(\varphi_i(t+\tau) - \varphi_i(t))} \right\rangle \\
 &= \nu \langle E_i^*(t)E_i(t+\tau) \rangle.
 \end{aligned} \tag{3.19}$$

L'utilisation d'un modèle de collision avec un temps de parcours moyen τ_0 permet de décrire la phase de manière statistique. La probabilité $p(\tau)d\tau$ qu'un atome possède un temps de vol libre dans un intervalle de τ à $\tau + d\tau$ est [Lou00, Goo00] :

$$p(\tau)d\tau = \frac{1}{\tau_0} e^{-\frac{\tau}{\tau_0}} d\tau. \tag{3.20}$$

La phase des trains d'onde de la lumière issue d'un même atome va changer dès qu'il y a une collision et la contribution de ces trains d'onde va s'annuler lors du calcul de la moyenne statistique. La fonction de corrélation $\langle E_i^*(t)E_i(t+\tau) \rangle$ est donc proportionnelle à la probabilité qu'un atome ait un temps de

parcours supérieur à τ ce qui permet d'aboutir à :

$$\begin{aligned}\langle E^*(t)E(t+\tau) \rangle &= E_0^2 e^{-i\omega_0\tau} \left\langle e^{i(\varphi_i(t+\tau) - \varphi_i(t))} \right\rangle \\ &= E_0^2 e^{-i\omega_0\tau} \int_{\tau}^{\infty} d\tau' p(\tau') \\ &= E_0^2 e^{-i\omega_0\tau - \tau/\tau_0}\end{aligned}$$

et l'équation 3.19 peut se récrire et se généraliser en prenant en compte l'élargissement spectral :

$$\langle E^*(t)E(t+\tau) \rangle = \nu e^{-i\omega_0\tau - \tau/\tau_c} \quad \text{avec } \tau_c \text{ le temps de cohérence} \quad (3.21)$$

$$g^{(1)}(\tau) = e^{-i\omega_0\tau - |\tau|/\tau_c}. \quad (3.22)$$

Là encore, le théorème de Wiener-Khintchine permet de remonter au spectre lorentzien de la source.

Calcul du degré de cohérence d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$:

Le calcul de la fonction de corrélation d'ordre deux repose sur les mêmes arguments que celui de la fonction du premier ordre $g^{(1)}(\tau)$:

$$\begin{aligned}\langle E^*(t)E^*(t+\tau)E(t+\tau)E(t) \rangle &= \sum_{i=1}^{\nu} \langle E_i^*(t)E_i^*(t+\tau)E_i(t+\tau)E_i(t) \rangle \\ &\quad + \sum_{i \neq j} \langle E_i^*(t)E_j^*(t+\tau)E_j(t+\tau)E_i(t) \rangle \\ &\quad + \sum_{i \neq j} \langle E_i^*(t)E_j^*(t+\tau)E_j(t)E_i(t+\tau) \rangle\end{aligned} \quad (3.23)$$

où l'on ne retient que les termes associés à leurs complexes conjugués. Les autres termes s'annulent comme de coutume lors du calcul de la moyenne. En considérant que tous les atomes sont équivalents, l'expression se simplifie en :

$$\begin{aligned}\langle E^*(t)E^*(t+\tau)E(t+\tau)E(t) \rangle &= \nu \langle E_i^*(t)E_i^*(t+\tau)E_i(t+\tau)E_i(t) \rangle \\ &\quad + \nu(\nu-1) \left\{ \langle E_i^*(t)E_i(t) \rangle^2 + |\langle E_i^*(t)E_i(t+\tau) \rangle|^2 \right\}.\end{aligned} \quad (3.24)$$

Enfin, en supposant que le nombre d'atomes est suffisamment grand, les termes mettant en jeux des paires d'atomes deviennent dominants devant la contribution de ceux à un unique atome :

$$\langle E^*(t)E^*(t+\tau)E(t+\tau)E(t) \rangle = \nu^2 \left\{ \langle E_i^*(t)E_i(t) \rangle^2 + |\langle E_i^*(t)E_i(t+\tau) \rangle|^2 \right\} \quad (3.25)$$

$$\text{d'où} \quad g^{(2)}(\tau) = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2. \quad (3.26)$$

Distribution	Lorentzienne :	Gaussienne :
$\mathbf{G}^{(2)}(\tau) = \frac{g^{(2)}(\tau)}{g^{(2)}(0)}$	$= \frac{1}{2} \left(1 + e^{-2 \tau /\tau_c}\right)$	$= \frac{1}{2} \left(1 + e^{-\pi (\tau/\tau_c)^2}\right)$

Table 3.1: Fonction de corrélation d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$ et $G^{(2)}(\tau)$ pour des sources incohérentes dont l'élargissement spectral repose sur un processus Doppler ou collisionnel.

Calcul des fonctions oscillantes $\mathbf{F}_1(\tau)$ et de $\mathbf{F}_2(\tau)$:

Le modèle ondulatoire que nous venons de décrire s'étend aisément aux calculs des autres composantes de l'interférogramme. En utilisant des arguments semblables à ceux employés précédemment, l'expression de $F_1(\tau)$ est déterminée ici en considérant les deux termes de l'équation 3.7 séparément :

$$\begin{aligned}
 \langle E^2(t)E^*(t)E^*(t+\tau) \rangle &= \sum_{i=1}^{\nu} \langle E_i^*(t)E_i^*(t+\tau)E_i(t)E_i(t) \rangle \\
 &\quad + \sum_{i \neq j} \left\{ \langle E_i^*(t)E_j^*(t+\tau)E_j(t)E_i(t) \rangle + \langle E_i^*(t)E_j^*(t+\tau)E_i(t)E_j(t) \rangle \right\} \\
 &= \nu \langle E_i^*(t)E_i^*(t+\tau)E_i(t)E_i(t) \rangle \\
 &\quad + 2\nu(\nu-1) \{ \langle E_i^*(t)E_i(t) \rangle \langle E_i^*(t+\tau)E_i(t) \rangle \} \\
 \langle E^2(t)E^*(t)E^*(t+\tau) \rangle &= 2\nu^2 \langle E_i^*(t)E_i(t) \rangle \langle E_i^*(t+\tau)E_i(t) \rangle \quad \text{pour } \nu \gg 1.
 \end{aligned} \tag{3.27}$$

Par symétrie, on obtient le second terme instantanément :

$$\begin{aligned}
 \langle E(t)E(t+\tau)E^{*2}(t+\tau) \rangle &= 2\nu^2 \langle E_i(t+\tau)E_i^*(t+\tau) \rangle \langle E_i(t)E_i^*(t+\tau) \rangle \\
 &= 2\nu^2 \langle E_i^*(t)E_i(t) \rangle \langle E_i^*(t+\tau)E_i(t) \rangle \\
 \langle E(t)E(t+\tau)E^{*2}(t+\tau) \rangle &= \langle E^2(t)E^*(t)E^*(t+\tau) \rangle,
 \end{aligned} \tag{3.28}$$

d'où :

$$\frac{1}{2} \left(\langle E^2(t)E^*(t)E^*(t+\tau) \rangle + \langle E(t)E(t+\tau)E^{*2}(t+\tau) \rangle \right) = 2\nu^2 \langle E_i^*(t)E_i(t) \rangle \langle E_i^*(t+\tau)E_i(t) \rangle \tag{3.29}$$

et finalement :

$$\boxed{F_1(\tau) e^{-i\omega_0\tau} = g^{(1)}(\tau)} \tag{3.30}$$

Le calcul de $F_2(\tau)$ s'effectue de manière analogue :

$$\langle E^2(t)E^{*2}(t+\tau) \rangle = \sum_{i=1}^{\nu} \langle E_i^*(t)E_i^*(t)E_i(t+\tau)E_i(t+\tau) \rangle$$

$$\begin{aligned}
 & + \sum_{i \neq j} \left\{ \left\langle E_i^*(t) E_j^*(t) E_j(t + \tau) E_i(t + \tau) \right\rangle + \left\langle E_i^*(t) E_j^*(t) E_i(t + \tau) E_j(t + \tau) \right\rangle \right\} \\
 & = \nu \langle E_i^*(t) E_i^*(t) E_i(t + \tau) E_i(t + \tau) \rangle \\
 & \quad + 2\nu(\nu - 1) \langle E_i^*(t) E_i(t + \tau) \rangle^2 \\
 \langle E^2(t) E^{*2}(t + \tau) \rangle & = 2\nu^2 \langle E_i^*(t) E_i(t + \tau) \rangle^2 \quad \text{pour } \nu \gg 1,
 \end{aligned} \tag{3.31}$$

d'où :

$$F_2(\tau) e^{-2i\omega_0\tau} = \left\{ g^{(1)}(\tau) \right\}^2 \tag{3.32}$$

À ce point, il est intéressant de noter que ce terme produit une harmonique d'ordre deux sur l'interférogramme, réminiscence de la non-linéarité du processus. Cette non-linéarité est clairement visible sur l'interférogramme de la figure 3.4.

Un récapitulatif des différents résultats ainsi qu'une application à une source lorentzienne sont présentés dans le tableau 3.2. La simulation de l'interférogramme à deux photons d'une source gaussienne à partir des formules du tableau 3.2 avec un temps de cohérence de 600 fs est présentée sur la figure 3.5.

<i>Fonctions</i>	<i>Expressions théoriques</i>	<i>Applications à une source lorentzienne</i>
$g^{(1)}(\tau)$	$= \frac{\nu \langle E_i^*(t) E_i(t + \tau) \rangle}{\langle E(t) E^*(t) \rangle}$	$= e^{-i\omega_0\tau - \tau /\tau_c}$
$G^{(2)}(\tau)$	$= \frac{1}{2} \left(1 + g^{(1)}(\tau) ^2 \right)$	$= \frac{1}{2} \left(1 + e^{-2 \tau /\tau_c} \right)$
$F_1(\tau)$	$= g^{(1)}(\tau) e^{i\omega_0\tau}$	$= e^{- \tau /\tau_c}$
$F_2(\tau)$	$= \left\{ g^{(1)}(\tau) e^{i\omega_0\tau} \right\}^2$	$= e^{-2 \tau /\tau_c}$
$S_2(\tau)$	$= 2 + g^{(1)}(\tau) ^2 + 4 \operatorname{Re} [g^{(1)}(\tau)] + \operatorname{Re} \left[\left\{ g^{(1)}(\tau) \right\}^2 \right]$	$= 2 + e^{-2 \tau /\tau_c} + 4 \cos(\omega_0\tau) e^{- \tau /\tau_c} + \cos(2\omega_0\tau) e^{-2 \tau /\tau_c}$

Table 3.2: Récapitulatif des fonctions de corrélations pour une source chaotique et application à une source lorentzienne.

Aparté sur l'approche quantique de la fonction de corrélation d'ordre deux d'un corps noir

Nous venons de voir à travers deux modèles légèrement différents comment l'approche ondulatoire classique de l'émission spontanée permet d'expliquer et d'exploiter les interférogrammes obtenus. Le

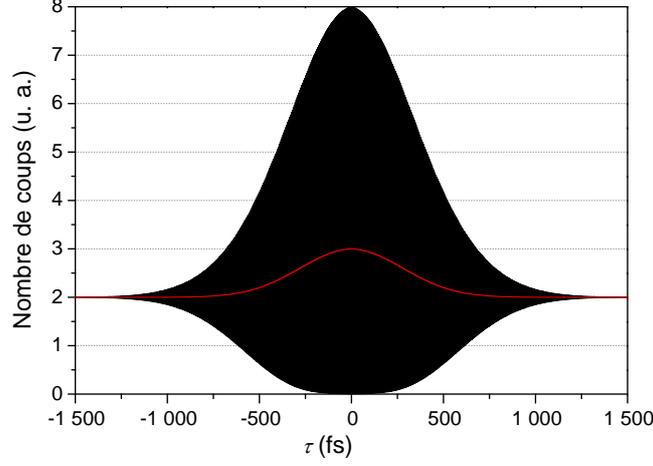


Figure 3.5: Simulation de l'interférogramme à deux photons obtenu à partir d'une source gaussienne.

calcul du degré de cohérence d'ordre deux dans le cadre de la théorie quantique peut être réalisé de manière générale. Cette fonction de corrélation s'écrit alors en fonction des opérateurs champs électriques \hat{E}^+ , de leurs conjugués Hermitien \hat{E}^- et de la matrice densité ρ [Lou00] :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle \hat{I}(t)^2 \rangle}{\langle \hat{I}(t) \rangle^2} = \frac{\text{Tr} [\rho \hat{E}^- \hat{E}^- \hat{E}^+ \hat{E}^+]}{\text{Tr} [\rho \hat{E}^- \hat{E}^+]^2}. \quad (3.33)$$

Dans le cas d'une source chaotique monomode dans une cavité, la distribution de photons est donnée par une distribution géométrique :

$$P_n = \frac{\langle n \rangle^n}{(1 + \langle n \rangle)^{n+1}}. \quad (3.34)$$

Les valeurs moyennes de l'intensité et de son carré peuvent ainsi s'écrire :

$$\text{Tr} [\rho \hat{E}^- \hat{E}^+] = E_\nu^2 \sum_n P_n \langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a} | n \rangle \quad (3.35)$$

$$\text{Tr} [\rho \hat{E}^- \hat{E}^- \hat{E}^+ \hat{E}^+] = E_\nu^4 \sum_n P_n \langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a} | n \rangle. \quad (3.36)$$

Il reste à appréhender les nombres de photons $\langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a} | n \rangle$ et $\langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a} | n \rangle$ qui se déduisent des relations de commutation sur lesquelles repose la relation de dispersion de Heisenberg :

$$\langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a} | n \rangle = n \quad (3.37)$$

$$\langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a} | n \rangle = n^2 - n. \quad (3.38)$$

En injectant ces résultats dans l'équation 3.33, on obtient finalement le résultat souhaité :

$$g^{(2)}(0) = \frac{2 \langle n \rangle^2}{\langle n \rangle^2} = 2. \quad (3.39)$$

Précisons que la démonstration de la dépendance de $g^{(2)}(\tau)$ en fonction du retard τ nécessite d'utiliser le formalisme des variables continues. Elle n'est pas reproduite ici mais on peut néanmoins souligner que, dans le cas d'une source chaotique, l'approche classique ondulatoire conduit bien au même résultat, à savoir la relation 3.26 [Lou00]. Notons ici que si dans le cas présent l'approche classique permet de retrouver les résultats de la description quantique, cette dernière est incontournable pour modéliser les cas où $g^{(2)}(0) < 1$ comme dans le cas de sources antibunchées [Lou00]. Enfin, on notera qu'en suivant l'approche proposée par Fano [Fan61], il est possible d'interpréter le phénomène de *bunching* en terme d'interférences quantiques – conséquence de l'indiscernabilité des chemins suivis par les différents photons.

3.4 Exploitation des interférogrammes

3.4.1 Degré de cohérence d'ordre deux

Comme nous venons de le voir lors de la modélisation de l'interférogramme, l'application d'un filtre basse fréquence au signal de l'interférogramme va conduire à mesurer :

$$S_2^{p.b.}(\tau) = 1 + 2G^{(2)}(\tau). \quad (3.40)$$

L'expression ci-dessus va permettre d'extraire l'évolution du degré de cohérence d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$ en fonction du retard à partir de l'expression 3.10 :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{G^{(2)}(\tau)}{G^{(2)}(\infty)} = \frac{[S_2^{p.b.}(\tau) - 1]}{[S_2^{p.b.}(\infty) - 1]}. \quad (3.41)$$

Les figures 3.4 et 3.6 représentent les interférogrammes obtenus avec la source ASE et la lampe halogène. Les courbes rouges sont le résultat du traitement numérique des courbes avec un filtre laissant passer les basses fréquences. Les valeurs du degré de cohérence d'ordre deux sont ensuite extraites et présentées sur la figure 3.7 pour les trois types de sources : le laser, la source ASE et la lampe halogène. La valeur de $g^{(2)}(0)$ est de $1 \pm 0,1$ pour le laser, $1,97 \pm 0,1$ pour la source ASE et de $1,8 \pm 0,1$ pour la lampe halogène. Le phénomène de *bunching* de photons a ainsi été mis en évidence pour des sources réellement chaotiques – non-filtrées – et les valeurs observées sont très proches de celles prévues par la théorie. De plus, l'allure des courbes est en accord avec les prévisions théoriques des résultats obtenus pour une source gaussienne :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + e^{-\pi(\tau/\tau_c)^2} \quad (3.42)$$

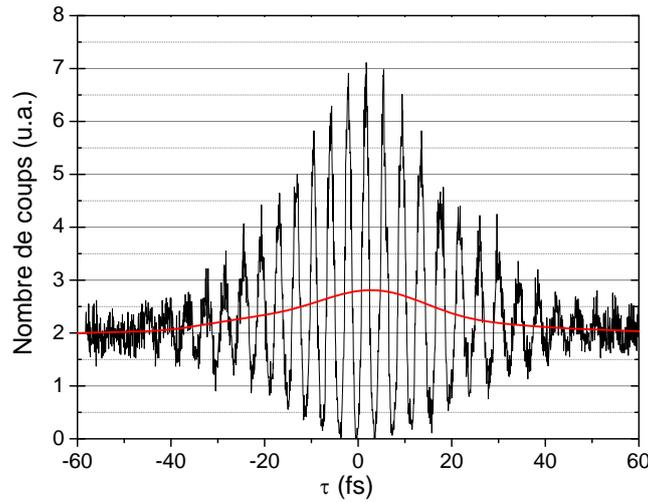


Figure 3.6: Interférogramme d'autocorrélation d'une lampe halogène dont le spectre s'approche de celui du corps noir.

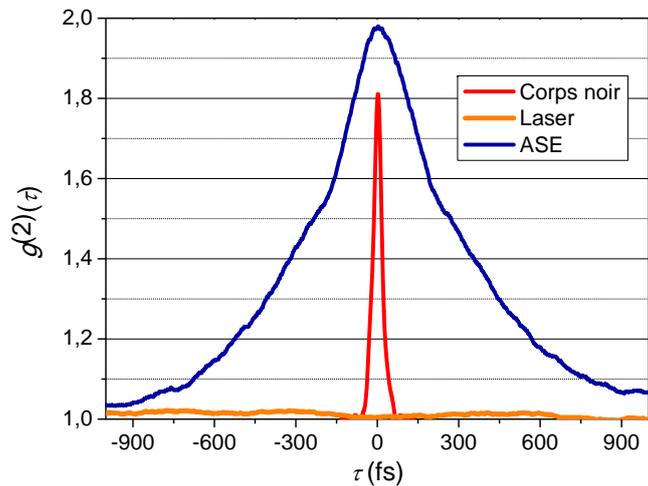


Figure 3.7: Degré de cohérence d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$ pour un laser, une source ASE et une lampe halogène.

avec τ_c le temps de cohérence de la source, égal à 534 fs pour l'ASE et à 37 fs pour l'halogène.

Ce phénomène de *bunching* souligne le fait que pour une source chaotique les photons ont tendance à être détectés par paquet sur le détecteur ce qui n'est pas le cas pour un laser. Le résultat est surprenant si l'on s'attache à décrire le phénomène en terme de photons – *i.e.* à l'aide de la théorie quantique – puisqu'il met en lumière le caractère markovien d'ordre 2 d'une source chaotique, *i.e.* que les événements futurs vont dépendre des événements passés et présents. Ce comportement ne se retrouve pas avec un laser où la statistique de photon est poissonnienne et donc purement markovienne. La valeur de 1 pour la fonction d'autocorrélation du laser prouve cette indépendance au temps. La statistique de photons d'un laser peut ainsi sembler plus "aléatoire" que celle d'une source chaotique.

Notons que la figure 3.7 est la première démonstration expérimentale directe du phénomène de *bunching* de photons issus d'un corps noir, *i.e.* à l'équilibre thermodynamique

de l'émission spontanée et stimulée [Fan61, Man71]. Ceci confirme l'énorme potentiel du comptage à deux photons en optique quantique.

3.4.2 Composantes oscillantes de l'interférogramme

Nous avons vu dans la partie 3.3 que l'interférogramme contenait des composantes oscillantes aux fréquences ω_0 et $2\omega_0$. Ces différentes composantes, présentées aux équations 3.6 à 3.9, peuvent être isolées numériquement et sont présentées en figure 3.8. On remarque que la fonction $G^{(2)}(\tau)$ se

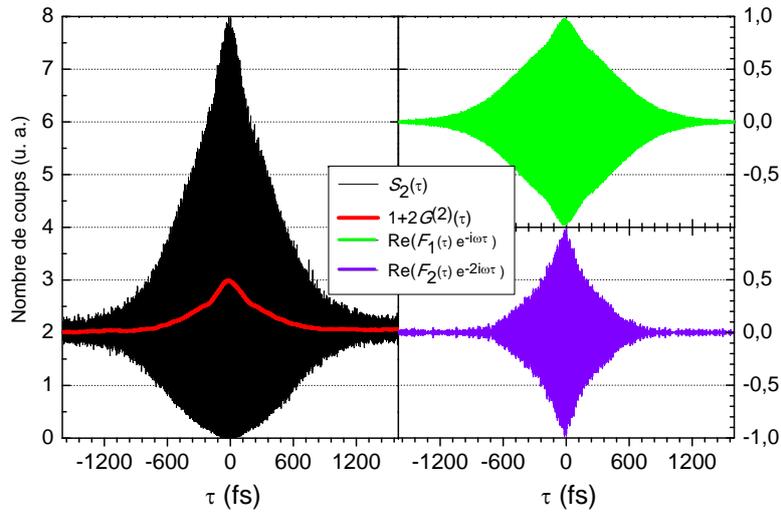


Figure 3.8: Traitement numérique d'un interférogramme d'autocorrélation d'une source ASE et extraction des composantes oscillantes.

comporte comme la fonction enveloppe de $\text{Re}[F_2(\tau)e^{-2i\omega_0\tau}]$ comme le prévoit la théorie pour une source chaotique. La prise en compte de l'enveloppe de la fonction $F_2(\tau)$ plutôt que de la fonction $G^{(2)}(\tau)$ est utile lorsqu'il s'agit de caractériser des impulsions laser. En effet, l'utilisation de cette fonction permet d'annuler les effets dus au *chirp* du laser et ainsi de caractériser pleinement l'impulsion [Kik98, Chi06]. Par ailleurs, la fonction $\text{Re}[F_1(\tau)e^{-i\omega_0\tau}]$ est l'interférogramme en champ auquel on peut appliquer le théorème de Wiener-Khintchine qui relie le spectre d'une source à sa fonction de corrélation d'ordre un :

$$\mathcal{F}(\omega) = \frac{1}{\pi} \text{Re} \int_0^{\infty} g^{(1)}(\tau) e^{i\omega_0\tau} d\tau \quad (3.43)$$

où $\mathcal{F}(\omega)$ est le spectre normalisé de la source. Une simple transformée de Fourier de l'interférogramme nous permet donc de remonter au spectre d'excitation (voir figure 3.9) de manière analogue au principe bien connu des spectromètres à TF. La largeur des raies sur les spectres permet de remonter à la largeur de la source. Pour la source ASE, la largeur à -3 dB de la raie centrée à 196 THz est de 0,8 THz ce qui correspond à une longueur d'onde λ et une largeur spectrale $\Delta\lambda$ de :

$$\lambda = \frac{c}{\nu} = 1,53 \mu\text{m} \quad \text{et} \quad \Delta\lambda = \lambda \frac{\Delta\nu}{\nu} = 6,25 \text{ nm}. \quad (3.44)$$

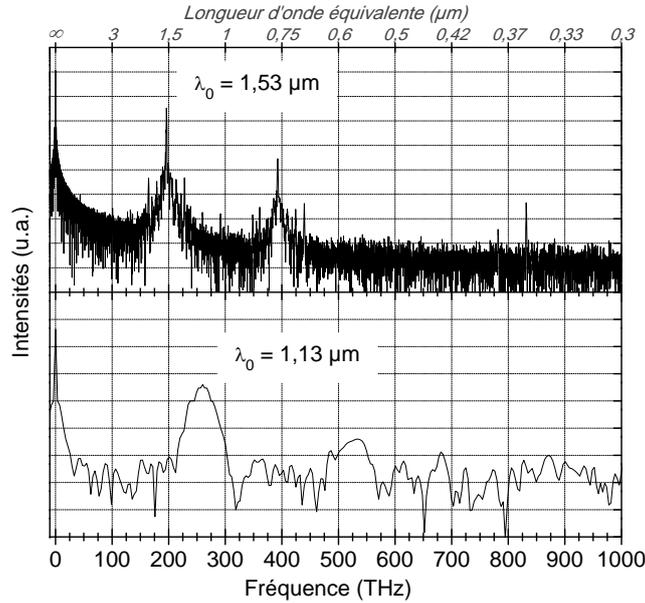


Figure 3.9: Transformée de Fourier rapide des interférogrammes à deux photons de (haut) la source ASE et de (bas) la lampe Halogène.

Ces valeurs sont en accord avec, d'une part, le spectre de la source présenté à la figure 3.2 et d'autre part avec le temps de cohérence extrapolé de la fonction de cohérence du second ordre sur la figure 3.7 (14 nm). Pour la source halogène, la largeur à -3 dB de la raie centrée à 260 THz est de 35 THz ce qui correspond à une longueur d'onde λ de 1,15 μm et une largeur spectrale $\Delta\lambda$ de 155 nm ce qui est en accord avec celle de 120 nm déduite du temps de cohérence extrapolé de la mesure du $g^{(2)}(\tau)$.

3.5 Mesures d'interférogrammes supplémentaires

3.5.1 Mesure directe du degré de cohérence du second ordre

La mesure quasi-directe du degré de cohérence du second ordre est entendue au sens d'une mesure sans les composantes oscillantes de l'interférogramme. De manière à supprimer les interférences en champ, il suffit que les polarisations des champs I_1 et I_2 de la figure 3.1 soient à 90° l'une de l'autre. Une lame quart d'onde est rajoutée dans ce sens dans un des bras de l'interféromètre. L'intensité du champ arrivant sur le détecteur s'écrit donc simplement :

$$I^\perp(t, \tau) = |E(t)|^2 + |E(t + \tau)|^2. \quad (3.45)$$

La mesure expérimentale de la valeur moyenne de l'intensité issue de l'interféromètre équipé d'un détecteur à un photon est proposée sur la figure 3.10. La largeur de la source étant plus large que l'acceptance de la lame quart d'onde, il n'est pas possible de croiser les polarisations des champs sur l'ensemble des longueurs d'onde et de petites oscillations demeurent visibles.

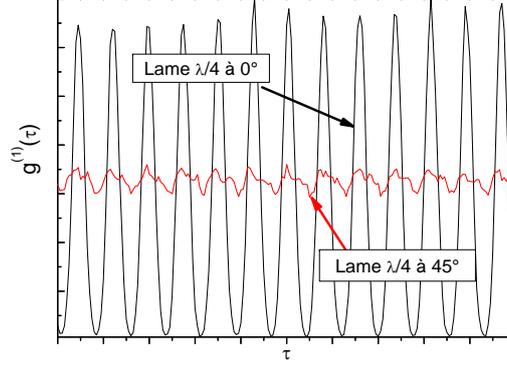


Figure 3.10: Mesure de l'intensité en sortie d'interféromètre en fonction du retard pour différents angles de la lame quart d'onde.

Le signal à deux photons normalisé reçu par le détecteur sera de la forme :

$$S_2^\perp(\tau) = \frac{\langle I^2(t, \tau) \rangle}{2 \langle I_0^2(t) \rangle} = 1 + G^{(2)}(\tau). \quad (3.46)$$

Pour une source chaotique, nous avons vu que l'équation 3.10 relie la fonction $G^{(2)}(\tau)$ et la fonction de cohérence d'ordre deux. Il en découle l'expression suivante de $g^{(2)}(\tau)$ en fonction du signal d'absorption à deux photons :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{S_2^\perp(\tau) - 1}{S_2^\perp(\infty) - 1}. \quad (3.47)$$

L'interférogramme n'est donc plus normé à la valeur de 2 quand le retard τ tend vers l'infini mais vers la valeur de 1,5, soit $S_2^\perp(\infty) = 1,5$. Le résultat obtenu avec la source ASE est montré sur la figure 3.11. La courbe rouge correspond à la fonction de corrélation d'ordre deux lorsque les polarisations sont perpendiculaires et la courbe noire lorsqu'elles sont parallèles. L'encart montre le signal d'interférence à deux photons sur lequel on observe des résidus des interférences en champ. Le traitement par un filtre numérique passe-bas a toutefois été nécessaire. L'utilisation d'une lame quart d'onde d'ordre zéro, moins sensible à l'écart aux longueurs d'onde et centrée sur 1530 nm permettrait d'atteindre un meilleur coefficient d'extinction.

Toutefois, compte tenu de la simplicité du traitement numérique requis dans le cas de l'interféromètre, des informations supplémentaires obtenues et de la réduction de la bande passante introduite par la lame quart d'onde, l'utilisation de ce montage n'a pas été poursuivie.

3.5.2 Étude des corrélations de photons issus d'un supercontinuum

Enfin, nous nous sommes intéressés à un type de source un peu particulier et pour lequel peu d'études sur les corrélations de photons ont été menées : les sources supercontinuum. Récemment, des études de corrélations ont été réalisées sur des supercontinuum particuliers pour caractériser les phénomènes d'ondes scélérates optiques et faire le lien avec l'équivalent maritime inconnu mais aux conséquences catastrophiques [Ham08].

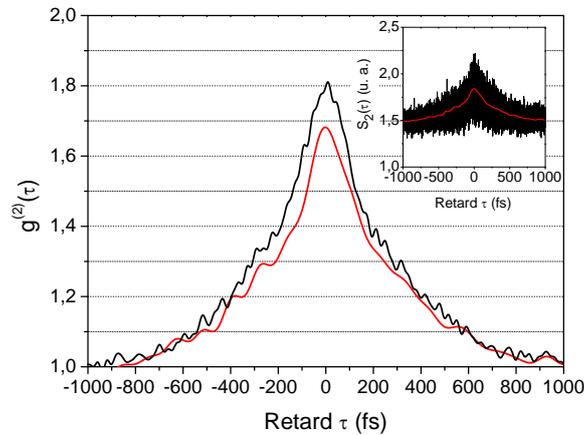


Figure 3.11: Fonction d'autocorrélation d'une source ASE avec une lame quart d'onde dans un des bras de l'interféromètre pour différents angles entre les polarisations des champs sur le détecteur (rouge : polarisations à 90° ; noir : polarisations parallèles). L'encart montre l'interférogramme obtenu avec les polarisations à 90° . Un filtre passe bas (courbe rouge) a été nécessaire pour éliminer les interférences résiduelles visibles sur l'encart et c'est le résultat de son action qui est présenté sur la figure principale.

Du fait de la complexité des processus mis en jeu lors de la génération d'un supercontinuum¹⁰, l'objectif de la présente étude n'est pas d'expliquer les corrélations de photons issus d'une telle source. Il s'agit ici de mesurer ces corrélations et, sans développement mathématique supplémentaire, de les comparer à celles des photons issus d'une source chaotique.

À l'origine, un supercontinuum est une source dont le très large spectre a été obtenu à partir de l'élargissement d'une impulsion laser par des effets non linéaires dans une fibre optique. En régime nanoseconde et picoseconde, ce sont les effets de mélange à quatre ondes qui participent le plus à l'élargissement du spectre en régime de dispersion normal. Dans un premier temps et de façon schématique, l'impulsion laser en s'appuyant sur le bruit quantique crée une impulsion complémentaire qui va être amplifiée dans la fibre en suivant la courbe de gain. Par la suite, un effet de "cascade" va permettre la création d'autres pics qui vont à leur tour être amplifiés pour former finalement un continuum couvrant une très large gamme de longueurs d'ondes. [Dud06, Gen07, Duh09]

Mesure des corrélations de photons issus d'un supercontinuum commercial

La source supercontinuum dont nous disposons est une source commerciale Koheras délivrant des impulsions de 20 ns à 25 kHz d'une puissance moyenne de 125 mW avec un spectre continu de 700 nm à plus de $2 \mu\text{m}$. L'allure d'un train de pulse, observable à l'aide d'une photodiode classique, ainsi que la fonction de corrélation d'ordre un sont présentées sur la figure 3.12. Étant donné la très grande

¹⁰. Nous verrons par exemple au cours du chapitre suivant que la modélisation des corrélations des photons produits par fluorescence paramétrique, a priori plus simple que celles des mélanges à quatre ondes en cascades à considérer ici, nous impose l'utilisation d'un modèle mathématique complexe. L'étude, la modélisation et la compréhension des corrélations d'un supercontinuum n'ont donc pas été traitées dans le cadre de ce travail de thèse. Il n'en demeure pas moins d'une très grande importance aux vues du développement actuel des sources de ce type.

largeur du spectre, le temps de cohérence τ_c attendu (visible sur la figure 3.12(b)) pour une telle source est de l'ordre de quelques dizaines de femtosecondes, comme dans le cas de la lampe halogène.

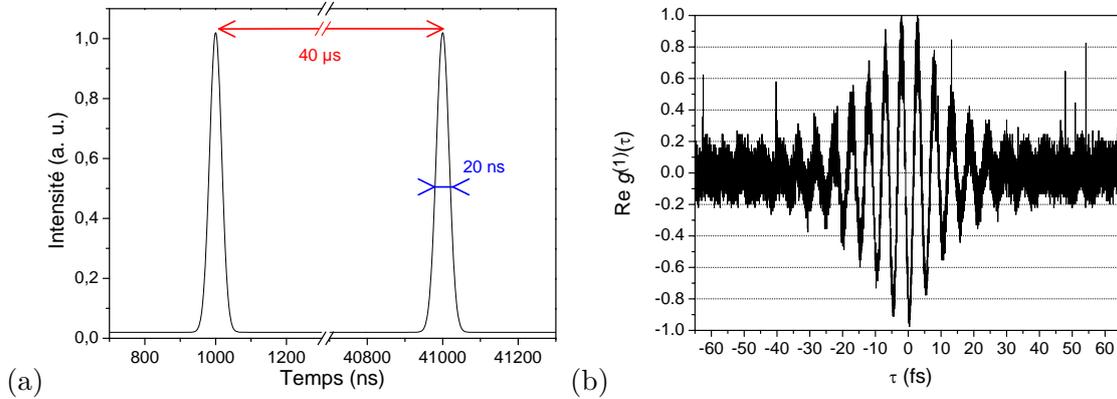


Figure 3.12: Caractérisation à un photon : (a) Allure des impulsions de 20 ns à 25 kHz (théorie). (b) Partie réelle de la fonction de corrélation d'ordre un $g^{(1)}(\tau)$ d'une source supercontinuum.

L'interférogramme à deux photons réalisé à l'aide de l'interféromètre utilisé précédemment (Fig. 3.1) est présenté sur la figure 3.13(a)¹¹. Il faut noter ici que, dans sa configuration actuelle, notre interféromètre ne nous permet pas d'explorer l'intégralité des corrélations entre les impulsions de 20 ns – ce qui équivaldrait à déplacer le miroir mobile de plusieurs mètres. Le retard introduit par l'interféromètre est minime devant la durée d'une impulsion et le supercontinuum nous apparaît alors comme une source “continue”.

La transformée de Fourier, présentée sur la figure 3.13(b), permet de remonter à quelques caractéristiques spectrales de la source. La largeur à -3 dB de la raie centrée à 204 THz est de 10 THz ce qui correspond à une longueur d'onde λ de 1,47 μm et à une largeur spectrale $\Delta\lambda$ de 72 nm.

Le supercontinuum comme source chaotique ?

Pour illustrer la mesure de corrélation précédente, une source chaotique délivrant des impulsions nanosecondes a été modélisée. L'interférogramme d'autocorrélation est présenté à la figure 3.14(a). Le signal à deux photons relatif à la durée des impulsions s'étend sur plusieurs dizaines de nanosecondes (voir les parties latérales) tandis que le phénomène de *bunching* n'est observable qu'aux très brèves échelles de temps, de l'ordre de la dizaine de fs (partie centrale). La courbe rouge, limitée au même intervalle d'étude que celui du supercontinuum (-450 fs; 450 fs), montre clairement l'exaltation du signal associé aux phénomènes de *bunching* de photons. On notera que la courbe rouge, décrite par l'équation 3.40, passe bien de la valeur de 3 à 2 lorsque le retard n'est plus nul.

11. La procédure de normalisation de l'interférogramme est légèrement différente de celle utilisée précédemment. Ici, c'est la courbe rouge, résultant de l'action d'un filtre passe bas sur l'interférogramme (Eq. 3.40), qui nous a servi de support de normalisation. Sa valeur en zéro a été fixée à 3. Cela vient du fait que la fonction $G^2(0) = 1$, par définition (voir Eq. 3.9). Expérimentalement, nous avons été obligés de recourir à cette procédure particulière du fait du régime impulsif nanoseconde (et du taux de répétition limité) qui entraîne un effet de saturation sur la réponse de notre détecteur à deux photons, diminuant ainsi le contraste des franges d'interférences (la valeur maximum n'atteint pas 8). Ce phénomène de saturation n'a pas d'incidence équivoque sur les considérations physiques qualitatives qui suivent.

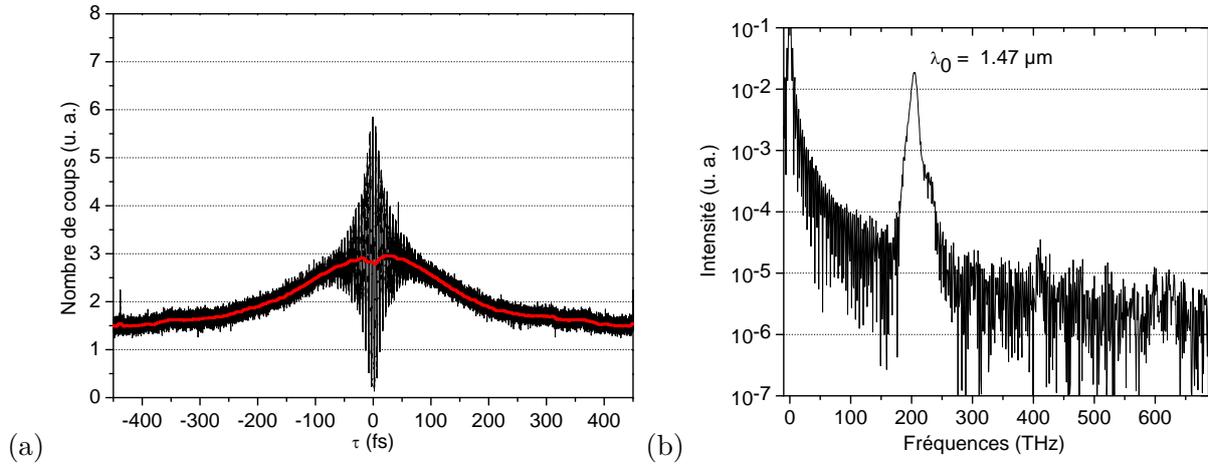


Figure 3.13: Caractérisation à deux photons : (a) Interférogramme à deux photons d'une source supercontinuum (L'impulsion qui s'étend sur 20 ns n'est pas observable sur l'interférogramme). La courbe rouge résulte de l'action d'un filtre passe bas sur le signal d'interférence à deux photons. (b) Transformée de Fourier rapide du signal d'interférence.

En comparant la courbe rouge de la source chaotique (Fig. 3.14(a)) à celle du supercontinuum (Fig. 3.13(a)), plusieurs commentaires peuvent être faits :

- L'exaltation du signal au faible retard se retrouve bien lors de l'étude du supercontinuum. Cette exaltation associée au *bunching* de photons apparaît plus marquée que celle d'une source chaotique. L'équation 3.41 conduit à une valeur de $g_{s.c.}^{(2)}(0) = 6$ (au lieu de $g_{chaot.}^{(2)}(0) = 2$ pour une source chaotique)¹².
- Le temps de corrélation de photon déduit de la courbe rouge $\tau_{ph} \approx 150$ fs est supérieur au temps de cohérence de la source¹³ $\tau_c \approx 40$ fs . L'allure de l'interférogramme du supercontinuum fait alors penser à celui d'une impulsion femtoseconde faiblement chirpée visible sur la figure 3.14(b) (la dispersion conduisant à un allongement de la durée de l'impulsion) [Kik98].

Les deux descriptions simples proposés ne permettent pas de rendre compte de manière satisfaisante de l'interférogramme observé expérimentalement. Pour aller plus loin dans l'interprétation, des mesures supplémentaires¹⁴ ainsi qu'une meilleure connaissance de la structure de la source¹⁵ sont nécessaires.

12. L'effet de saturation du détecteur tend à minimiser la valeur de $g_{s.c.}^{(2)}(0)$ et nous conforte dans cette voie.

13. Le temps de cohérence spectrale est lié à la largeur spectrale de la source : $\tau_c \sim \frac{1}{\Delta\omega}$.

14. Notamment une analyse de l'influence de la dispersion.

15. L'utilisation d'un produit commercial ne nous a pas permis d'avoir accès à certaines caractéristiques de la source, en particulier la durée de l'impulsion du laser de pompe, sa longueur d'onde ou la longueur de la fibre.

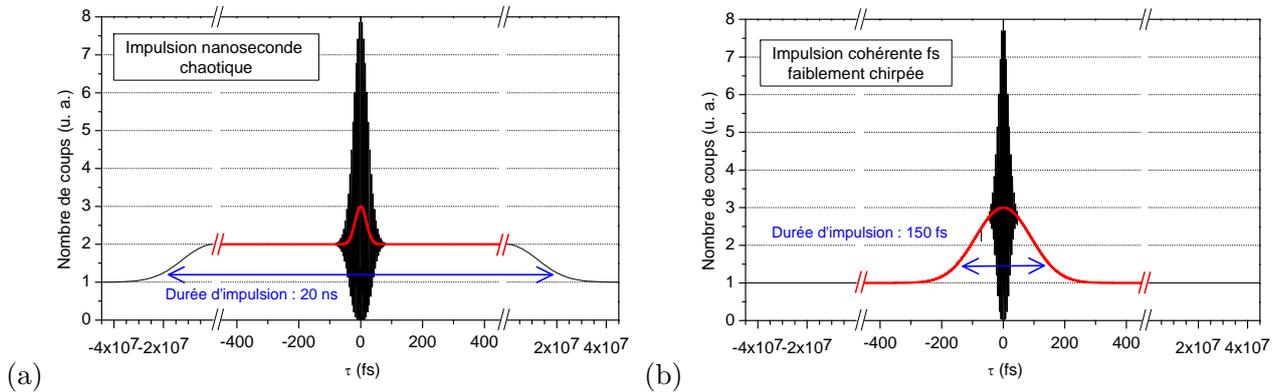


Figure 3.14: (a) Interférogramme à deux photons d'une source chaotique impulsionnelle nanoseconde. L'exaltation du signal dû aux corrélations chaotiques de photons (analogue à celle de la figure 3.4) s'étend sur quelques dizaines de fs (partie centrale) tandis que les deux parties latérales montrent l'évolution du signal à deux photons pour des très grands retards de l'ordre de la dizaine de ns. Seule la partie centrale est mesurable avec notre dispositif expérimental. La courbe rouge résulte de l'action d'un filtre passe bas sur le signal à deux photons. (b) Interférogramme d'autocorrélation d'une impulsion laser femtoseconde faiblement chirpée. La dispersion allonge la durée d'impulsion à 150 fs. La courbe rouge est le résultat d'un filtre passe bas sur le signal à deux photons.

Synthèse

Le développement de l'interféromètre à deux photons nous a permis de réaliser des mesures d'autocorrélation de sources classiques pouvant avoir un spectre très large à des échelles de temps très brèves. La résolution temporelle atteinte est de l'ordre de la femtoseconde. La limite électronique d'une expérience de Hanbury Brown et Twiss habituelle a été déplacée à la limite mécanique de la platine de translation gagnant ainsi près de six ordres de grandeur en résolution. Cette précision nous a permis l'étude de sources avec des temps de cohérence de l'ordre de quelques dizaines de femtosecondes. Nous avons ainsi, pour la première fois, réalisé une mesure directe du *bunching* de photons – *i.e.* l'arrivée de photons par paquet – pour des sources classiques très larges spectralement. Notons que ce phénomène a été prévu depuis longtemps par la théorie et souligne le caractère non markovien des sources chaotiques.

À la suite de la validation de notre montage à l'aide de sources classiques, nous allons nous intéresser dans le chapitre suivant à la lumière non classique et en particulier à la lumière paramétrique.

Chapitre 4

Corrélations du second ordre de photons issus d'un générateur paramétrique optique

Objectifs

Dans ce chapitre, nous allons étudier, théoriquement et expérimentalement, les corrélations de photons “jumeaux” générées par fluorescence paramétrique. Pour cela, il sera nécessaire de développer une source de fluorescence paramétrique dont nous caractériserons le spectre, la puissance ainsi que la réponse de notre détecteur à deux photons. Dans un second temps, des expériences d'autocorrélation seront réalisées sur ces paires de photons. En particulier, nous étudierons le cas où les photons d'une même paire sont à des longueurs d'ondes très proches (dégénérescence) et celui où elles sont très éloignées (hors dégénérescence). Pour valider nos résultats, notre développement théorique, basé sur une approche purement quantique, permettra d'étudier l'influence des pertes ainsi que de la dispersion dans les différents éléments du système. Nous verrons comment il est possible de faire le lien entre cette approche quantique et l'approche simple consistant à considérer les coïncidences “exactes” des photons d'une même paire et les coïncidences “accidentelles” de photons issus de paires différentes. Nous nous intéresserons alors plus particulièrement aux résultats expérimentaux lorsque les phénomènes de dispersion sont compensés ainsi qu'à la mesure directe des coïncidences exactes par le développement théorique et expérimental d'un nouvel interféromètre – dérivé de l'interféromètre de Mach-Zehnder. Enfin, nous proposerons également, en s'inspirant de l'approche réalisée au chapitre 3, une description classique stochastique du champ électrique issu d'un générateur paramétrique permettant d'adopter un point de vue plus intuitif des différents processus mis en jeu.

4.1 Contexte

4.1.1 Historique

L'étude des corrélations de photons est devenue d'une importance critique dans nombres d'expériences. Elle trouve son application dans l'étude des champs classiques avec la spectroscopie de corrélation de photons [Cum74] ou la profilométrie à haute résolution [Tan03], mais encore plus dans celle des champs quantiques, notamment avec le développement de la téléportation quantique et des technologies de cryptographie [Bou97, Mig99, Bou00, Ser01, Ser03, Gis07]. L'évaluation des propriétés de corrélation revêt une importance toute particulière pour les états à deux photons que sont les paires de photons jumeaux issues des processus de fluorescence paramétrique. Depuis l'expérience HBT sur les sources paramétriques réalisée par Friberg *et al.* [Fri85] dont nous avons présenté les limites, différents dispositifs ont été proposés pour s'affranchir du temps de réponse des détecteurs. Au premier plan de ces techniques, il y a bien entendu l'interféromètre de Hong Ou Mandel qui possède nombre des qualités requises à l'étude des corrélations avec une excellente résolution, inférieure à la femtoseconde [Hon87]. Le seul regret à avoir concerne le champ d'étude restreint à de très faibles flux nécessaires au bon fonctionnement de ce type d'interféromètre¹. Abram *et al.* ont développé une autre technique qui repose sur l'utilisation d'un cristal doubleur [Abr86]. Le faisceau de lumière paramétrique est séparé en deux faisceaux par une lame séparatrice. Ils sont ensuite recombinaés sur un cristal non linéaire après avoir parcouru un chemin optique différent. Plus récemment, suivant le montage expérimental proposé par Dayan *et al.* [Day05, Pe'05] revisitant l'expérience d'Abram *et al.*, plusieurs équipes – qui ont publié leurs résultats durant ces travaux de thèse – ont amélioré sensiblement les performances de l'expérience en compensant la dispersion et en tirant parti des améliorations significatives concernant les détecteurs et surtout les cristaux non linéaires [Zäh08, O'D09, Sen10, Hay10b, Hay10a]. Ces expériences permettent d'atteindre de très bonnes résolutions temporelles, jusqu'à la femtoseconde, mais l'utilisation de cristaux non linéaires restreint leur champ d'application par les conditions d'accord de phase qu'ils imposent. La faible acceptation spectrale du cristal de somme de fréquences est une conséquence réductrice pour notre étude qui va sélectionner les paires de photons d'énergies complémentaires. Cette limitation est toutefois la pierre angulaire des travaux de Dayan qui a développé un modèle théorique décrivant les processus de somme de fréquences et d'absorption à deux photons reposant sur ce principe pour étudier les corrélations au sein d'une même paire de photons [Day07].

L'utilisation de l'absorption à deux photons dans un semiconducteur va permettre de contourner cette limite en augmentant très largement la bande passante de détection. En tirant parti du fait que (i) les transitions à deux photons ne sont pas résonnantes mais incluent toutes celles possibles entre la bande de valence et celle de conduction du semiconducteur et (ii) qu'aucune condition d'accord de phase n'est requise par le processus d'absorption à deux photons, l'étude des corrélations ne sera donc plus confinée aux photons d'énergies complémentaires et, incluant toutes les combinaisons de photons possibles, conduira à la pleine caractérisation des propriétés de corrélation de la source.

1. Le champ peut être fortement multimode mais chaque mode doit contenir au plus une paire de photons jumeaux *i.e.* $|1,1\rangle$ [Hon87, Ou99].

4.1.2 Une première approche des corrélations de paires de photons

Le développement de sources paramétriques générant des paires de photons intriqués est toujours un sujet actif [Gis02, Tem06, Lan06, Pom09, Dou10]. Dans le cadre de l'optique non linéaire dont nous avons brièvement rappelé les bases au chapitre 1, les processus paramétriques de doublage de fréquence ou d'amplification paramétrique sont issus de l'interaction d'une ou plusieurs ondes lumineuses avec un matériau possédant un tenseur non linéaire d'ordre deux $\chi^{(2)}$ non nul. Le vecteur de polarisation non linéaire $\overline{P^{NL}}(\vec{r}, t)$ de l'onde introduit dans l'équation 1.1 doit cette fois prendre en compte ce nouveau tenseur pour aboutir à un nouveau système d'équations couplées². Si l'approche ondulatoire semi-classique de l'optique non linéaire permet de modéliser de nombreux dispositifs non linéaires³ au sein desquels on peut citer les OPO [God04] par exemple, seule la théorie quantique est à même d'expliquer rigoureusement l'origine du phénomène de fluorescence paramétrique.

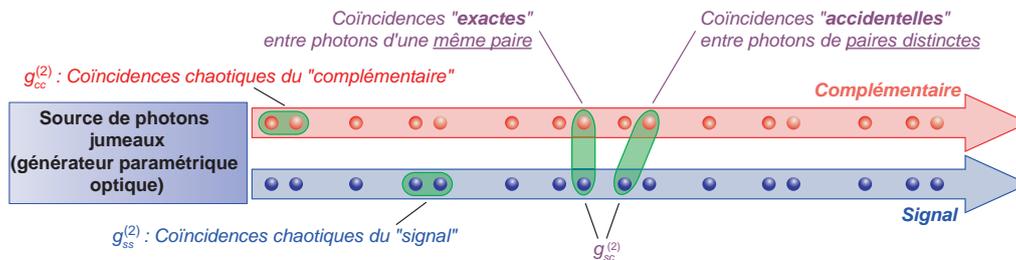


Figure 4.1: Approche corpusculaire naïve des corrélations de photons issus d'une source de photons jumeaux.

Dans le cadre d'une première description corpusculaire simple⁴, analogue à celle décrivant le *bunching* de photons issus d'une source chaotique, le flux de photons issus d'une source de photons jumeaux est présenté sur la figure 4.1. Le faisceau global est composé de deux sous-faisceaux, signal et complémentaire, dont les photons respectifs placés l'un au-dessus de l'autre sont jumeaux – ils constituent une paire de photons créés quasiment aux mêmes instants. De plus, avec la plupart des sources, chaque sous-faisceau considéré, indépendamment de l'autre, a les propriétés d'une source chaotique⁵. Dans cette approche, la mesure des corrélations des photons du faisceau global va représenter différents types de coïncidences :

2. On trouvera une formulation simplifiée de ce système d'équations couplées à l'annexe B.1 ainsi que dans les ouvrages traitant de l'optique non linéaire – basée sur un formalisme plus ou moins simplifié en fonction des hypothèses [She84, Yar89, Boy92].

3. À la manière de l'interprétation quantique de l'émission d'un corps noir, le système d'équations couplées non linéaires, qui s'obtient aisément en remplaçant les champs classiques par leurs opérateurs associés, nous amène à interpréter le phénomène de fluorescence paramétrique comme l'amplification du bruit de photons du vide [Yar89, Lou00, Tan02].

4. L'approche stochastique originale sur laquelle sont basées ces considérations est présentée à la partie 4.7. On trouvera par ailleurs une description quantique plus rigoureuse à la partie 4.4 et les détails des calculs à l'annexe C. Le but de cette introduction – s'appuyant volontairement sur une démarche "intuitive" des corrélations des paires de photons – est d'introduire le vocabulaire "particulier" (coïncidences exactes, accidentelles...) que nous utiliserons tout au long de ce chapitre.

5. Ce comportement est celui d'une source de photons jumeaux basée sur la fluorescence paramétrique dans un cristal non linéaire [Shi03, Bla09].

1. Les coïncidences dues à l'effet HBT classique observable sur chaque sous-faisceau – indépendamment de l'autre. Elles montrent le *bunching* de photons issus de sources chaotique. Les corrélations de ce type sont caractérisées par deux fonctions de corrélation d'ordre deux distinctes : $g_{ss}^{(2)}(\tau)$ pour le signal et $g_{cc}^{(2)}(\tau)$ pour le complémentaire. Chacune de ces fonctions est de la forme de l'équation 3.26, *i.e.* celle de la fonction de corrélation d'ordre deux d'une source chaotique usuelle⁶.
2. Les coïncidences “accidentelles” entre les photons signal et complémentaire appartenant à des paires différentes. Elles représentent les corrélations entre les deux faisceaux qui ne sont pas dues aux paires de photons, c'est-à-dire les corrélations entre deux sources chaotiques indépendantes : elles ne sont pas corrélées ! La contribution des coïncidences accidentelles doit donc être indépendante du temps.
3. Les coïncidences “exactes” entre les photons signal et complémentaire appartenant à une même paire. Ce sont celles qui ont été mises en évidence par les différentes équipes étudiant les corrélations à l'aide des techniques de sommes de fréquences [Abr86, Day07, O'D09, Sen10, Hay10b, Hay10a]. Ces coïncidences “exactes” apportent alors une contribution supplémentaire et devraient conduire à l'augmentation du degré de cohérence d'ordre deux du faisceau global $g^{(2)}(\tau)$ aux faibles retards [Mol73, McN75, Lou00, Gro07].

On notera enfin que la mesure des coïncidences de types (2) et (3) conduirait à la mesure de la fonction d'intercorrélation $g_{sc}^{(2)}(\tau)$. Soulignons ici que la mesure de cette fonction d'intercorrélation n'a jamais été réalisée puisque les mesures de corrélations à l'aide des techniques de sommes de fréquences ne donnent accès qu'au type (3) ne permettent pas de mesure quantitative⁷.

Pour compléter l'intuition corpusculaire que nous venons de développer – et y ajouter un brin de rigueur scientifique –, on se propose ici d'évaluer la valeur du degré de cohérence d'ordre deux à délai nul. Notre approche est basée sur une description quantique simple à deux modes, analogue au modèle quantique conduisant à la valeur $g^{(2)}(0)$ d'une source chaotique (voir page 77) [Lou00, Gry10]. L'état du champ produit par une source de fluorescence paramétrique peut s'écrire [Lou00, Gry10] :

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{G}} \sum_{n=0}^{\infty} \left(1 - \frac{1}{G}\right)^{n/2} |n_s, n_c\rangle$$

où G est le gain paramétrique en intensité du cristal non linéaire de génération et où les nombres de photons signal n_s et complémentaire n_c sont égaux, *i.e.* $n_s = n_c = n$. Par définition, la valeur de $g^{(2)}(0)$ est de :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\|\hat{E}^{(+)}\hat{E}^{(+)}|\psi\rangle\|^2}{\|\hat{E}^{(+)}|\psi\rangle\|^4} \quad (4.1)$$

6. On notera ici que le comportement chaotique de chaque sous-faisceau doit permettre d'assimiler sa fonction de cohérence d'ordre deux, $g_{ss}^{(2)}(\tau)$ ou $g_{cc}^{(2)}(\tau)$, donnée par la formule usuelle (Eq. 3.26) à celle d'une source gaussienne (Eq. 3.42).

7. Ceci est dû au fait que ces mesures sont réalisées sur “fond noir” et ne donnent accès à aucun signal de référence ou échelle de mesure.

où l'opérateur champ électrique $\hat{E}^{(+)}$ s'écrit, en première approximation, $\hat{E}^{(+)} \approx E_0 \sum_k \hat{a}_k$. En appliquant ce dernier opérateur à l'état $|\psi\rangle$, on obtient :

$$\hat{E}^{(+)} |\psi\rangle = \frac{E_0}{\sqrt{G}} \sum_{n=0}^{\infty} \left(1 - \frac{1}{G}\right)^{n/2} \sqrt{n} (|n-1, n\rangle + |n, n-1\rangle) \quad (4.2)$$

$$\hat{E}^{(+)} \hat{E}^{(+)} |\psi\rangle = \frac{E_0}{\sqrt{G}} \sum_{n=0}^{\infty} \left(1 - \frac{1}{G}\right)^{n/2} \sqrt{n} \left(2\sqrt{n} |n-1, n-1\rangle + \sqrt{n-1} (|n-1, n\rangle + |n-1, n\rangle)\right) \quad (4.3)$$

qui permet l'évaluation des normes :

$$\|\hat{E}^{(+)} |\psi\rangle\|^2 = 2E_0^2(G-1) \quad \text{et} \quad \|\hat{E}^{(+)} \hat{E}^{(+)} |\psi\rangle\|^2 = 4E_0^4(G-1)(3G-2) \quad (4.4)$$

et conduit finalement à :

$$g^{(2)}(0) = 3 + \frac{1}{G-1}. \quad (4.5)$$

La valeur du degré de cohérence en zéro est bien supérieure à celle obtenue avec une source chaotique de $g_{\text{chaotique}}^{(2)}(0) = 2$, et ce, quelle que soit la valeur du gain paramétrique en intensité G .

Cette première approche simple des corrélations des photons jumeaux conduit indubitablement à une augmentation significative de $g^{(2)}(0)$. Nous allons donc mettre en place l'expérience de mesure de corrélation, en commençant par le développement d'une source de photons jumeaux.

4.2 Réalisation d'un générateur paramétrique optique en régime picoseconde

Dans un premier temps, nous nous sommes attachés à réaliser une source paramétrique (OPG) continue dégénérée à 1,56 μm et basée sur la fluorescence paramétrique produite dans un cristal de niobate de lithium périodiquement retourné (PPLN) en configuration guide d'onde (Annexe B). Les performances et les puissances obtenues (~ 50 nW), proches de celles de la littérature [Sch01, Tan02, Rav08], ne permettent cependant pas la détection d'un signal à deux photons au moyen de notre dispositif. Pour pallier cette limitation, nous nous sommes tournés vers l'utilisation d'une source impulsionnelle picoseconde, un choix motivé par ailleurs par différents critères. Tout d'abord, le régime impulsionnel picoseconde va permettre d'accroître considérablement le rendement de conversion en augmentant temporairement la puissance au sein du cristal non linéaire sans pour autant l'endommager. Ensuite, les élargissements dus à la dynamique de la pompe ($>$ ps) et à celle de la génération paramétrique en type 0 (\ll ps) se situent à des échelles temporelles différentes. De ce point de vue, la génération paramétrique peut être considérée comme continue. Cette hypothèse est confirmée par le résultat de l'expérience présentée à la figure 4.5 sur lequel nous reviendrons plus loin. Enfin, du fait des hautes cadences de répétition atteintes par les lasers picosecondes actuels (plusieurs dizaines de MHz), les problèmes liés aux recouvrements des temps morts du détecteur n'ont pas besoin d'être pris en compte.

4.2.1 Montage expérimental

Le dispositif expérimental utilisé pour l'étude des corrélations de la source paramétrique en régime picoseconde est présenté sur la figure 4.2. L'interféromètre utilisé est le même que celui utilisé au chapitre 3 : le faisceau de lumière paramétrique est envoyé à travers un interféromètre de Michelson puis est focalisé en sortie d'interféromètre sur un photomultiplicateur équipé d'une photocathode en GaAs. Le signal de pompe résiduel est filtré par une lame de Silicium de 300 μm d'épaisseur.

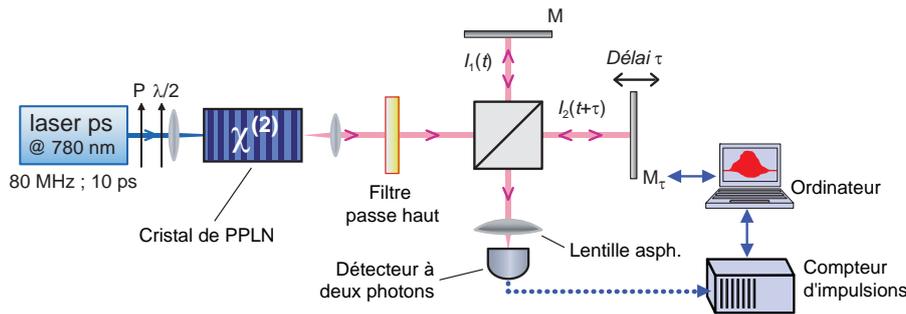


Figure 4.2: Montage expérimental d'interférométrie à deux photons permettant la caractérisation d'une source de fluorescence paramétrique basée sur un cristal de PPLN pompé par un laser délivrant des impulsions de 10 ps à 780 nm à une cadence de 80 MHz.

Pour la réalisation de la source paramétrique, différents cristaux non linéaires ont été testés, un cristal de tantalate de lithium stoechiométrique périodiquement retourné (PPSLT), deux cristaux de PPLN, taillé avec un angle ou traité anti-reflet. Les meilleurs rendements de conversion ont été obtenus avec le cristal non dopé de PPLN traité anti-reflet d'une longueur de 35 mm. La stabilité du rendement de conversion au cours du temps montre l'absence d'effet photoréfractif à craindre avec le PPLN à ces longueurs d'ondes.

Le laser de pompe est un laser Ti :Saphir verrouillé en modes délivrant des impulsions de 10 ps à une cadence de 80 MHz. La puissance moyenne maximale en sortie de laser est de 3 W. La longueur d'onde centrale est de 780 nm et la largeur de raie est inférieure à 0,1 nm [Rya08]. La polarisation du faisceau laser est contrôlée en variant l'angle d'une lame demi-onde précédée d'un cube polariseur, le faisceau est ensuite focalisé par une lentille de distance focale 80 mm dans le cristal de PPLN pour atteindre un rayon de 60 μm puis collimaté à l'aide d'une lentille avant d'être envoyé vers l'interféromètre. On notera que le couple polariseur/lame demi-onde ne fait pas varier la puissance laser moyenne mais uniquement l'angle de la polarisation qui modifiera le rendement de conversion tout en assurant un bruit constant – introduit par les photons de pompe – quelle que soit la puissance délivrée par l'OPG. Une attention particulière a été portée à la stabilité de la température du four du cristal de PPLN pour atteindre 0,1°C. Il est composé de deux blocs Peltier chauffants alimentés et contrôlés par une alimentation Thorlabs. La modification de la température du cristal permet d'accorder la condition d'accord de phase du cristal non linéaire, assurant la possibilité d'étudier les corrélations du second ordre des photons paramétriques ayant des longueurs d'ondes quasi dégénérées ou, au contraire, très éloignées.

4.2.2 Caractérisation de l'OPG

Après avoir développé le premier OPG en régime continu, nous avons vu que le régime de “faible gain” où la puissance de fluorescence générée varie linéairement avec la puissance de pompe ne permettait pas la réalisation d'expérience d'absorption à deux photons à l'aide de notre dispositif. Pour augmenter de plusieurs ordres de grandeur la puissance générée, il est nécessaire de se placer en régime de “fort gain” et, comme nous venons de le voir, le choix s'est tourné vers des sources picosecondes. Dans un premier temps, l'étude a portée sur les caractérisations usuelles du générateur paramétrique. La figure 4.3(a) représente la courbe d'accord de phase déterminée en faisant varier la température du cristal et en injectant le faisceau généré dans un analyseur de spectre optique. La courbe noire

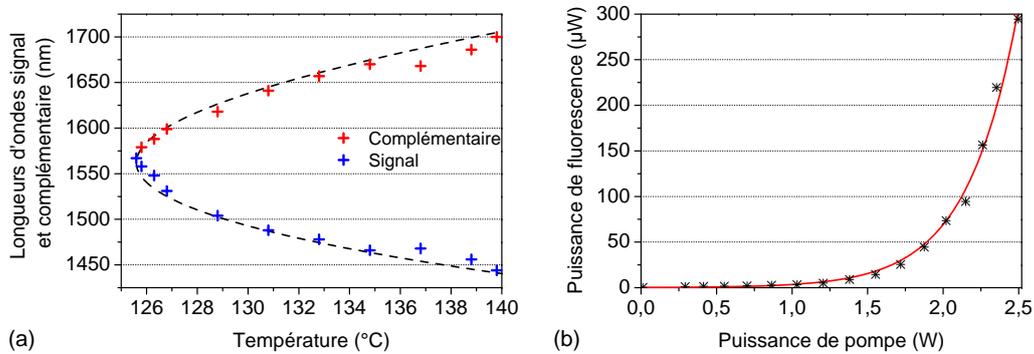


Figure 4.3: (a) Courbe d'accord de phase du générateur paramétrique pompé à 780 nm. (b) Puissance moyenne de fluorescence paramétrique à la dégénérescence en fonction de la puissance moyenne de pompe.

représente la courbe d'accord de phase théorique obtenue à partir de l'équation de Sellmeier proposée par Jundt pour un pas de $18,9 \mu\text{m}$ [Jun97]. La température de la dégénérescence ainsi extrapolée est de $125,5 \text{ }^\circ\text{C}$ et l'obtention de faisceaux à des longueurs d'ondes signal et complémentaire fortement non dégénérées est possible à des températures aisément accessibles. Sur la figure 4.3(b), la variation de la puissance de pompe à la température de la dégénérescence permet d'estimer que l'OPG fonctionne clairement en régime de fort gain (courbe rouge), *i.e.* avec beaucoup plus d'un photon par mode ($G \approx 2,5 \times 10^7$). Du fait des différentes pertes accumulées au cours de la propagation du faisceau de pompe, la puissance moyenne maximale incidente sur le cristal est de $2,5 \text{ W}$, ce qui conduit à un signal de fluorescence moyen d'environ $300 \mu\text{W}$.

Pour compléter ces caractérisations, nous avons étudié la réponse à deux photons de notre détecteur en fonction de la puissance de fluorescence incidente. En effet, la validité de notre étude ne vaudra que dans le cas où le comportement du détecteur est modélisable, *i.e.* sans phénomène de saturation équivalent à celui rencontré avec la source supercontinuum au chapitre précédent. Comme le montre la figure 4.4, la réponse du détecteur à deux photons, symbolisée par les points noirs, est quadratique avec la puissance incidente et ne présente pas de phénomènes de saturation à forte puissance. Le léger décrochement de la courbe vers $10 \mu\text{W}$ est dû au changement de calibre du détecteur mesurant la puissance de la fluorescence. En revanche, le comportement quadratique à bas flux est plus décevant. En effet, comme prévu par Javanainen *et al.* [Jav90] et récemment observé par Dayan *et al.* [Day05],

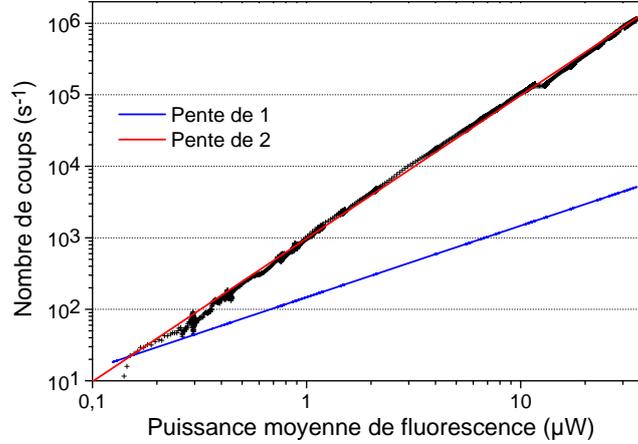


Figure 4.4: Réponse du détecteur à deux photons en fonction de la puissance moyenne de fluorescence incidente.

les fortes corrélations qui existent entre les paires de photons devraient introduire une composante linéaire dans la dépendance en flux de la réponse :

$$\langle n \rangle \propto \alpha P^2 + P \quad (4.6)$$

En régime de fort gain, comme c'est le cas ici, la composante linéaire est masquée par celle quadratique et ne permet pas de faire ressortir le comportement induit par ces corrélations. Un critère simple permet de considérer que le processus est de faible gain si le flux de photons ϕ est inférieur à la largeur spectrale de la source $\Delta\omega$ [Day05] :

$$\phi < \Delta\omega \quad (4.7)$$

Dans notre cas, cela correspondrait à une puissance moyenne de fluorescence maximum de quelques nanowatts seulement. **Il manque au moins deux ordres de grandeurs de sensibilité à notre détecteur actuel pour être à même d'observer la composante linéaire de la réponse avec la puissance incidente.**

4.3 Expériences d'autocorrélation à deux photons à différents accords de phase

4.3.1 Autocorrélation à la dégénérescence

La figure 4.5(a) présente un interférogramme d'autocorrélation réalisé pour un fonctionnement de l'OPG à la dégénérescence⁸, centré à 1,56 μm (voir encart de la figure 4.5). On y distingue d'une part un piédestal dont le temps caractéristique est directement relié à la durée d'impulsion de l'OPG. En supposant un profil temporel gaussien, la durée de l'impulsion ainsi mesurée est de 4 ps, ce qui

8. Notons ici que signal et complémentaire ne sont strictement dégénérés. Le terme de dégénérescence souligne juste la continuité du spectre par opposition au cas hors dégénérescence.

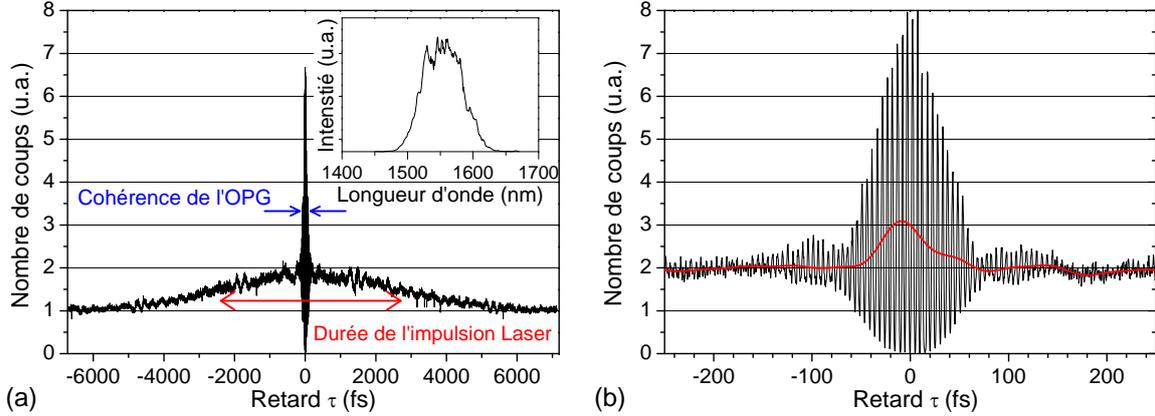


Figure 4.5: (a) Interférogramme à deux photons complet d'une impulsion issue du générateur paramétrique optique à la dégénérescence. L'encart présente le spectre de la source centré à 1,56 μm . (b) Agrandissement de la partie centrale de l'interférogramme à deux photons du signal paramétrique dégénéré.

correspond à peu près à la durée prévue (3,75 ps) pour une impulsion gaussienne de pompe de 10 ps et un gain reproduisant la courbe 4.3(b) avec la puissance de pompe instantanée en fonction du temps. Les faibles fluctuations visibles sur les bords de l'impulsion sont dues aux fluctuations de température pendant l'acquisition de l'interférogramme, relativement visibles sur de telles échelles de mesure. Les fortes oscillations concentrées au centre en un pic étroit résultent des interférences du signal paramétrique. Un agrandissement de cette zone est présenté sur la figure 4.5(b) où les oscillations sont alors aisément observables.

La courbe rouge, résultante désormais systématiquement du traitement de l'interférogramme par un filtre passe bas, met en évidence les coïncidences entre les photons. La comparaison entre les deux temps caractéristiques de la figure d'autocorrélation de l'impulsion de la figure 4.5, montre qu'à l'évidence le caractère impulsionnel de notre expérience n'a pas de conséquence sur les caractéristiques des interférogrammes du signal paramétrique à proprement parler. Tout se passe comme supposé à la partie 4.2, *i.e.* comme si l'expérience était réalisée en régime continu. Le temps de cohérence mesuré sur la figure 4.5(b) à partir de la courbe rouge est de 70 fs ce qui est en accord avec la largeur de 100 nm du spectre présenté dans l'encart de la figure 4.5. Enfin, l'analyse de la courbe rouge conduit à une valeur du degré de cohérence d'ordre deux de :

$$g^{(2)}(0) \approx 2 \quad (4.8)$$

Ces mesures mettent en évidence des coïncidences de photons semblables à celles précédemment mesurées dans le cas d'une source chaotique. Le résultat est assez surprenant puisque l'on ne note aucune exaltation du nombre de coïncidences dues aux paires de photons jumeaux voyageant de concert⁹.

9. Les considérations simples faites en introduction de ce chapitre (partie 4.1.2) seront développées à la partie 4.7 et précédées d'un développement théorique basé sur l'approche quantique à la partie 4.4 .

4.3.2 Autocorrélation hors de la dégénérescence

Pour compléter cette première série d'expériences à la dégénérescence, nous avons étudié les corrélations dans le domaine d'accord de phase hors de la dégénérescence. Pour cela, la température du cristal a simplement été augmentée sans qu'il soit nécessaire d'agir sur les autres éléments du dispositif expérimental. Le spectre mesuré correspondant à ces nouvelles conditions d'accord de phase est présenté en encart de la figure 4.6(a) où l'on observe clairement les deux lobes dus aux photons signaux et complémentaires, centrés respectivement à $1,495 \mu\text{m}$ et $1,630 \mu\text{m}$. La figure 4.6(a) présente un agrandissement du pic interférométrique central (similaire à celui observé sur la figure 4.5) qui correspond à l'interférogramme d'autocorrélation réalisé pour un fonctionnement de l'OPG hors de la dégénérescence. Les modulations visibles à $\omega_s - \omega_c$ de l'enveloppe de l'interférogramme ou celles de la courbe rouge témoignent bien de la participation des deux ondes. L'analyse de la courbe rouge (filtre passe bas) conduit là encore à une valeur du degré de cohérence d'ordre deux de :

$$g^{(2)}(0) \approx 2 \quad (4.9)$$

qui ne fait ressortir aucune exaltation des coïncidences tandis que le temps de cohérence déduit de la courbe, estimé à 140 fs, est en accord avec la largeur de chacun des pics apparaissant sur le spectre de l'OPG, soit 50 nm.

Pour mieux appréhender l'influence des deux ondes signal et complémentaire et parfaire notre interprétation, l'onde complémentaire a été par la suite fortement atténuée à l'aide d'un miroir dichroïque. L'interférogramme ainsi obtenu est présenté sur la figure 4.6(b). Les modulations de l'enveloppe ou de la courbe rouge ont, comme attendu, disparu. Le temps de cohérence déduit de la courbe demeure inchangé, environ 140 fs, toujours en accord avec la largeur du spectre de l'OPG de 50 nm. L'analyse de la courbe rouge, quant à elle, conduit à une valeur du degré de cohérence d'ordre deux inchangée de :

$$g^{(2)}(0) \approx 2 \quad (4.10)$$

Cette valeur correspond à la valeur théorique attendue pour une source chaotique, comme celles présentées au chapitre 3. Dans sa configuration actuelle, notre dispositif ne semble pas en mesure de mettre clairement en évidence les coïncidences exactes entre les photons d'une même paire ou du moins de les distinguer des coïncidences accidentelles, rencontrées au sein des sources chaotiques (voir développement théorique à la partie 4.4).

4.3.3 Influence de l'augmentation de la dispersion

Les résultats précédents ont montré que la distinction entre la contribution paramétrique et celle d'une source chaotique n'est pas évidente dans notre dispositif. Pour bien comprendre l'influence de la corrélation entre les photons issus d'une même paire et les distinguer des coïncidences accidentelles de photons issus de paires différentes, deux expériences supplémentaires ont été développées. Nous avons pris le parti de retarder l'une des ondes par rapport à l'autre en faisant passer le faisceau paramétrique

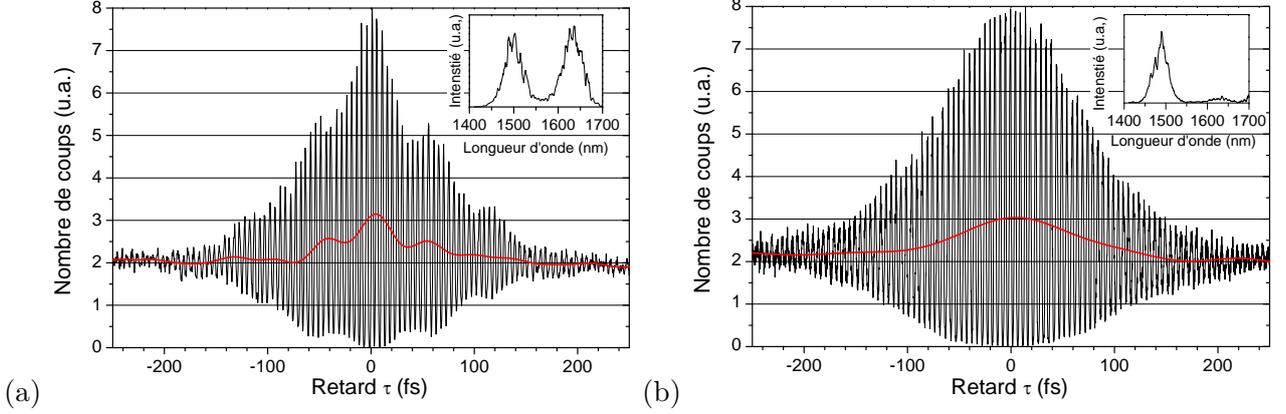


Figure 4.6: Interférogramme d'autocorrélation à deux photons loin de la dégénérescence (a) du signal et du complémentaire et (b) du signal seul, le complémentaire ayant été atténué par un miroir dichroïque. Les encarts présentent les spectres de la source où signal et complémentaire sont clairement visibles.

à travers un élément dispersif, un cristal de niobate de lithium de 5 cm, et ce, dans deux configurations différentes. La réflexion à la base de ces expériences est d'ordre qualitatif et repose sur une approche corpusculaire simple des paires de photons jumeaux.

Augmentation de la dispersion en sortie du cristal de PPLN générateur

L'idée de cette première expérience est de retarder l'un des photons d'une paire par rapport à l'autre en amont de l'interféromètre. Pour ce faire, l'élément dispersif est placé sur le trajet du faisceau paramétrique juste avant l'entrée dans l'interféromètre. Un calcul de dispersion au premier ordre permet d'évaluer le retard entre le signal et le complémentaire à près de $\tau_D \approx 500$ fs avant son entrée dans l'interféromètre :

$$\tau_D = L_D \left(\frac{1}{v(\lambda_c)} - \frac{1}{v(\lambda_s)} \right) = \frac{L_D}{c} \left(n(\lambda_c) - \lambda_c \frac{\partial n}{\partial \lambda}(\lambda_c) - n(\lambda_s) + \lambda_s \frac{\partial n}{\partial \lambda}(\lambda_s) \right) \quad (4.11)$$

où $\lambda_{s,c}$ sont les longueurs d'ondes associées au (s) signal et (c) complémentaire, L_D et $n(\lambda)$ sont respectivement, la longueur et l'indice de réfraction de l'élément dispersif.

La figure 4.7 présente le comportement schématique des photons jumeaux suite à leur passage dans un élément dispersif ainsi que l'allure de l'interférogramme attendu. L'augmentation de la dispersion va introduire un retard entre photons signal et complémentaire d'une même paire (Fig. 4.7(a)) qui va engendrer l'apparition de deux lobes latéraux situés à $\pm\tau_D$. Ces deux lobes reflètent les coïncidences dues aux paires de photons jumeaux. Par ailleurs, les coïncidences accidentelles ne sont pas affectées par l'augmentation de la dispersion (Fig. 4.7(b)). Ce type de coïncidences va ainsi engendrer un pic central semblable à celui obtenu par la superposition de deux sources chaotiques de longueurs d'ondes centrales distinctes dont l'enveloppe présentera des modulations à la différence de fréquences entre signal et complémentaire.

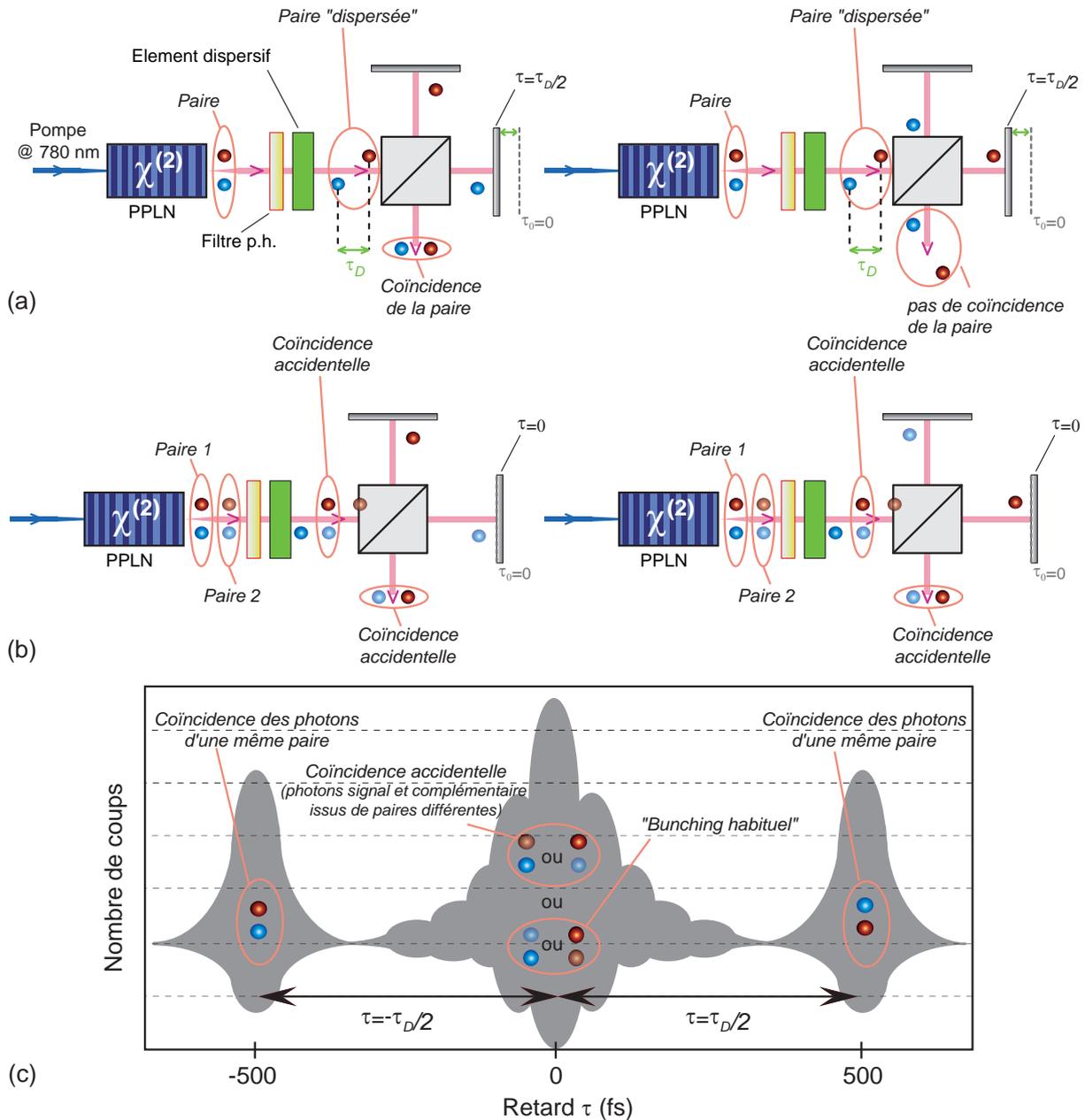


Figure 4.7: Schéma de principe de l'effet de l'augmentation de la dispersion avant l'interféromètre : (a) Influence sur une paire de photons jumeaux. L'élément dispersif sépare spatialement les deux photons de la paire. L'interféromètre est réglé de manière à introduire le même retard τ_D qu'impose l'élément dispersif entre les photons de la paire (En fonction du signe du retard, il y a deux positions possibles). Le passage à travers l'interféromètre va alors avoir deux incidences possibles : soit (gauche) de reformer la coïncidence existante à la sortie du PPLN, soit (droite) augmenter encore la séparation entre les photons. (b) Influence sur les coïncidences accidentelles de photons. L'élément dispersif entraîne la formation de "nouvelles" coïncidence entre les photons signal et complémentaire qui n'appartiennent pas à la même paire. Ces coïncidences accidentelles vont se trouver de part et d'autre du point d'équilibre de l'interféromètre. (c) Allure de l'interférogramme à deux photons obtenu. L'introduction de l'élément dispersif va engendrer l'apparition de deux lobes latéraux, situés à égale distance de $\tau = 0$. Le pic central est toujours formé des coïncidences accidentelles entre photons signal et complémentaire ainsi que des coïncidences, plus classiques, dues au caractère chaotique du signal ou du complémentaire pris individuellement.

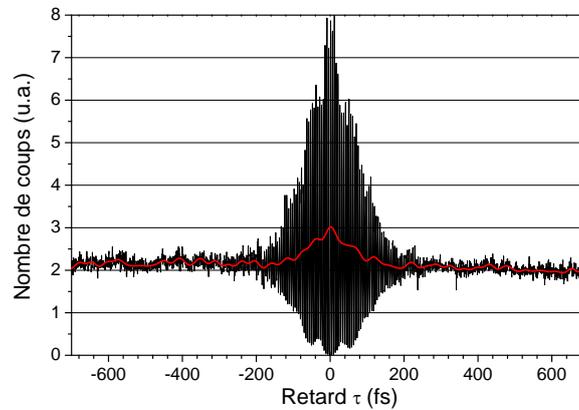


Figure 4.8: Interférogramme d'autocorrélation à deux photons loin de la dégénérescence du signal et du complémentaire lors de l'ajout d'un élément dispersif avant le passage dans l'interféromètre.

L'interférogramme obtenu est présenté sur la figure 4.8. Force est de constater qu'il ne possède pas les caractéristiques attendues ! Aucun lobe latéral n'est visible et malgré l'augmentation du retard entre signal et complémentaire, il n'a pas été permis de mettre en évidence les corrélations exactes des photons jumeaux comme attendu. L'allure de l'interférogramme est ainsi très semblable à celui présenté à la figure 4.6(a) où aucun élément dispersif n'a été volontairement ajouté. Par ailleurs, le temps de cohérence de la source déduit de la courbe rouge reste lui aussi inchangé, témoignant là encore de l'influence négligeable jouée par l'ajout d'un élément dispersif sur le chemin optique commun avant l'entrée de l'interféromètre du dispositif actuel.

Augmentation de la dispersion dans un bras de l'interféromètre

Pour compléter ces résultats, une seconde expérience a été développée au cours de laquelle l'élément dispersif est, cette fois, placé dans l'un des bras de l'interféromètre. Dans ce cas, l'interférogramme va être composé uniquement de deux lobes (Fig. 4.9(c)) :

- Le premier lobe est situé à la différence de marche nulle entre les bras de l'interféromètre à la longueur d'onde complémentaire. Deux types de coïncidences vont participer à la formation de ce pic. Dans ces deux cas, les coïncidences mettent en jeu un photon complémentaire passé à travers l'élément dispersif. Les coïncidences sont formées de ce photon et (Fig. 4.9(a)) :
 1. d'un autre photon complémentaire. Ce sont des coïncidences accidentelles qui vont refléter les propriétés chaotiques du complémentaire considéré séparément.
 2. d'un photon signal appartenant à la même paire. Ce sont les coïncidences exactes.
 3. d'un photon signal appartenant à une autre paire. Ces coïncidences accidentelles se produisent avec un retard bien supérieur au temps de cohérence de la source et n'introduiront qu'une composante continue.

- Le second lobe est situé, cette fois, à la différence de marche nulle à la longueur d'onde signal. De façon analogue au premier lobe, deux types de coïncidences vont contribuer à la formation de ce lobe, impliquant dans les deux cas un photon signal passé par l'élément dispersif (Fig. 4.9(b)).

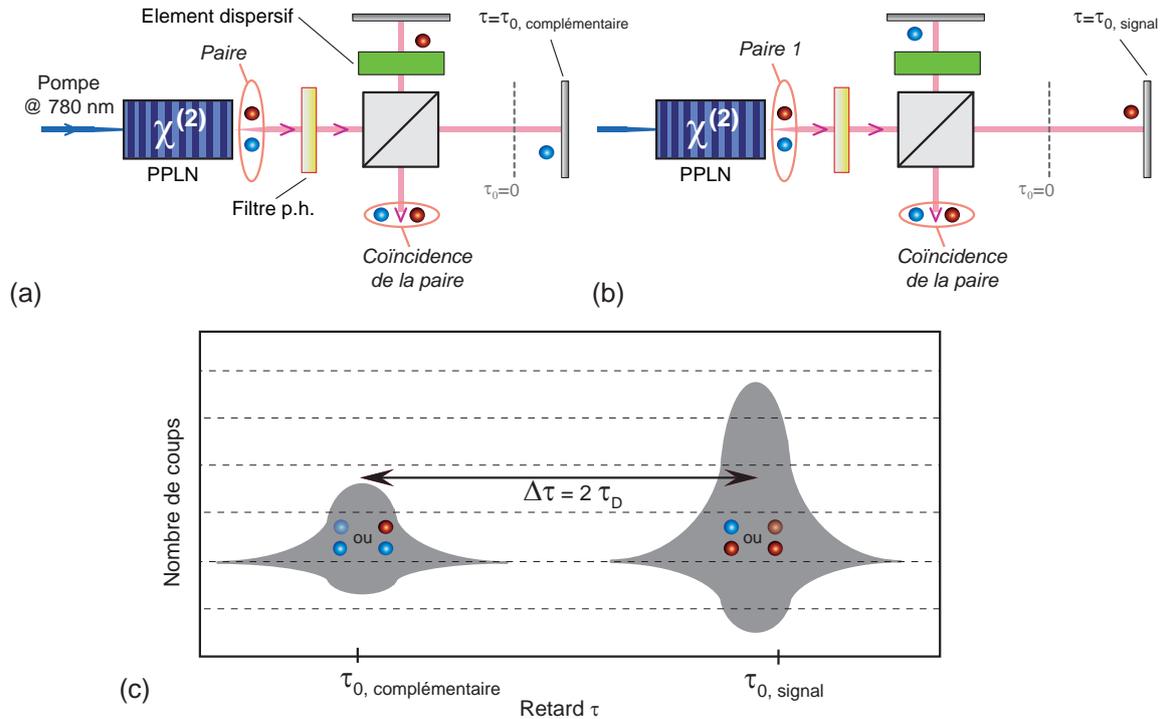


Figure 4.9: Schéma de principe de l'effet de l'augmentation de la dispersion dans un des bras de l'interféromètre.

De plus, comme on peut le noter sur la figure 4.9(c), il y a une différence entre le maximum d'intensités de chaque lobe mesurés à deux photons, liée à la différence de coefficient d'absorption à deux photons aux longueurs d'onde signal et complémentaire (Fig. 1.15). Enfin, du fait que le retard introduit par la lame dispersive entre les ondes complémentaire et signal soit supérieur au temps de cohérence de la source, les modulations, apparaissant sur la figure 4.6(a), conséquences des coïncidences accidentelles entre signal et complémentaire n'apparaissent pas.

La figure 4.10 montre les interférogrammes obtenus expérimentalement. Du fait de la transmission partielle de l'élément dispersif, l'interféromètre est déséquilibré et le contraste n'est plus idéal. La présence des deux lobes attendus est clairement visible sur la figure 4.10(a) et nous confirme ainsi la valeur théorique de $\tau_D \approx 500$ fs. Comme le prouve la figure 4.10(b), celui de plus grand contraste correspond aux interférences signal-signal tandis que celui qui sort juste du bruit est dû aux interférences complémentaire-complémentaire.

L'ajout d'une lame dispersive sur le trajet du faisceau a donc permis de mettre en évidence les différentes contributions des coïncidences accidentelles, équivalentes à celles d'une source incohérente,

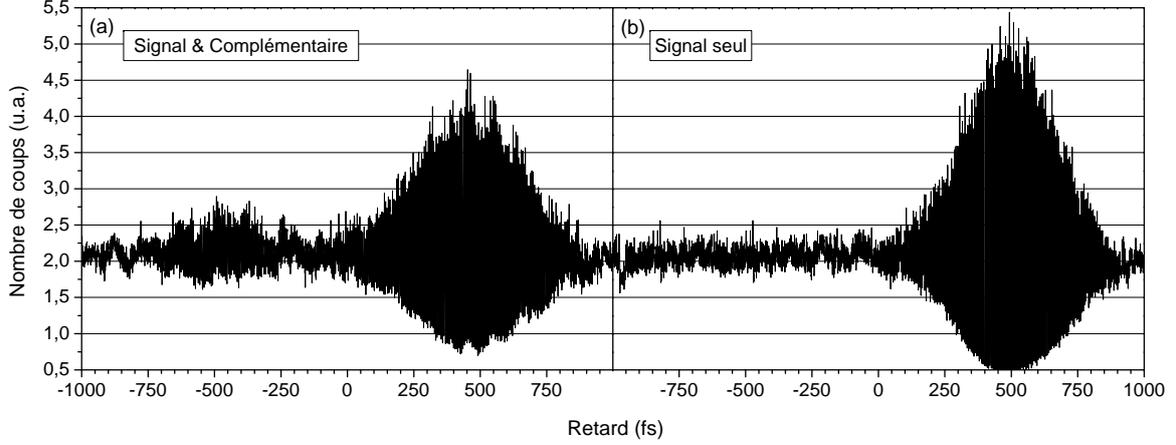


Figure 4.10: Interférogramme d'autocorrélation à deux photons loin de la dégénérescence lors de l'ajout d'un cristal de dispersion de niobate de lithium dans l'un des bras de l'interféromètre pour (a) les ondes signales et complémentaires et (b) l'onde signal uniquement.

de l'interférogramme. Toutefois, il n'a pas permis de mettre en évidence la contribution "cohérente" due aux coïncidences exactes entre les photons d'une même paire. L'approche corpusculaire (naïvement monomode) ne semble pas être en mesure d'expliquer l'ensemble de nos résultats. Pour traiter les interférogrammes, il est nécessaire de prendre en compte le continuum de modes qui compose l'intégralité du spectre de fluorescence paramétrique.

4.4 Modélisation d'un interférogramme d'autocorrélation

4.4.1 Évaluation de la fonction de cohérence d'ordre deux en approximation gaussienne

De manière à interpréter les résultats expérimentaux obtenus dans la partie précédente, la modélisation de la fonction de corrélation est réalisée, dans un premier temps, à partir d'un modèle quantique simple qui définit l'état cohérent à deux photons en continuum de mode à l'accord de phase [Lou00]. En sortie du cristal générateur, le champ de photon monomode est ainsi donné par¹⁰ :

$$\hat{a}(z_c, \omega_p - \omega) = \hat{a}(0, \omega_p - \omega) \cosh s(z_c, \omega) - \hat{a}^\dagger(0, \omega) e^{i\phi(z_c, \omega)} \sinh s(z_c, \omega) \quad (4.12)$$

où $s(z_c, \omega)$ est l'incrément exponentiel de gain paramétrique spectrale et $\phi(z_c, \omega)$ la phase non linéaire. La longueur du cristal n'étant pas un paramètre sur lequel nous agissons, la notation sera allégée en omettant de souligner cette dépendance, notant ainsi $s(\omega) = s(z_c, \omega)$ et $\phi(\omega) = \phi(z_c, \omega)$. Pour faciliter

10. L'état en sortie de cristal est parfois exprimé comme $|\beta_{aa}\rangle = \exp(\hat{P}_{\beta_{aa}} - \hat{P}_{\beta_{aa}}^\dagger)|0\rangle$, reliant l'état des photons à celui du vide, dont la présence consécutive des opérateurs de création \hat{a}^\dagger dans les opérateurs $\hat{P}_{\beta_{aa}}^\dagger = \frac{1}{2} \int d\omega s(\omega) e^{i\phi(z_c, \omega)} \hat{a}^\dagger(0, \omega) \hat{a}^\dagger(0, \omega_p - \omega)$ souligne la simultanéité du processus de création de photons [Lou00]. Nous avons pris le parti d'utiliser une approche en termes d'opérateur (Heisenberg) plutôt que d'états (Schrödinger) car elle est plus proche des équations non linéaires classiques.

la lecture, on supposera de plus que la phase $\phi(\omega)$ varie lentement et que l'on peut la négliger dans la suite du calcul. Cette approximation est vraie si l'on est en régime de fort gain. L'opérateur de destruction multimode est alors donné par :

$$\hat{a}(z_c, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\omega_p} d\omega \hat{a}(z_c, \omega) e^{i\omega t} \quad (4.13)$$

En utilisant les règles bien connues de l'optique quantique :

$$\hat{a}(0, \omega) |0\rangle = 0 \quad (4.14)$$

$$[\hat{a}(0, \omega), \hat{a}^\dagger(0, \omega')] = \delta(\omega - \omega'), \quad (4.15)$$

il est possible de déterminer la fonction d'autocorrélation $g^{(2)}(\tau)$ en se basant sur l'évaluation du terme $\langle \hat{a}^\dagger(z_c, t) \hat{a}^\dagger(z_c, t + \tau) \hat{a}(z_c, t + \tau) \hat{a}(z_c, t) \rangle$:

$$\begin{aligned} \langle \hat{a}^\dagger(z_c, t) \hat{a}^\dagger(z_c, t + \tau) \hat{a}(z_c, t + \tau) \hat{a}(z_c, t) \rangle &= \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\omega_p} d\omega \int_0^{\omega_p} d\omega' \\ &\times \left\{ \begin{aligned} &\sinh s(\omega) \cosh s(\omega) \sinh s(\omega') \cosh s(\omega') e^{-i(\omega - \omega')\tau} \\ &+ \sinh^2 s(\omega) \sinh^2 s(\omega') (e^{-i(\omega - \omega')\tau} + 1) \end{aligned} \right\}. \end{aligned} \quad (4.16)$$

Le flux de photons $\langle \hat{a}^\dagger(z_c, t) \hat{a}(z_c, t) \rangle$ étant donné par :

$$\Phi = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega \sinh^2 s(\omega), \quad (4.17)$$

on peut en déduire la valeur du degré de cohérence qui s'exprime quel que soit le retard τ :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + \left| g^{(1)}(\tau) \right|^2 + \frac{1}{\Phi^2} \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega \sinh s(\omega) \cosh s(\omega) e^{-i\omega\tau} \right|^2 \quad (4.18)$$

avec $g^{(1)}(\tau) = \frac{1}{\Phi} \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega \sinh^2 s(\omega) e^{-i\omega\tau}$.

En comparant l'expression 4.18 obtenue avec ce modèle simple et l'expression 3.33 pour une lumière chaotique, il s'ajoute un terme, dit cohérent, qui va refléter **les corrélations des paires de photons**¹¹. La valeur du $g^{(2)}(0)$ est facilement calculable dans les deux cas limites des régimes de gain.

11. Les termes de corrélations cohérentes et incohérentes ont été introduits par Dayan [Day07]. Les corrélations cohérentes sont à rapprocher de ce que nous avons appelés coïncidences exactes à la partie 4.1.2 tandis que les corrélations

- En régime de fort gain ($s(\omega) \gg 1$),

$$\cosh s(\omega) \rightarrow \sinh s(\omega) \quad (4.19)$$

permet de simplifier l'expression 4.18 en :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + 2 \left| g^{(1)}(\tau) \right|^2. \quad (4.20)$$

- En régime de faible gain ($s(\omega) \ll 1$),

$$\begin{cases} \cosh s(\omega) \rightarrow 1 \\ \sinh s(\omega) \sim \sigma(\omega) \ll 1 \end{cases} \quad \text{avec } \sigma(\omega) = i s(\omega) \in \mathbb{R}^+ \quad (4.21)$$

conduit le terme cohérent à diverger¹² et on a finalement $g^{(2)}(0) \gg 3$.

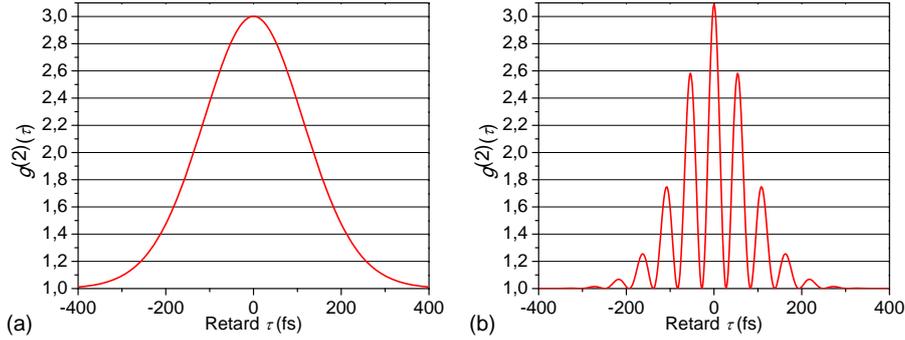


Figure 4.11: Modélisation de la fonction de cohérence d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$ en régime de fort gain (a) à la dégénérescence et (b) hors de la dégénérescence à l'aide du modèle simple dans le cadre de l'approximation gaussienne.

Du fait de la puissance du faisceau paramétrique en sortie de cristal mesurée à la partie précédente (Fig. 4.3(b)), la valeur du degré de cohérence d'ordre deux théorique en $\tau = 0$ est donc de $g^{(2)}(0) = 3$. La figure 4.11 est le résultat de la simulation de ce degré de cohérence par notre modèle idéal en fort gain à la dégénérescence et hors de la dégénérescence. Par souci de simplicité, les calculs ont été effectués dans le cadre de l'approximation gaussienne, *i.e.* le spectre a été modélisé par une simple gaussienne pour la modélisation de l'interférogramme à la dégénérescence (Fig. 4.11(a)) et une double gaussienne centrée en ω_s et ω_c lors de la modélisation hors de la dégénérescence (Fig. 4.11(b)). Dans le cas hors dégénérescence, la modulation qui apparaît est à la fréquence $\omega_s - \omega_c$.

incohérentes englobent les coïncidences dues au *bunching* classique des photons issus de chaque sources et aux coïncidences accidentelles entre photons signal et complémentaire provenant de paires différentes.

12. En se plaçant en $\tau = 0$, on a : $g^{(2)}(0) \approx 2 + \frac{\left| \int_0^{\omega_p} d\omega \sigma(\omega) \right|^2}{\left(\int_0^{\omega_p} d\omega \sigma^2(\omega) \right)^2} \geq 2 + \left(\frac{\int_0^{\omega_p} d\omega \sigma(\omega)}{\int_0^{\omega_p} d\omega \sigma(\omega)} \right)^2 = 2 + \frac{1}{\left(\int_0^{\omega_p} d\omega \sigma(\omega) \right)^2}$.

Lorsque le gain $\sigma(\omega)$ tend à s'annuler, la valeur du degré de cohérence d'ordre deux à retard nul $g^{(2)}(0)$ diverge.

Les différences avec les résultats expérimentaux sont assez flagrantes. En plus de la valeur caractéristique théorique de la fonction d'autocorrélation en $\tau = 0$ de 3 au lieu de 2 dans l'expérience, on remarque que les modulations calculées pour le fonctionnement hors dégénérescence sur la figure 4.11(b) ont un très fort contraste ce qui n'est pas observé expérimentalement sur la figure 4.6(a).

4.4.2 Introduction de pertes linéaires

Pour affiner notre modèle et rendre compte de la perte de contraste des modulations, nous allons commencer par inclure des pertes linéaires dans notre modèle. Pour représenter ces pertes linéaires le long du trajet du faisceau, le modèle le plus simple consiste à utiliser le modèle de séparateur de faisceau (Chap. 2) [Lou00]. Ce modèle de séparateur de faisceau est un modèle bien connu qui consiste à modéliser les pertes ou l'écart à l'idéalité d'un détecteur à un photon par l'ajout d'un cube séparateur partiellement réfléchissant devant un détecteur parfait. Dans notre cas, les pertes sont modélisées pour un ensemble de longueurs d'ondes traversant un milieu. De façon à prendre en compte le caractère continu des pertes à travers un milieu d'épaisseur L , on discrétise le milieu en une somme de séparateurs de faisceau dont les opérateurs de destruction sont reliés à l'opérateur en sortie de cristal par la relation de récurrence :

$$\hat{a}_{N+1}(z_c, \omega) = \mathcal{T}^N(\omega) \hat{a}_1(z_c, \omega) + \mathcal{R}(\omega) \sum_{i=1}^N \mathcal{T}^{N-i}(\omega) \hat{b}_i(\omega) \quad (4.22)$$

où $\mathcal{T}(\omega)$ est le coefficient de transmission d'un cube élémentaire à la fréquence ω , $\mathcal{R}(\omega)$ celui de réflexion, N le nombre de séparateurs de faisceau, avec $N = \frac{L}{\Delta z}$, et \hat{b}_i l'opérateur d'annihilation du mode vide entrant sur le séparateur i . Par passage à la limite

$$\begin{cases} N & \rightarrow \infty \\ \Delta z & \rightarrow 0 \\ |\mathcal{R}(\omega)|^2 & \rightarrow 0 \end{cases}$$

le coefficient d'absorption $K(\omega) = \frac{|\mathcal{R}(\omega)|^2}{\Delta z}$ reste fini et le coefficient de transmission peut s'écrire :

$$|\mathcal{T}(\omega)|^{2N} = \left(1 - |\mathcal{R}(\omega)|^2\right)^N = \left(1 - \frac{K(\omega)}{N}\right)^N \xrightarrow{N \rightarrow \infty} e^{-K(\omega)L}. \quad (4.23)$$

En négligeant les variations de l'indice de réfraction en fonction de la fréquence et plus généralement la dispersion¹³, le coefficient $\mathcal{T}^N(\omega)$ s'exprime en fonction du coefficient d'absorption :

$$\mathcal{T}^N(\omega) = e^{-\frac{1}{2}K(\omega)L}. \quad (4.24)$$

13. Il faut en théorie ajouter un terme de phase $\exp(in(\omega)\frac{\omega}{c})$ qui se simplifiera en première approximation dans les calculs des moyennes. L'utilisation de ce terme permet de prendre en compte l'effet de la dispersion et de ce fait celle de vitesse de groupe que nous verrons dans la sous-partie suivante. Le but de la démarche est ici de mettre en évidence le rôle des pertes seules.

En passant à l'intégrale, l'opérateur de destruction s'écrit :

$$\hat{a}(z_c + L, \omega) = e^{-\frac{1}{2}K(\omega)L} \hat{a}(z_c, \omega) + i\sqrt{K(\omega)} \int_0^L dz e^{-\frac{1}{2}K(\omega)(L-z)} \hat{b}(z, \omega) \quad (4.25)$$

où $\hat{a}(z_c, \omega)$ est l'opérateur en sortie de cristal et où l'opérateur de bruit respecte les conditions suivantes :

$$\begin{cases} [\hat{b}(z, \omega), \hat{b}^\dagger(z', \omega')] &= \delta(z - z')\delta(\omega - \omega') \\ \langle \hat{b}(z, \omega) \rangle &= \langle \hat{b}^\dagger(z', \omega') \rangle = 0 \\ \langle \hat{b}(z, \omega) \hat{b}^\dagger(z', \omega') \rangle &= \delta(z - z')\delta(\omega - \omega') \end{cases} \quad (4.26)$$

Bien sûr, les termes dus aux fluctuations du vide seront largement dominés par l'excès de bruit de photons des faisceaux chaotiques. Les valeurs moyennes de cet opérateur sont très petites devant les autres valeurs moyennes et on négligera donc ces termes. En posant $\eta(\omega) = e^{-\frac{1}{2}K(\omega)L}$, notre simplification de l'opérateur de destruction conduit à :

$$\hat{a}(z_c + L, \omega) \simeq \eta(\omega) \hat{a}(z_c, \omega) \quad (4.27)$$

$$\hat{a}(z_c + L, t) \simeq \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\omega_p} d\omega \eta(\omega) \hat{a}(z_c, \omega) e^{-i\omega t} \quad (4.28)$$

L'expression du degré de cohérence d'ordre deux se déduit, là encore, du calcul de l'élément $\langle \hat{a}^\dagger(z_c + L, t) \hat{a}^\dagger(z_c + L, t + \tau) \hat{a}(z_c + L, t + \tau) \hat{a}(z_c + L, t) \rangle$ normé par le flux de photons $\Phi = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega \eta^2(\omega) \sinh^2 s(\omega)$:

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\tau) &= 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2 \\ &+ \frac{1}{\Phi^2} \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega \eta(\omega) \eta(\omega - \omega_p) \sinh s(\omega) \cosh s(\omega) e^{-i\omega\tau} \right|^2 \end{aligned} \quad (4.29)$$

On voit ici apparaître le rôle majeur que peuvent jouer les pertes dans notre interféromètre et en particulier sur la valeur de $g^{(2)}(0)$. La figure 4.12(b) illustre ce point en présentant la fonction de cohérence d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$ en régime de fort gain hors de la dégénérescence après introduction de pertes linéaires ($\eta(\omega_s) = 1$; $\eta(\omega_c) = 0,4$). Les modulations reproduisent correctement la tendance expérimentale et la valeur de $g^{(2)}(0)$ décroît progressivement pour atteindre deux si l'on coupe une des deux ondes complètement.

L'intérêt de ce modèle est double :

- il permet d'une part de représenter les pertes linéaires du montage expérimental rendant possible la modélisation des interférogrammes à une ou deux ondes ;

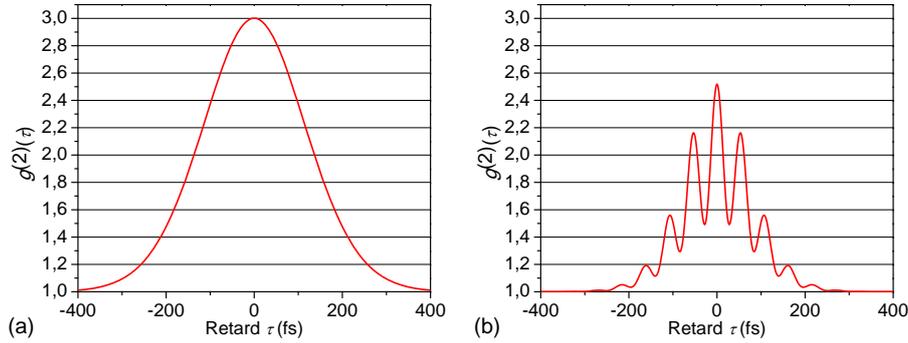


Figure 4.12: Modélisation de la fonction de cohérence d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$ en régime de fort gain après introduction de pertes linéaires (a) à la dégénérescence et (b) hors de la dégénérescence ($\eta(\omega_s) = 1$; $\eta(\omega_c) = 0,4$).

- d'autre part, il rend compte qualitativement d'un autre phénomène, non linéaire cette fois, qu'est la variation du coefficient d'absorption $\beta(\omega, \omega')$ en fonction des longueurs d'ondes mises en présence. Les résultats des expériences d'augmentation des phénomènes de dispersions dans un des bras de l'interféromètre présentés sur la figure 4.10 illustrent bien le phénomène. Très grossièrement, l'évolution du coefficient d'absorption $\beta(\omega, \omega')$ est donnée par celle de la moyenne géométrique des coefficients d'absorption dégénérée $\sqrt{\beta(\omega)\beta(\omega')}$. Par identification, le produit $(\eta(\omega))^4$ peut être assimilé à $\beta(\omega)$ et l'évolution de $\beta(\omega, \omega')$ suivra celle de $(\eta(\omega)\eta(\omega'))^2$. L'introduction de la variation du coefficient d'absorption à deux photons en fonction des longueurs d'ondes est traitée en détail à l'annexe D.

L'introduction de pertes linéaires dans le modèle permet ainsi d'expliquer le faible contraste de la modulation observée sur la figure 4.6(a) ainsi qu'une diminution de la valeur du degré de cohérence d'ordre deux. Toutefois, ces considérations ne permettent pas d'illustrer le comportement à la dégénérescence dont la modélisation est présentée sur la figure 4.12(a) et en particulier la valeur du degré de cohérence d'ordre deux en $\tau = 0$ alors que les pertes (ou la réponse du détecteur à deux photons) sont très proches pour l'ensemble des longueurs d'ondes en présence et n'altèrent donc pas la valeur de $g^{(2)}(\tau)$.

4.4.3 Prise en compte des phénomènes de dispersion chromatiques

De façon schématique, la figure 4.13 permet d'illustrer l'influence des phénomènes de dispersion sur les coïncidences des photons d'une même paire. À l'extrémité du cristal, les deux photons appariés sortent quasiment au même instant. La traversée du montage introduit, par le biais des phénomènes de dispersion, un retard entre ces deux photons qui se retrouvent décalés dans le temps. En fonction de la longueur d'onde des photons considérés, ce décalage temporel va être différent. On voit alors apparaître un étalement des coïncidences sur toute une plage de retard qui va entraîner une diminution de l'intensité de leur contribution à la mesure de corrélation.

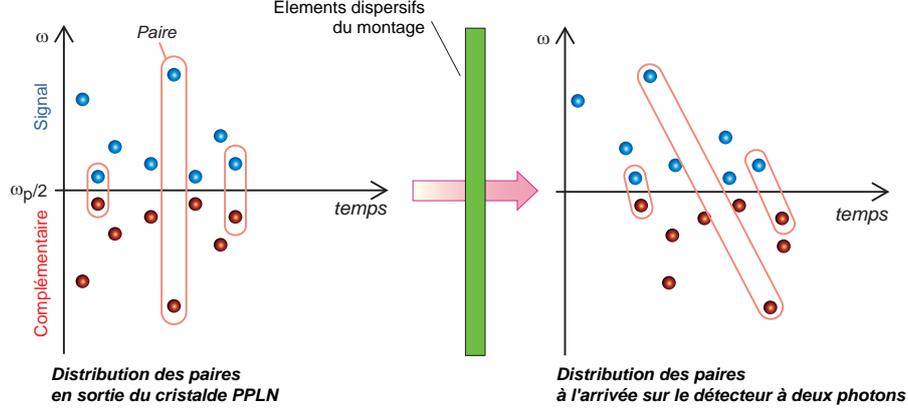


Figure 4.13: Schéma de principe de l'effet des éléments dispersifs du montage sur les coïncidences exactes des photons issus d'une même paire.

De façon plus rigoureuse, la modélisation des phénomènes de dispersion a été réalisée en étendant le modèle proposé par Huttner *et al.* dans lequel les auteurs prennent en compte la solution exacte des équations non linéaires, incluant la dépendance spatiale et surtout l'écart à l'accord de phase [Hut90]. L'équation 4.12 de l'opérateur destruction $\hat{a}(z_c, \omega)$ en sortie de cristal générateur évolue ainsi vers une formule plus générale toujours reliée aux opérateurs d'entrée $\hat{a}(0, \omega)$:

$$\hat{a}(z_c, \omega) = \left[\mu(z_c, \omega) \hat{a}(0, \omega) + i\nu(z_c, \omega) \hat{a}^\dagger(0, \omega_p - \omega) \right] e^{i \left[\frac{\Delta k(\omega)}{2} + k(\omega) \right] z_c} \quad (4.30)$$

où $k(\omega)$ est le vecteur d'onde au sein du cristal générateur associé à la fréquence ω et $\Delta k(\omega)$ est le désaccord de phase donné par :

$$\Delta k(\omega) = k(\omega_p) - k(\omega) - k(\omega_p - \omega) - \frac{2\pi}{\Lambda} \quad (4.31)$$

avec Λ , la période de quasi-accord de phase du cristal. Les facteurs $\mu(z_c, \omega)$ et $\nu(z_c, \omega)$ de l'équation 4.30 sont les paramètres habituels de propagation d'une onde paramétrique sans approximation¹⁴ :

$$\mu(z_c, \omega) = \cosh \gamma(\omega) z_c - i \frac{\Delta k(\omega)}{2\gamma(\omega)} \sinh \gamma(\omega) z_c \quad (4.32)$$

$$\nu(z_c, \omega) = \frac{g(\omega)}{\gamma(\omega)} \sinh \gamma(\omega) z_c \quad (4.33)$$

où le paramètre de gain $g(\omega)$ s'écrit :

$$g(\omega) = \frac{d_{\text{eff}}}{c} \sqrt{\frac{2\omega [\omega_p - \omega] Z_0 I_p}{n(\omega) n(\omega_p - \omega) n(\omega_p)}} \quad (4.34)$$

14. La formulation des équations 4.32 et 4.33 est valable quelle que soit le gain. En se plaçant dans l'approximation gaussienne à l'accord de phase, on retrouve bien les coefficients présentés à l'équation 4.12.

avec d_{eff} le coefficient non linéaire effectif du cristal, c la vitesse de la lumière, $Z_0 = 377 \Omega$ l'impédance du vide, I_p l'intensité de pompe incidente et $\gamma(\omega)$ s'écrivant :

$$\gamma(\omega) = \sqrt{g^2(\omega) - \frac{\Delta k^2(\omega)}{4}}. \quad (4.35)$$

Là encore, pour alléger la notation et du fait que le cristal non linéaire utilisé ne change pas, la dépendance en z_c des paramètres de propagation ne sera plus soulignée et on notera simplement :

$$\mu(z_c, \omega) = \mu(\omega) \quad \text{et} \quad \nu(z_c, \omega) = \nu(\omega).$$

Le cristal n'est pas le seul élément dispersif (lentilles, cube séparateur, filtres). Pour rendre compte de la dispersion dans le reste du montage, il suffit de prendre en compte les variations de l'indice de réfraction que nous avons négligées dans le modèle précédent. Le coefficient $\eta(\omega)$ s'écrit donc désormais comme le produit de son module réel représentant les pertes et d'une exponentielle complexe retraçant les phénomènes de dispersion [Lou00] :

$$\eta(\omega) = \eta_0(\omega)e^{i\phi(\omega)}. \quad (4.36)$$

L'opérateur de destruction relatif \hat{a}_p , après la prise en compte des pertes et de la dispersion à travers les différents éléments jusqu'au détecteur à la position z_d , s'écrit :

$$\hat{a}_p(z_d, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^\infty d\omega i\eta(\omega) \hat{a}(z_c, \omega) e^{-i\omega t}. \quad (4.37)$$

La fonction d'autocorrélation s'exprime à partir de l'élément :

$$\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t) \rangle. \quad (4.38)$$

Toute simplification faite (Annexe C), l'expression du degré de cohérence d'ordre deux peut s'exprimer comme la somme d'une partie cohérente $g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau)$, représentant les coïncidences des paires de photons intriqués, et d'une partie incohérente $g_{\text{Inc}}^{(2)}(\tau)$, représentant les coïncidences accidentelles entre deux photons signaux, deux photons complémentaires, ou un photon signal et un complémentaire appartenant à des paires différentes (Fig. 4.1) [Day07] :

$$g^{(2)}(\tau) = g_{\text{Inc}}^{(2)}(\tau) + g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau). \quad (4.39)$$

Le terme incohérent peut s'écrire :

$$g_{\text{Inc}}^{(2)}(\tau) = 1 + \frac{1}{\Phi^2} \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega |\eta_0(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{-i\omega\tau} \right|^2 = 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2 \quad (4.40)$$

où Φ est le flux de photons incident et $g^{(1)}(\tau)$ la fonction de corrélation d'ordre un. Le terme cohérent s'écrit, quant à lui :

$$g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau) = \frac{1}{\Phi^2} \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega \eta_0(\omega_p - \omega) \eta_0(\omega) |\nu(\omega)| |\mu(\omega)| e^{i[\phi(\omega) + \phi(\omega_p - \omega) + \phi_{NL}(\omega)]} e^{-i\omega\tau} \right|^2 \quad (4.41)$$

où le produit $\nu(\omega)\mu(\omega)$ est exprimé en fonction de la phase non linéaire $\phi_{NL}(\omega)$ accumulée au sein du cristal, principalement due à l'écart à l'accord de phase :

$$\nu(\omega)\mu(\omega) = |\nu(\omega)\mu(\omega)| e^{i\phi_{NL}(\omega)}. \quad (4.42)$$

La première caractéristique majeure du terme incohérent est qu'**il est indépendant des phénomènes de dispersion**. Pour aller plus loin dans l'interprétation de ce terme, il est utile de réécrire le degré de cohérence d'ordre un $g^{(1)}(\tau)$ en fonction de ses composantes partielles dues au signal $g_s^{(1)}(\tau)$ et au complémentaire $g_c^{(1)}(\tau)$:

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\Phi_s}{\Phi_s + \Phi_c} g_s^{(1)}(\tau) + \frac{\Phi_c}{\Phi_s + \Phi_c} g_c^{(1)}(\tau) \quad (4.43)$$

où Φ_c et Φ_s sont les flux de photons complémentaires et signaux, respectivement, tel que $\Phi = \Phi_s + \Phi_c$. L'équation ci-dessus peut-être injectée dans la formule 4.40 et conduit à :

$$g_{\text{Inc}}^{(2)}(\tau) = 1 + \underbrace{\left[\frac{\Phi_s}{\Phi} \right]^2 |g_s^{(1)}(\tau)|^2}_{\text{Signal}} + \underbrace{\left[\frac{\Phi_c}{\Phi} \right]^2 |g_c^{(1)}(\tau)|^2}_{\text{Complémentaire}} + 2 \text{Re} \underbrace{\left[\frac{\Phi_s \Phi_c}{\Phi} |g_s^{(1)}(\tau)| |g_c^{(1)}(\tau)| e^{i[\omega_s - \omega_c]\tau} \right]}_{\text{Signal + Complémentaire}}. \quad (4.44)$$

Les trois contributions à la partie incohérente de la fonction d'autocorrélation sont ainsi mises en valeur. Il est possible de distinguer les termes dus aux coïncidences des photons signaux entre eux (*bunching* classique), aux coïncidences des photons complémentaires entre eux (*bunching* classique) et celles des photons signaux et complémentaires qui appartiennent à des paires différentes—ces dernières conduisant à un terme de battement à $\omega_s - \omega_c$. **Le résultat obtenu est le même que celui qui découlerait du calcul de la fonction d'autocorrélation de deux sources chaotiques, par exemple deux sources ASE, une centrée à la fréquence ω_s et une à ω_c .** Soulignons ici que le

modèle est indépendant de la structure de l'interféromètre ou de la méthode de détection. Si le temps de réponse des détecteurs était suffisant, ce battement serait observable avec un montage de type HBT et serait attribuable au fait que l'on ne peut dire lequel des deux détecteurs détecte le photon signal ou complémentaire. Dans le cas de notre interféromètre de Michelson à deux photons, l'argument est simplement transposable à l'indiscernabilité de la voie empruntée par chacun des photons signal ou complémentaire.

Différentes études – en partie publiées pendant la période où ces travaux ont été réalisés – ont montré l'importance des phénomènes de dispersion dans l'étude de la partie cohérente puisque les photons intriqués doivent être synchronisés à leur arrivée sur le détecteur [Pe'05, O'D09, Sen10]. Dans le cas du régime de fort gain, *i.e.* nos conditions expérimentales, on peut supposer que les paramètres de propagation de l'onde paramétrique sont égaux :

$$\mu(\omega) \approx \nu(\omega) \quad (4.45)$$

ce qui permet de simplifier l'expression 4.41. Par soucis de clarté, on considère le cas où les pertes sont négligeables, $\eta_0(\omega) = 1$:

$$g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau) = \frac{1}{\Phi^2} \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega |\nu(\omega)|^2 e^{i[\phi(\omega)+\phi(\omega_p-\omega)]} e^{-i\omega\tau} \right|^2. \quad (4.46)$$

Un développement limité en $\omega_p/2$ de la phase de l'onde au niveau du détecteur permet de l'écrire :

$$\phi(\omega) = \phi\left(\frac{\omega_p}{2}\right) + \phi'\left(\frac{\omega_p}{2}\right) \left[\omega - \frac{\omega_p}{2}\right] + \frac{1}{2}\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right) \left[\omega - \frac{\omega_p}{2}\right]^2 + o\left(\left[\omega - \frac{\omega_p}{2}\right]^2\right) \quad (4.47)$$

où l'on retrouve le terme de dispersion de la vitesse de groupe habituelle $\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)$ qui peut s'exprimer en fonction de la variation de l'indice [Hut90, Lou00] :

$$\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right) = - \sum_{\text{milieux}} \left[2 \frac{\partial n_{\text{milieu}}}{\partial \omega} \Big|_{\omega_p/2} + \frac{\omega_p}{2} \frac{\partial^2 n_{\text{milieu}}}{\partial \omega^2} \Big|_{\omega_p/2} \right] \frac{L_{\text{milieu}}}{c}. \quad (4.48)$$

En négligeant les termes d'ordres supérieurs à deux, la partie cohérente devient :

$$g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau) = \frac{1}{\Phi^2} \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega |\nu(\omega)|^2 e^{i\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right) \left[\omega - \frac{\omega_p}{2}\right]^2} e^{-i\omega\tau} \right|^2. \quad (4.49)$$

Pour analyser le rôle de la dispersion, le facteur de propagation en fort gain peut être modélisé par la somme de deux gaussiennes centrées aux fréquences ω_s et ω_c lors de la génération hors de la dégénérescence. Tout calcul fait, on aboutit à une expression pour la partie cohérente de la fonction

d'autocorrélation donnée par l'expression C.12 :

$$g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau) \propto \frac{\Delta\tau_0}{\Delta\tau} \left| e^{-\frac{[\tau-\tau_0]^2}{\Delta\tau^2}} + e^{-\frac{[\tau+\tau_0]^2}{\Delta\tau^2}} e^{-i\left[\frac{\Delta\tau_0}{\Delta\tau}\right]^2 [\omega_s-\omega_c]\tau} \right|^2 \quad (4.50)$$

avec :

$$\tau_0 = [\omega_s - \omega_i] \phi'' \left(\frac{\omega_p}{2} \right) \quad (4.51)$$

$$\Delta\tau = \Delta\tau_0 \sqrt{1 + \Delta^4 \phi''^2 \left(\frac{\omega_p}{2} \right)} \quad (4.52)$$

où Δ est la largeur des pics de fluorescence.

Le modèle développé a ainsi permis de montrer que **la partie incohérente $g_{\text{Inc}}^{(2)}(\tau)$ n'est pas sensible à la dispersion et reste centrée en $\tau = 0$** . De plus, l'ensemble de ces considérations permet de montrer que **la partie cohérente $g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau)$ est bien atténuée par les phénomènes de dispersion** en $\sqrt{1 + \Delta^4 \phi''^2 \left(\frac{\omega_p}{2} \right)}$. Dans le cas où signal et complémentaire ne sont pas dégénérés, il y a bien un décalage temporel de $[\omega_s - \omega_i] \phi'' \left(\frac{\omega_p}{2} \right)$ de part et d'autre de $\tau = 0$ ainsi qu'un élargissement du pic de corrélation ($\sim \sqrt{\phi'' \left(\frac{\omega_p}{2} \right)}$). La figure 4.14 présente la modélisation de la fonction d'autocorrélation globale hors de la dégénérescence où l'on observe distinctement le pic central représentant la partie incohérente et les lobes latéraux "étalés", la partie cohérente. Les phénomènes de dispersion tendent à étaler les paires de photons ce qui rend la mise en évidence des corrélations cohérentes difficiles, voire impossible à l'aide du dispositif actuel. L'importance de l'influence des phénomènes de dispersion sur l'allure de $g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau)$ peut être souligné par une analogie avec une impulsion ultra courte dont la sensibilité à la dispersion est bien connue. En effet, l'équation 4.46 peut se récrire de la façon suivante :

$$g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau) = \frac{1}{\Phi^2} \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\omega_p} d\omega \left[\frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int dt g^{(1)}(\tau') e^{i\omega\tau'} \right] e^{i[\phi(\omega) + \phi(\omega_p - \omega)]} e^{-i\omega\tau} \right|^2 \quad (4.53)$$

Cela signifie que l'allure de la partie cohérente est modifiée par la dispersion comme le serait une impulsion courte initialement limité par la transformée de Fourier correspondant à un champ électrique équivalent $E(t) = g^{(1)}(t)$.

Nous venons de voir que la prise en compte des pertes et des phénomènes de dispersion permettait de refléter le comportement de la fonction d'autocorrélation obtenue à partir de nos interférogrammes. Avant de confronter directement notre modèle aux résultats expérimentaux, on se propose de calculer l'interférogramme à deux photons à l'aide du modèle quantique, et, en particulier, de faire le lien entre les grandeurs modélisées et celles mesurées.

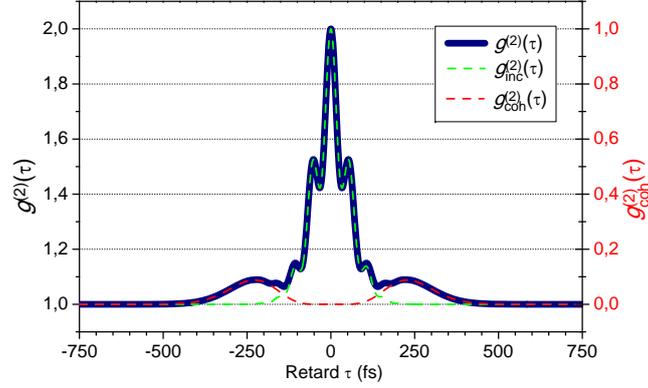


Figure 4.14: Modélisation du degré de cohérence d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$ hors dégénérescence avec prise en compte des pertes et de la dispersion ($\phi'' = 4500 \text{ fs}^2$; $\eta(\omega_s) = 1$; $\eta(\omega_s) = 0,4$).

4.4.4 Modélisation de l'interférogramme d'autocorrélation

La modélisation de l'interférogramme nécessite la prise en compte de l'action de l'interféromètre de Michelson dans l'écriture des opérateurs¹⁵. En considérant l'ensemble des phénomènes décrits dans les parties précédentes, l'opérateur de destruction associé au champ total sur le détecteur après passage dans l'interféromètre peut être relié à l'opérateur en sortie de cristal de l'équation 4.30 :

$$\hat{a}(z_d, \omega, \tau) = \frac{1}{2} \left[i\eta(\omega) \left[1 + e^{-i\omega\tau} \right] \hat{a}(z_c, \omega) - \left[1 - e^{-i\omega\tau} \right] \hat{b}(\omega) \right] \quad (4.54)$$

où $\hat{b}(\omega)$ est l'opérateur du mode vide entrant sur le cube séparateur et τ correspond au déphasage entre les deux bras de l'interféromètre. Comme dans le cas du traitement des pertes linéaires, l'opérateur appliqué au vide ne participe pas à l'établissement de la valeur moyenne et nous l'omettrons¹⁶ :

$$\hat{a}(z_d, \omega, \tau) = \frac{1}{2} i\eta(\omega) \left[1 + e^{-i\omega\tau} \right] \hat{a}(z_c, \omega). \quad (4.55)$$

Le signal d'absorption à deux photons $S_2(\tau)$ mesuré par le détecteur est donc proportionnel à :

$$S_2(\tau) \propto \left\langle \hat{a}^\dagger(z_d, t, \tau) \hat{a}^\dagger(z_d, t, \tau) \hat{a}(z_d, t, \tau) \hat{a}(z_d, t, \tau) \right\rangle \quad (4.56)$$

15. Le traitement quantique de l'interféromètre de Michelson est équivalent au traitement quantique d'un interféromètre de Mach-Zehnder. Le faisceau est couplé avec le vide sur le premier séparateur de faisceau pour donner deux faisceaux. Les deux faisceaux sont alors recombinés après avoir parcouru un chemin différent sur un deuxième séparateur. Les deux entrées étant injectées par les faisceaux, le bruit du vide n'est pas couplé à nouveau.

16. L'opérateur décrit à l'équation 4.55 ne respecte plus les relations de commutations ni les règles de normalisation. Les calculs qui suivent seraient incroyablement alourdis par l'utilisation de l'observable complète (celle avec le vide). Cette simplification est cependant lourde de conséquence et interdit toute interprétation en terme de bruit, voire en faible gain.

avec :

$$\hat{a}(z_d, t, \tau) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\omega_p} d\omega \hat{a}(z_d, \omega, \tau) e^{-i\omega t} \quad (4.57)$$

$$= \frac{1}{2} \left[\frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\omega_p} d\omega i\eta(\omega) \hat{a}(z_c, \omega) e^{-i\omega t} + \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\omega_p} d\omega i\eta(\omega) \hat{a}(z_c, \omega) e^{-i\omega[t+\tau]} \right] \quad (4.58)$$

$$\hat{a}(z_d, t, \tau) = \frac{1}{2} [\hat{a}_p(z_d, t) + \hat{a}_p(z_d, t + \tau)] \quad (4.59)$$

où $\hat{a}_p(z_d, t)$ est l'opérateur de destruction "partiel" dont l'expression est donnée par l'équation 4.37¹⁷. En introduisant l'équation 4.59 dans l'expression de la réponse à deux photons (Eq. 4.56), l'interférogramme peut alors s'écrire comme la généralisation quantique de l'équation 3.6 :

$$\boxed{\frac{S_2(\tau)}{S_2^0} = 1 + 2G^{(2)}(\tau) + 4 \operatorname{Re} [F_1(\tau)] + \operatorname{Re} [F_2(\tau)]} \quad (4.60)$$

où les composantes oscillantes du premier ordre – aux fréquences signal et complémentaire – apparaissent dans la fonctions $F_1(\tau)$, celles du second ordre – aux fréquences $2\omega_s$, $2\omega_c$ et $\omega_s + \omega_c$ – dans la fonctions $F_2(\tau)$. La fonction $G^{(2)}(\tau)$, quant à elle, est à relier à la fonction de corrélation du second ordre tandis que la valeur de normalisation S_2^0 est donnée par la somme des réponses à deux photons obtenues en masquant tour à tour une des voies de l'interféromètre. Les expressions générales et détaillées de ces différentes fonctions sont présentées à l'annexe C.

4.4.5 Comparaison du modèle et de l'expérience

Dans notre expérience la dispersion est principalement due au cube séparateur de faisceau en BK7 et au filtre. À l'aide des équations de Sellmeier des différents matériaux composant les éléments, la dispersion a pu être estimée à $\phi''(\omega_p/2) \approx 4500 \text{ fs}^2$. Les fonctions de corrélation $G^{(2)}(\tau)$ dans les trois cas qui ont été présentés à la partie 4.3 ont ainsi pu être modélisés. Les fonctions de corrélation d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$ déduites sont présentées sur la figure 4.15. Il persiste une incertitude sur la valeur en $\tau = 0$ à cause des erreurs introduites par la normalisation des données expérimentales du fait du bruit de fond persistant sur les interférogrammes. L'accord entre la théorie et l'expérience est néanmoins très bon et notre modèle permet de décrire les phénomènes mis en jeu de façon quantitative.

Des calculs complémentaires ont été réalisés dans le but de modéliser l'intégralité d'un interférogramme. La figure 4.16 présente les modélisations théoriques des interférogrammes présentés sur la figure 4.6. On notera la très grande similitude obtenue encore une fois entre la théorie et l'expérience.

¹⁷. L'expression obtenue ici tient compte des approximations faites sur la voie "vide". Les deux voies de l'interféromètre ne sont pas symétriques si l'on prend le vide en considération – du fait de la conservation de l'énergie.

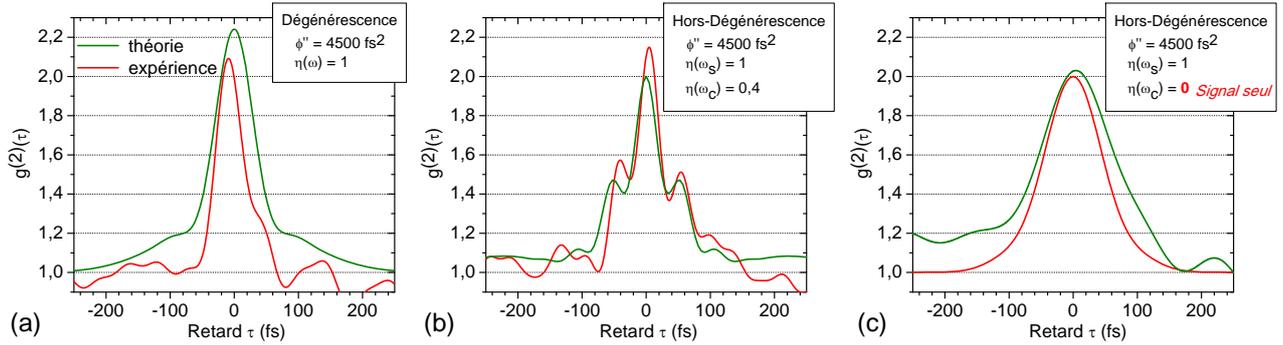


Figure 4.15: Modélisations (vert) et résultats expérimentaux (rouge) des fonctions d'autocorrélation à deux photons $g^{(2)}(\tau)$ d'une source paramétrique en fort gain (a) à la dégénérescence, (b) hors dégénérescence en présence du signal et du complémentaire et (c) hors de la dégénérescence avec le signal seul (le complémentaire est filtré par un miroir dichroïque).

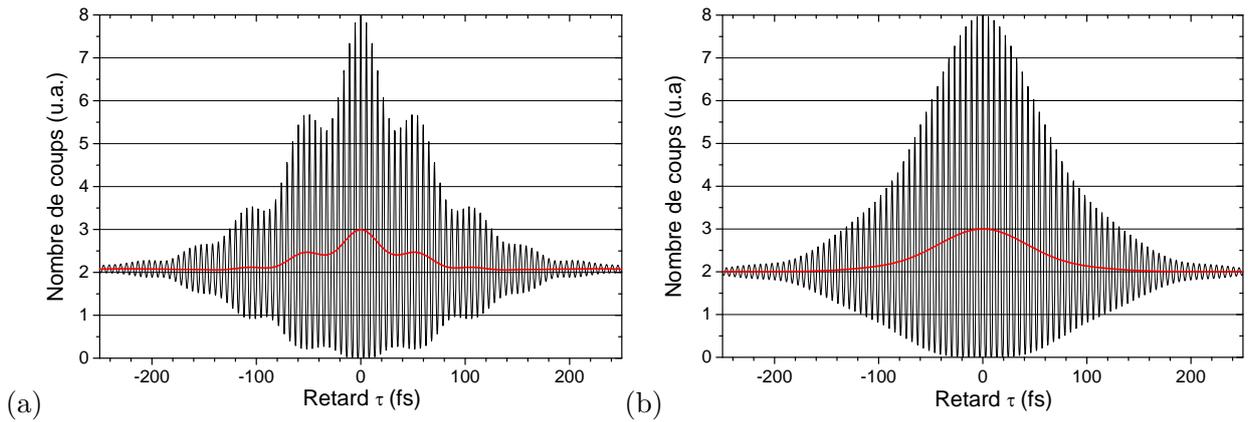


Figure 4.16: Modélisation d'un interférogramme à deux photons d'une source paramétrique en fort gain hors dégénérescence en présence (a) du signal et du complémentaire et (b) du signal seul (le complémentaire est filtré par un miroir dichroïque).

L'interféromètre dans son état actuel a donc permis de caractériser une source paramétrique et de mettre en lumière différents phénomènes. D'une part, nous avons vu l'importance des phénomènes de dispersion sur les coïncidences des paires de photons jumeaux ou plus exactement sur la mesure de ces coïncidences. Il apparaît ainsi clairement que la dispersion fait chuter la valeur du degré de cohérence à $\tau = 0$ de $g^{(2)}(0) = 3$ à $g^{(2)}(0) \approx 2$ en désynchronisant les photons signal et complémentaire d'une même paire. D'autre part, la partie incohérente, la seule clairement observée, permet de mettre en lumière les phénomènes de *bunching* de photons semblables à ceux observés lors de l'étude d'une lumière chaotique et qui engendrent un battement à la différence de fréquences.

4.5 Expériences d'autocorrélation avec compensation de la dispersion

4.5.1 Montage expérimental

De manière à introduire des phénomènes de dispersion anormale pour compenser le passage de l'onde au sein du montage, une paire de prismes à l'angle de Brewster est placée sur le trajet du faisceau [For84]. Ce type de montage dont le principe est représenté sur la figure 4.17 est très utilisé pour la compression d'impulsion femtoseconde¹⁸. Le contrôle de la dispersion anormale se fait en modifiant la distance z_s entre les arêtes des prismes. L'angle du prisme α est calculé de manière à ce que l'onde incidente arrive à l'angle de Brewster θ_B et sorte avec un angle $\theta(\omega)$ proche du minimum de déviation.

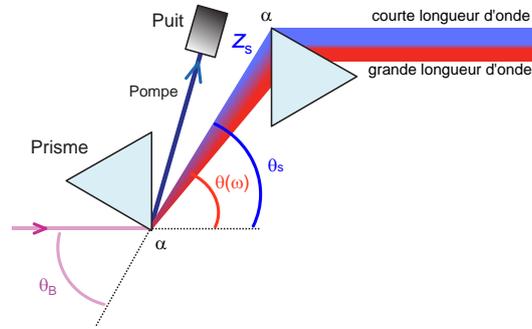


Figure 4.17: Schéma de principe de l'utilisation d'une paire de prismes pour disperser spatialement les longueurs d'onde et contrôler la dispersion.

La phase accumulée $\phi_{pp}(\omega)$ à la traversée d'une paire de prismes est alors donnée par :

$$\phi_{pp}(\omega) = \frac{\omega z_s}{c} \cos(\theta_s - \theta(\omega)) \quad (4.61)$$

où $\theta(\omega) = \arcsin\left(n(\omega) \sin\left(\alpha - \arcsin\left(\frac{\sin \theta_B}{n(\omega)}\right)\right)\right)$ est l'angle en sortie du premier prisme entre le faisceau de fréquence ω et la normale à la face de sortie, $n(\omega)$ est l'indice de réfraction du prisme, c la vitesse de la lumière, θ_s est l'angle entre la droite qui relie les deux arêtes des prismes et la normale à la face de sortie du premier prisme. L'angle θ_s peut être considéré comme l'angle de sortie de la plus petite longueur d'onde qui sera traitée.

La dérivée seconde de la phase accumulée $\phi_{pp}''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)$ nous donne alors accès à la dispersion de vitesse de groupe induite par la paire de prismes. Le montage présenté à la figure 4.18 montre que le faisceau passe une seconde fois à travers la paire de prismes pour "reformer" le faisceau ce qui aboutit à un

¹⁸. Les fréquences qui composent l'onde incidente sont dispersées spatialement par un premier prisme. La face d'entrée du second prisme est placée parallèlement à celle de sortie du premier prisme de manière à ce que les rayons issus du second prisme soient parallèles entre eux (et au faisceau incident). La différence de chemin optique entre les rayons de différentes longueurs d'onde permet alors de compenser la dispersion introduite par le reste du montage.

facteur de phase totale de :

$$\phi_{pp}^{tot} = \frac{2\omega z_s}{c} \cos(\theta_s - \theta(\omega)) = \phi_{pp}'' \left(\frac{\omega_p}{2} \right) \left[\omega - \frac{\omega_p}{2} \right]^2. \quad (4.62)$$

Les prismes utilisés sont des prismes isocèles en SF14 d'apex $\alpha = 59,6^\circ$ et l'angle θ_s associé à la plus courte longueur d'onde du spectre est alors de :

$$\theta_s = \theta(1,42\mu\text{m}) = 58,18^\circ.$$

La distance z_s optimale est de 8,6 cm et conduit à un angle de $\theta(1,7\mu\text{m}) = 57,67^\circ$ pour le faisceau de plus haute longueur d'onde. L'extension spatiale du faisceau sur le second prisme est ainsi d'environ 1 mm, justifiant l'hypothèse consistant à négliger la dispersion introduite par la traversée de la paire de prismes.

Suite à cette "pré"-compensation, le faisceau est envoyé à travers l'interféromètre décrit dans la partie 4.2.1. Le dispositif expérimental global est présenté sur la figure 4.18.

4.5.2 Mise en évidence de l'exaltation du signal d'autocorrélation et du degré de cohérence d'ordre deux

Ainsi armé d'un dispositif expérimental grandement amélioré au vu des résultats de la modélisation de la partie précédente – confirmés par d'autres études [O'D09, Sen10] – une dernière série d'expériences d'autocorrélation a pu être menée. Dans un premier temps, les différences apparaissent assez subtilement sur l'interférogramme de l'impulsion complète de quelques picosecondes présentée à la figure 4.19(a). La valeur de la réponse pour des retards plus grands que la durée de l'impulsion τ_p tend toujours vers $S_2(\tau \gg \tau_p) = 1$ et celle en $\tau = 0$ demeure de $S_2(0) = 8$. On note cependant que l'enveloppe de l'impulsion n'atteint plus la valeur de 2 précédente et semble nettement plus bruitée¹⁹.

En focalisant notre attention sur le pic central, les différences avec les interférogrammes obtenus précédemment sont saisissantes. De manière qualitative, on peut souligner deux points très encourageants :

- À la dégénérescence (Fig. 4.19(b)) tout comme hors dégénérescence (Fig. 4.19(c)), la réponse à deux photons pour les retards supérieurs au temps de cohérence τ_c de la source a une valeur moyenne nettement inférieure à 2, $\overline{S_2(\tau \gg \tau_c)} < 2$. Ce point est très important puisqu'il signe l'exaltation tant attendue du *bunching*!
- Sur l'interférogramme hors-dégénérescence (Fig. 4.19(c)), le contraste de la modulation à $(\omega_s - \omega_c)$ est excellent. En comparant cet interférogramme à celui où le complémentaire est coupé et donc où la modulation disparaît (Fig. 4.19(d)), l'existence et l'amélioration de l'interaction entre signal et complémentaire sont nettement mises en évidence.

19. Nous reviendrons sur ce "bruit" en détail à la sous-partie 4.5.3.

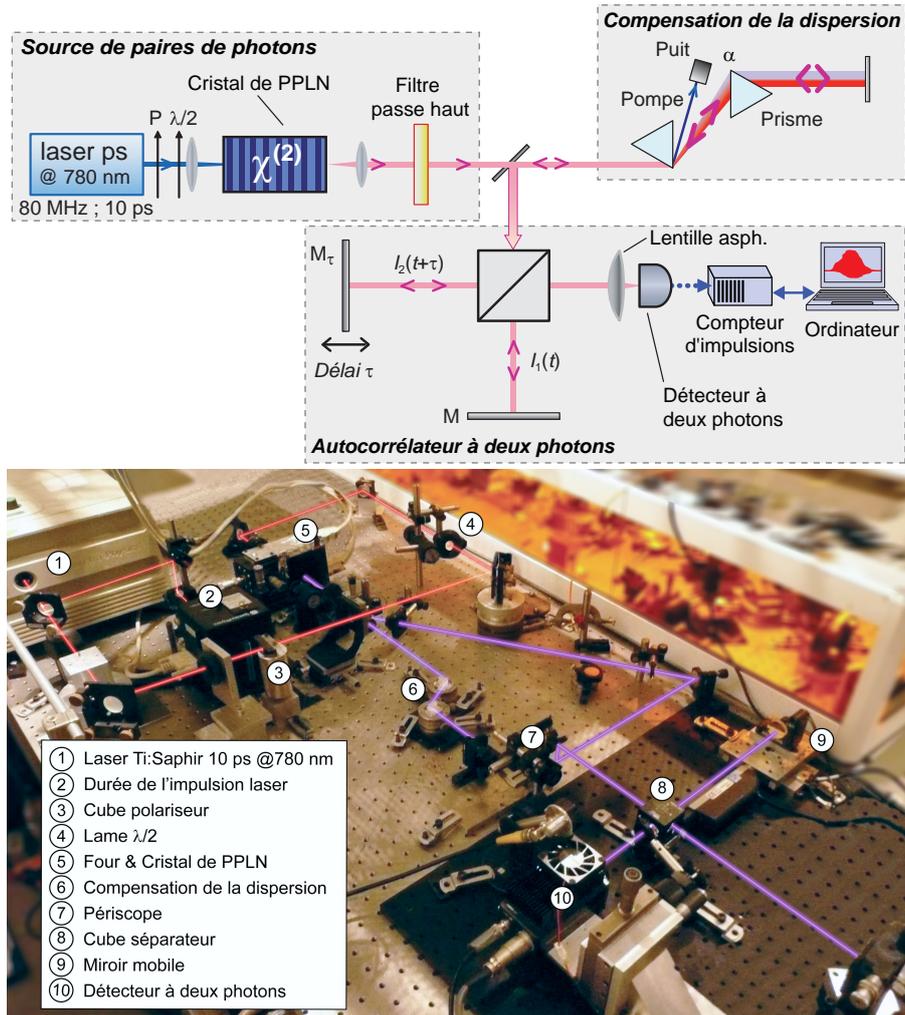


Figure 4.18: Montage d'une expérience d'autocorrélation d'une source paramétrique avec compensation de la dispersion à l'aide de prismes.

Les courbes rouges visibles sur les figures 4.19(b) et 4.19(c) permettent l'évaluation des fonctions de corrélation du second ordre de la source de photons jumeaux aux différents accords de phases par le biais de l'équation 3.10. Les figures 4.20(a) et 4.20(b) représentent les degrés de cohérences d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$ obtenus, respectivement, à la dégénérescence et hors dégénérescence. Force est de constater que les résultats sont édifiants dans les deux cas d'accord de phases présentés :

- La valeur en $\tau = 0$ est de $g^{(2)}(0) = 3$ et montre bien l'exaltation attendue du phénomène de *bunching* de photons par rapport à une source chaotique.
- Les fonctions obtenues se démarquent sans ambiguïté des fonctions d'autocorrélation de sources chaotiques ayant un spectre identique.
- Le très bon contraste de la modulation à $(\omega_s - \omega_c)$ montre qu'elle affecte aussi bien la partie incohérente $g_{\text{Inc}}^{(2)}(\tau)$ que la partie cohérente $g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau)$ (Fig. 4.20(b)).

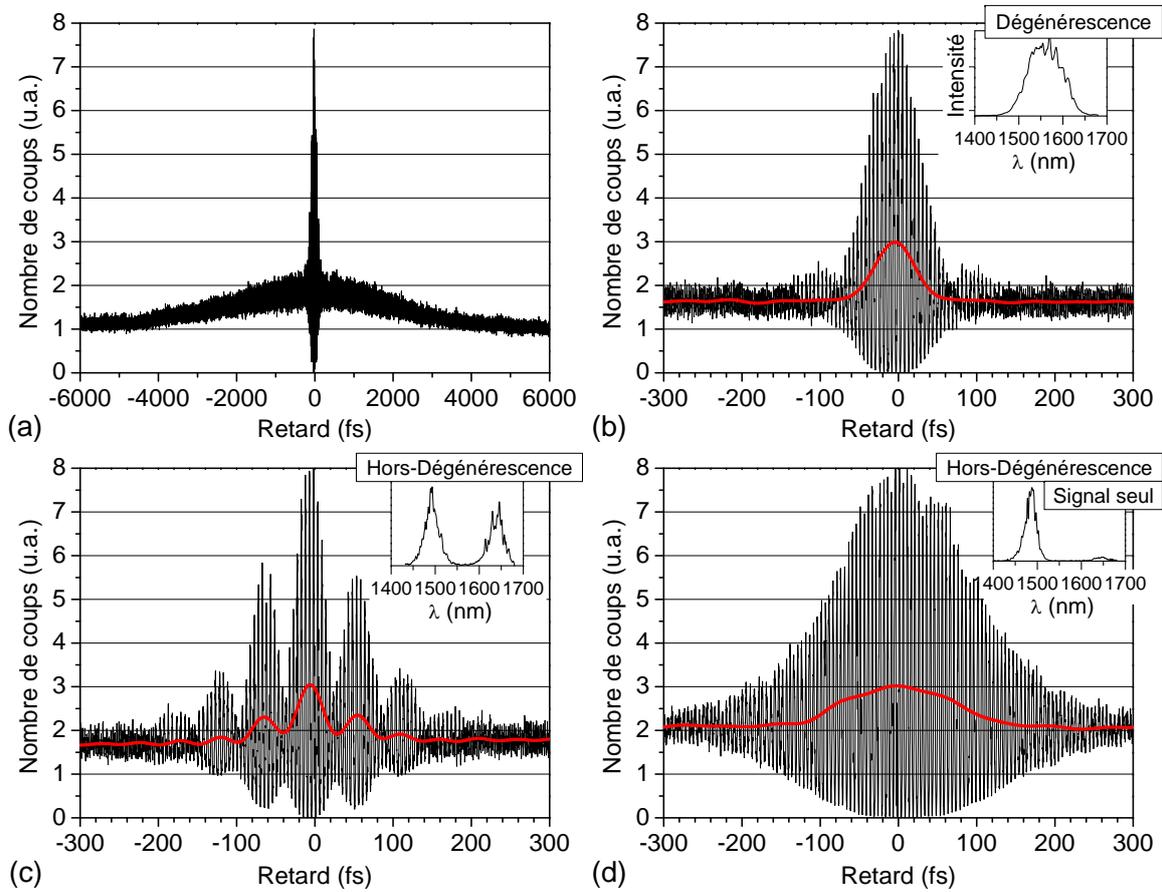


Figure 4.19: Interférogramme à deux photons d'une source de photons jumeaux lorsque les phénomènes de dispersion sont compensés. (a) Interférogramme de l'impulsion complète. Agrandissement sur la partie centrale de l'interférogramme (b) à la dégénérescence, (c) hors dégénérescence et (d) hors dégénérescence lorsque l'onde complémentaire est très fortement atténuée. Les encarts présentent les spectres du faisceau incident associés aux différents interférogrammes.

- L'accord est l'excellent entre les expériences et les modélisations obtenues avec des pertes nulles et en compensant la dispersion, *i.e.* en enlevant tout les paramètres de modélisation qui ne sont pas "facilement" accessibles sur notre montage²⁰.

La mesure quantitative de l'exaltation du *bunching* des photons issus d'une source de photons jumeaux a ainsi été possible à la dégénérescence tout autant que hors dégénérescence²¹.

20. Il reste donc uniquement comme paramètres : (1) la puissance crête et (2) la longueur d'onde du laser de pompe, (3) la taille du faisceau de pompe dans le cristal – que nous avons supposée constante en première approximation et égale à 60 μm – et enfin (4) la longueur d'onde du signal λ_S ou plutôt, la température du cristal de PPLN décrit en début de chapitre. Les caractéristiques du cristal non linéaire ne sont pas considérées comme des paramètres puisqu'elles sont bien déterminées. La puissance crête du laser est obtenue à partir de la durée d'impulsion, le taux de répétition et la puissance moyenne. Au final, il reste 4 paramètres mesurables.

21. Les interférogrammes expérimentaux (Fig. 4.19(b) et 4.19(c)) peuvent être comparés aux interférogrammes théoriques présentés en annexe (Fig. C.2(a) et C.2(c) à la page 167).

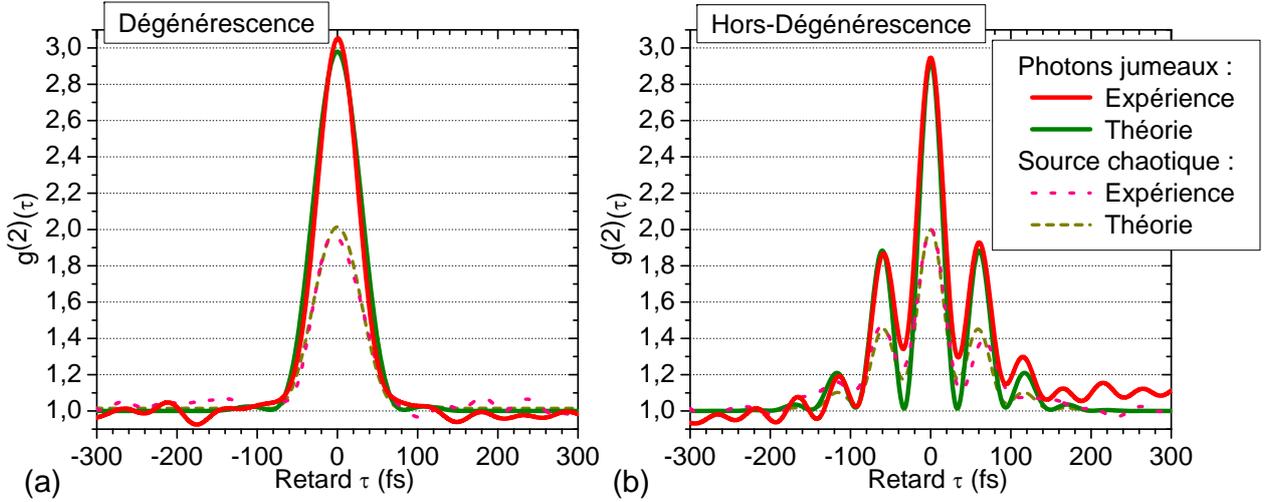


Figure 4.20: Fonction de cohérence d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$ d'une source de photons jumeaux (a) à la dégénérescence et (b) hors-dégénérescence. Les fonctions obtenues lorsque la dispersion est compensée (trait plein rouge) sont comparées à la modélisation théorique (trait plein vert) ($\eta = 1$; $\phi''(\omega_p/2) = 0 \text{ fs}^2$) et aux résultats théoriques et expérimentaux lorsque la dispersion n'est pas compensée, *i.e.* pour une source chaotique de même spectre.

4.5.3 Représentation temps-fréquences des interférogrammes à deux photons

Au vu des très bons résultats sur la mesure des fonctions d'autocorrélation, nous sommes en droit de nous demander s'il existe d'autres caractéristiques particulières associées aux faisceaux de photons jumeaux et qui seraient mesurables à l'aide de notre interféromètre.

La figure 4.21(a) présente l'interférogramme à deux photons hors dégénérescence à une échelle de retard intermédiaire, bien supérieure au temps de cohérence de la source tout en demeurant inférieure à la durée de l'impulsion. En s'intéressant à la réponse au long retard (encart gauche), on remarque qu'il reste une composante qui semble osciller. Notons que cette composante oscillante est à l'origine de l'excès de "bruit" (Fig. 4.19(a)) et n'apparaît pas sur l'interférogramme d'une source chaotique de même spectre (Fig. 4.21(b)). Pour parfaire ces observations, une analyse des fréquences de l'interférogramme en fonction du retard a été réalisée. Les résultats sont présentés sous forme de spectrogrammes [Hla08] à la figure 4.21(c) pour la source de photons jumeaux et à la figure 4.21(d) pour la source chaotique équivalente. En plus de mettre en évidence les différentes fréquences attendues, le spectrogramme relatif aux photons jumeaux (Fig. 4.21(c)) montre qu'il existe une composante à la fréquence de la pompe $\omega_p = \omega_s + \omega_c$ même pour les retards très importants. Ce phénomène traduit une cohérence supplémentaire du champ de photons jumeaux total et est une conséquence de la cohérence de la pompe [Kwi90, Rar90, Jav90, Pe'05].

Le calcul complet de l'interférogramme à deux photons (Annexe C.5) permet de faire sortir cette composante à ω_p de la fonction $F_2(\tau)$ introduite à l'équation 4.60 et qui peut être directement reliée

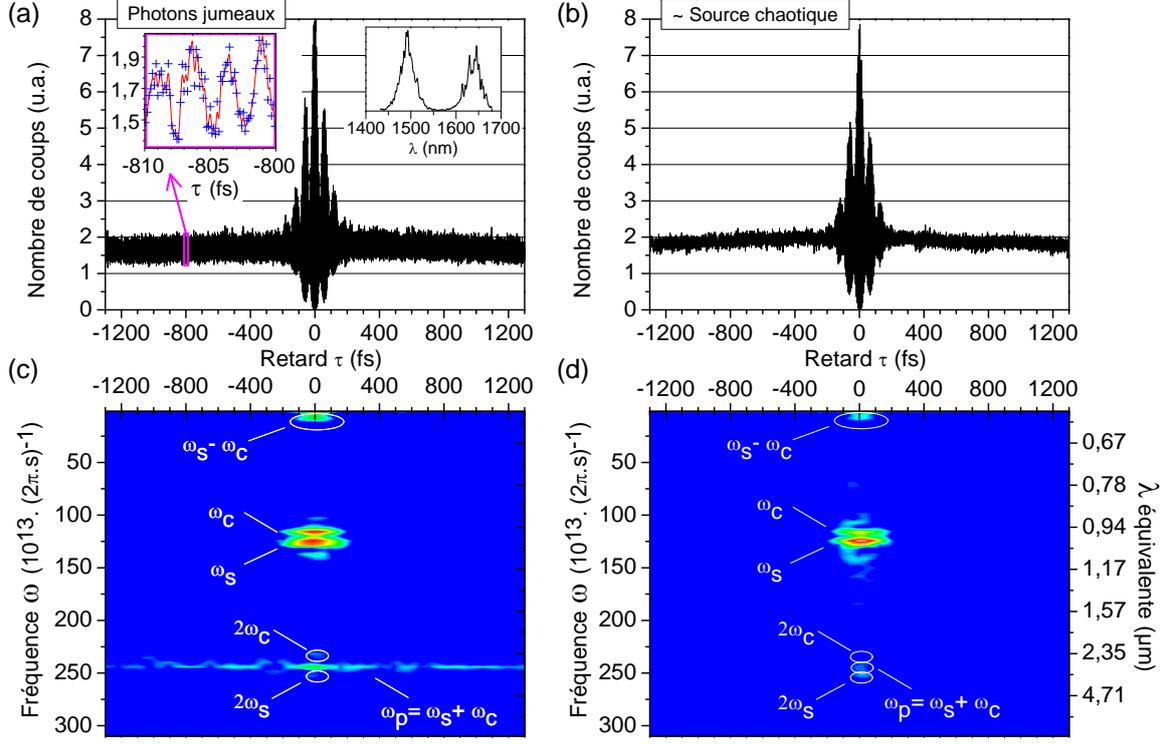


Figure 4.21: Interférogramme à deux photons d'une source de photons jumeaux hors-dégénérescence (a) lorsque les phénomènes de dispersion sont compensés et (b) lorsque la dispersion n'est pas compensée, analogue à une source chaotique. Le spectre des deux sources est présenté dans l'encart de droite en (a). L'encart de gauche en (a) présente un agrandissement de l'interférogramme lorsque le retard est grand devant le temps de cohérence de la source. Les spectrogrammes – *i.e.* la représentation des composantes fréquentielles de l'interférogramme en fonction du retard – relatifs aux interférogrammes (a) et (b) sont respectivement présentés en (c) et (d).

aux coïncidences exactes entre les photons d'une même paire :

$$Re [F_2(\tau)] = \frac{2 Re [g^{(1)}(\tau)]^2}{g^{(2)}(0)} + \cos \omega_p \tau \frac{g_{\text{Coh.}}^{(2)}(0)}{g^{(2)}(0)}. \quad (4.63)$$

Dans cette équation, le terme $Re [g^{(1)}(\tau)]^2$ s'annule lorsque le retard augmente tandis que le terme $\cos \omega_p \tau \frac{g_{\text{Coh.}}^{(2)}(0)}{g^{(2)}(0)}$ oscillant uniquement à la fréquence de la pompe ω_p est d'amplitude constante quel que soit le retard²². Par ailleurs, le facteur d'amplitude de ce dernier terme peut-être interprété comme la fraction des coïncidences exactes sur l'ensemble des coïncidences à retard nul. L'amplitude moyenne $\Omega \approx 0,65$ de l'oscillation mesurée sur la figure 4.19(a) conduit à la valeur de $g_{\text{Coh.}}^{(2)}(0)$:

$$\Omega = 2 \frac{g_{\text{Coh.}}^{(2)}(0)}{g_{\text{Coh.}}^{(2)}(0) + g_{\text{Inc.}}^{(2)}(0)} \implies g_{\text{Coh.}}^{(2)}(0) = \frac{\Omega}{2 - \Omega} g_{\text{Inc.}}^{(2)}(0) = 0,96 \approx 1 \quad (4.64)$$

²². Il faut noter ici qu'au cours de la modélisation la pompe est décrite comme monochromatique. Si tel n'était pas le cas, il serait bien évidemment plus difficile d'extraire la fréquence ω_p de l'intégrale.

où $g_{\text{Inc.}}^{(2)}(0) = 2$. Cette mesure de $g_{\text{Coh.}}^{(2)}(0)$ – indépendante des précédents traitements – est en accord avec la valeur théorique ainsi qu'avec celle déduite des mesures de la fonction d'autocorrélation (Fig. 4.20(b)).

Ces différentes mesures étant cohérentes entre elles et avec la théorie, nous avons alors décidé d'étudier la capacité de notre montage à caractériser les corrélations très loin de la dégénérescence.

4.5.4 Des mesures possibles très loin de la dégénérescence

Pour réaliser les expériences très loin de la dégénérescence, nous avons augmenté la température du cristal non linéaire d'une dizaine de degrés. L'efficacité de conversion diminuant avec l'augmentation de la température, la sensibilité de notre détecteur ne nous a pas permis de monter à des températures encore plus élevées. Le spectre est présenté en encart de la figure 4.22(a). L'interférogramme à deux photons mesuré est présenté sur la figure 4.22(a). On peut noter de suite que l'accord avec l'interférogramme théorique (Fig. 4.22(b)) est très bon et l'on retrouve bien les principales caractéristiques escomptées tant sur l'interférogramme théorique qu'expérimental :

1. la modulation à la fréquence $(\omega_s - \omega_c)$ de la partie centrale est très marquée sur l'interférogramme et sur la courbe rouge ;
2. la valeur moyenne de la réponse à deux photons est nettement inférieure à 2, $\overline{S_2(\tau \gg \tau_c)} < 2$;
3. au très long retard, la réponse à deux photons continue d'être modulée avec une amplitude $\Omega \approx 0.65$ et conduit à $g_{\text{Coh.}}^{(2)}(0) \approx 1$.

Le spectrogramme (Fig. 4.22(c)) confirme là encore la présence des oscillations aux différentes fréquences. On modérera toutefois cette conclusion en signalant que les fréquences à $2\omega_c$ et $2\omega_s$ ne sont pas nettement visibles tandis que des artefacts apparaissent aux fréquences $2\omega_s - \omega_c$ et $2\omega_c - \omega_s$. Les modélisations réalisées tendent à prouver que ceci est une conséquence du bruit associé à la mesure²³.

Enfin, les fonctions d'autocorrélation déduites des interférogrammes à deux photons (Fig. 4.22(a) et 4.22(b)) sont présentées sur la figure 4.22(d). L'accord entre théorie et expérience est là aussi excellent. **L'exaltation du phénomène de *bunching* des photons jumeaux est nettement observable très loin de la dégénérescence :**

$$g^{(2)}(0) \approx 3. \quad (4.65)$$

23. Par ailleurs, on notera ici que les fréquences à $2\omega_c$ sont atténuées du fait de la différence de coefficients d'absorption à deux photons aux longueurs d'ondes signal et complémentaire. Le traitement complet de l'influence de cette variation sur les différentes mesures de corrélation est effectué à l'annexe D. Stipulons ici que cette atténuation de la fréquence $2\omega_c$ est l'une de seules conséquences notables de la variation du coefficient d'absorption à deux photons et ce malgré le très large écart entre les longueurs d'ondes signal et complémentaire. Enfin, on pourra comparer la figure 4.22(c) aux spectrogrammes théoriques (Fig. D.4(b) et D.4(c) page 180).

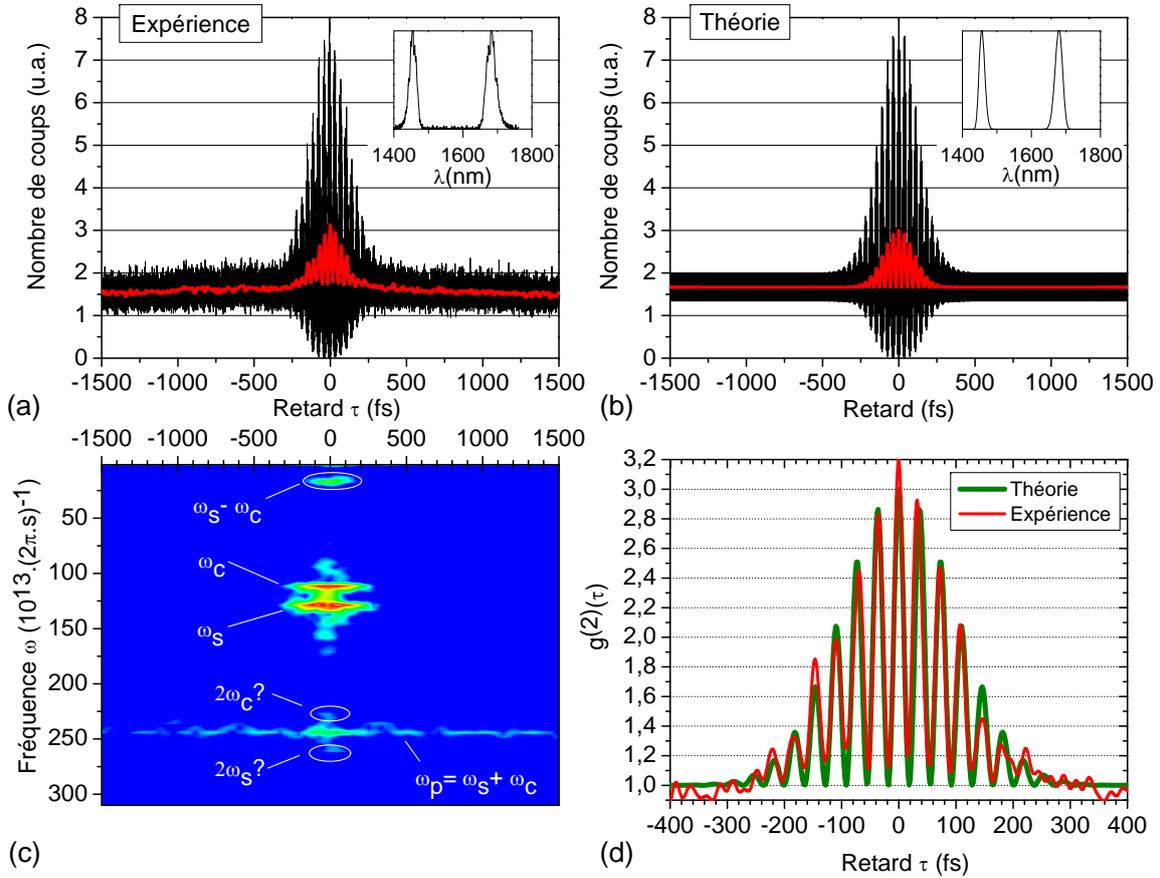


Figure 4.22: Corrélations d'une sources de photons jumeaux très loin de la dégénérescence. Interférogrammes à deux photons (a) expérimental et (b) théorique. Les spectres expérimental et théorique sont présentés en encart. (c) Spectrogramme relatif à (a). (d) Fonctions de corrélation du second ordre déduit des interférogrammes (a) et (b).

Nous nous sommes jusqu'à présent intéressés aux corrélations de photons de l'intégralité du faisceau de photons jumeaux. Nous avons vu qu'il était possible de séparer la fonction de corrélation $g^{(2)}(\tau) = g_{\text{Coh.}}^{(2)}(0) + g_{\text{Inc.}}^{(2)}(0)$ représentant d'une part les coïncidences exactes des photons jumeaux et d'autre part les coïncidences accidentelles des photons signal entre eux, des photons complémentaire entre eux et des photons signal et complémentaire appartenant à des paires différentes²⁴. Toutefois, nous ne pouvons pas distinguer directement les coïncidences accidentelles des photons signal entre eux et complémentaire entre eux des coïncidences accidentelles entre un photon signal et un photon complémentaire. Il nous est donc jusqu'à présent impossible de mesurer uniquement, directement et quantitativement l'ensemble des coïncidences entre photons signal et complémentaire.

24. Pour pouvoir appréhender les différentes contributions simplement et en déduire les grandeurs caractéristiques associées aux différents types de coïncidences, un modèle stochastique des mesures de corrélation a été développé et est présenté à la partie 4.7.

4.6 Expériences d'intercorrélation d'une source paramétrique hors-dégénérescence

Après avoir étudié la fonction de corrélation d'ordre deux du faisceau de photons jumeaux, nous allons dans cette partie nous intéresser à la mise en évidence directe et quantitative des corrélations entre les photons signal et complémentaire non dégénérés par la mesure de la fonction d'intercorrélation²⁵ entre les faisceaux signal et complémentaire.

4.6.1 Montage expérimental

Le montage expérimental utilisé reprend la source hors-dégénérescence tandis que l'interféromètre est largement modifié. Dans le cas présent, l'interféromètre présenté sur la figure 4.23 est dérivé de l'architecture de type Mach-Zehnder [Sen10] où le retard entre les deux voies est contrôlé par le déplacement de deux miroirs sur une des voies. Le miroir dichroïque d'entrée permet de séparer le signal et le complémentaire, un sur chaque voie, qui sont recombinaés sur le miroir dichroïque de sortie puis focalisés sur le détecteur à deux photons. Ainsi, les variations de la réponse du détecteur sont uniquement dues à celles des corrélations entre les intensités signal et complémentaire.

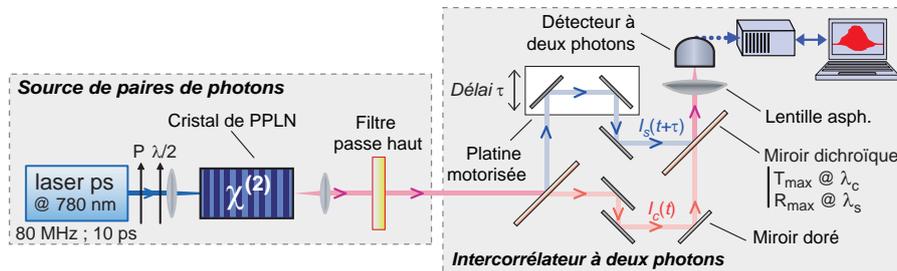


Figure 4.23: Dispositif expérimental d'intercorrélation d'une source de photons jumeaux à des longueurs d'ondes non dégénérées

De manière à pouvoir présenter et interpréter rapidement les résultats expérimentaux, nous allons commencer par exposer brièvement l'extension du modèle quantique décrit précédemment à ce nouvel interféromètre. Les résultats expérimentaux seront présentés et immédiatement confrontés aux prévisions théoriques à la partie 4.6.3.

4.6.2 Modélisation de l'interférogramme d'intercorrélation à deux photons

La modélisation de cet interférogramme reprend dans les grandes lignes les concepts et les théories développés à la partie 4.4. Dans un premier temps, il est nécessaire d'évaluer la forme des opérateurs en sortie d'interféromètre. Pour cela, nous supposons que la dispersion et les pertes dans le bras

25. L'intercorrélation est aussi appelée corrélation croisée (*cross-correlation*).

signal ou complémentaire de l'interféromètre peuvent être données par les coefficients $D_{s,c}(\omega)$:

$$D_{s,c}(\omega) = D_{s,c}^0(\omega) e^{i\phi_{s,c}(\omega)} \quad (4.66)$$

et se distinguent par leurs indices qui permettent de prendre en compte la différence éventuelle entre les deux bras. L'opérateur de destruction en sortie d'interféromètre et sur le détecteur $\hat{a}(z_d, \omega, \tau)$ peut s'écrire en fonction de l'opérateur en sortie de cristal $\hat{a}(z_c, \omega)$ donné à l'équation 4.30, du facteur $\eta(\omega)$ de transmission des miroirs dichroïques d'entrée et de sortie telle que $\mathcal{T}(\omega) = \sqrt{\eta(\omega)}$ et $\mathcal{R}(\omega) = \sqrt{1 - \eta(\omega)}$:

$$\hat{a}(z_d, \omega, \tau) = \left[D_c(\omega)\eta(\omega) - D_s(\omega) [1 - \eta(\omega)] e^{-i\omega\tau} \right] \hat{a}(z_c, \omega) + i\sqrt{\eta(\omega) [1 - \eta(\omega)]} \left[1 + e^{-i\omega\tau} \right] \hat{b}(\omega) \quad (4.67)$$

dont on négligera les fluctuations introduites par l'opérateur du mode vide entrant par le premier miroir dichroïque du fait de l'excès de bruit propre à nos signaux et du fait que l'on ne s'intéresse ici qu'à la valeur moyenne de l'interférogramme. L'opérateur effectif de destruction sur le détecteur s'écrit donc :

$$\begin{aligned} \hat{a}(z_d, t, \tau) &\approx \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\omega_p} d\omega \left[D_c(\omega)\eta(\omega) - D_s(\omega) [1 - \eta(\omega)] e^{-i\omega\tau} \right] \hat{a}(z_c, \omega) e^{-i\omega t} \\ &\approx \hat{a}_s(t + \tau) + \hat{a}_c(t) \end{aligned} \quad (4.68)$$

où les opérateurs de destructions partiels peuvent s'écrire :

$$\begin{cases} \hat{a}_s(t) &= \frac{-1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\omega_p} d\omega D_s(\omega) [1 - \eta(\omega)] \hat{a}(z_c, \omega) e^{-i\omega t} \\ \hat{a}_c(t) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\omega_p} d\omega D_c(\omega) \eta(\omega) \hat{a}(z_c, \omega) e^{-i\omega t} \end{cases} \quad (4.69)$$

On peut montrer que l'interférogramme obtenu peut être décrit par une équation de la forme (Annexe C.6) :

$$\frac{S_{2, \text{Inter}}(\tau)}{S_{2, \text{Inter}}^0} = 1 + 2G_{sc}^{(2)}(\tau) \quad (4.70)$$

$$\text{avec } G_{sc}^{(2)}(\tau) = \frac{(D_c^0 D_s^0)^2}{2\pi^2 S_{2, \text{Inter}}^0} \left\{ \left[\int_0^{\omega_p/2} d\omega |\nu(\omega)|^2 \right]^2 + \left| \int_0^{\omega_p/2} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega) e^{i[\phi_c(\omega) + \phi_s(\omega_p - \omega)]} e^{i\omega\tau} \right|^2 \right\} \quad (4.71)$$

où les miroirs dichroïques sont supposés avoir une fréquence de coupure parfaite $\omega_p/2$ – modélisés par une fonction de Heaviside –, les fonctions de pertes sont à peu près constantes sur chaque domaine de fréquences signal et complémentaire, *i.e.* $D_{s,c}^0(\omega) \approx D_{s,c}^0$, et $S_{2,\text{Inter}}^0 = \langle : \hat{I}_s^2 : \rangle + \langle : \hat{I}_c^2 : \rangle$ ²⁶.

En comparant l'équation 4.70 et celle de l'interférogramme d'autocorrélation (Eq. C.16), le premier point à noter est la suppression des fonctions oscillantes dues aux interférences en champ. La réduction des domaines d'intégrations – résultant de la structure du nouvel interféromètre – a par ailleurs deux autres conséquences majeures :

- il n'y a plus aucune contribution des coïncidences incohérentes dépendante du retard entre les voies mise en évidence au début de ce chapitre²⁷ ;
- le battement à la différence de fréquences entre le complémentaire et le signal disparaît également puisque la voie empruntée par chacun des photons est bien déterminée.

Les phénomènes de dispersion vont quant à eux avoir les mêmes conséquences : le retard τ_0 au maximum du pic de corrélation va être translaté par rapport à la position d'équilibre initiale et la valeur $S_{2,\text{Inter}}(\tau_0)$ va diminuer.

La partie dépendante du retard de l'équation 4.71 peut être rapprochée de la partie cohérente du degré de cohérence d'ordre deux (Eq. 4.41) puisqu'elle met en évidence les coïncidences entre photons signal et complémentaire d'une même paire. Notons toutefois que la réduction du domaine d'intégration va supprimer là aussi la modulation à $(\omega_s - \omega_c)$ et il devient plus judicieux d'introduire la fonction d'intercorrélation $g_{sc}^{(2)}(\tau)$ entre les faisceaux signal et complémentaire que d'adapter les définitions des fonctions de corrélation cohérente et incohérente utilisées dans la partie précédente.

La fonction d'intercorrélation $g_{sc}^{(2)}(\tau)$ entre signal et complémentaire est définie comme :

$$g_{sc}^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_s^\dagger(t + \tau) \hat{a}_s(t + \tau) \hat{a}_c(t) \rangle}{\langle \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_c(t) \rangle \langle \hat{a}_s^\dagger(t) \hat{a}_s(t) \rangle} \quad (4.72)$$

et peut s'exprimer en fonction des grandeurs définies dans notre modèle (Annexe C.6). Elle est alors donnée par :

$$g_{sc}^{(2)}(\tau) = 1 + \frac{1}{\left[\int_0^{\omega_p/2} d\omega |\nu(\omega)|^2 \right]^2} \left| \int_0^{\omega_p/2} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega) e^{i[\phi_c(\omega) + \phi_s(\omega_p - \omega)]} e^{i\omega\tau} \right|^2 \quad (4.73)$$

26. On notera ici que la définition de $S_{2,\text{Inter}}^0$ comme la somme de la réponse à deux photons de chacune des voies lorsque l'autre est coupée est la même que dans l'expérience précédente. Expérimentalement, la mesure est réalisée en une fois et est donnée par la réponse à deux photons lorsque les impulsions signal et complémentaire ne sont plus superposées temporellement, *i.e.* $\tau \gg \tau_p$.

27. Ce n'est pas surprenant puisque, comme nous l'avons vu au début de ce chapitre, les photons appartenant à des paires différentes ne sont pas corrélés.

$$g_{sc}^{(2)}(\tau) = \frac{G_{sc}^{(2)}(\tau)}{G_{sc}^{(2)}(\tau \gg \tau_c)} = \frac{\left(\frac{S_{2,Inter}(\tau)}{S_{2,Inter}^0} - 1\right)}{\left(\frac{S_{2,Inter}(\tau \gg \tau_c)}{S_{2,Inter}^0} - 1\right)}. \quad (4.74)$$

La fonction d'intercorrélation $g_{sc}^{(2)}(\tau)$ entre signal et complémentaire est ainsi facilement accessible à l'aide de notre nouveau montage²⁸.

4.6.3 Détermination expérimentale de la fonction d'intercorrélation

Suite à la modélisation que nous venons de voir, plusieurs expériences d'intercorrélation à deux photons ont été réalisées dans des conditions analogues aux expériences d'autocorrélation lorsque les longueurs d'ondes signal et complémentaire ne sont pas dégénérées²⁹. Les fonctions d'intercorrélation mesurées sont présentées sur les figures 4.24(a) et 4.24(b) :

- la figure 4.24(a) est associée à la mesure hors dégénérescence dont le spectre est présenté dans l'encart de la figure 4.19(c) ;
- la figure 4.24(b) est associée à la mesure très loin de la dégénérescence dont le spectre est présenté dans l'encart de la figure 4.22(a).

Malgré le niveau de bruit élevé³⁰, les corrélations entre photons signal et complémentaire sont nettement mises en évidence et la fonction d'intercorrélation est bien déterminée. On observe entre autre l'augmentation du temps d'intercorrélation³¹ (Tab. 4.1) à mesure que l'écart entre les fréquences signal et complémentaire augmente et que les deux parties du spectre de fluorescence s'affinent.

Dans les deux cas, l'accord avec la théorie est assez bon. Les meilleurs résultats sont toutefois obtenus très loin de la dégénérescence où la valeur mesurée en $\tau = 0$ est en excellent accord avec la théorie, *i.e.* :

$$g_{sc}^{(2)}(0) = 2. \quad (4.75)$$

En s'appuyant sur le très bon accord avec la théorie, ces conditions expérimentales ont été utilisées pour mettre en évidence l'influence des phénomènes de dispersion sur la mesure d'intercorrélation. Ces phénomènes ont été introduits en sortie d'interféromètre par le biais de la lame dispersive utilisée à la partie 4.3.3. Les résultats de l'expérience (Fig. 4.24(c)) sont toujours en très bon accord avec la théorie :

- la valeur du maximum de la fonction d'intercorrélation diminue avec la dispersion ;
- le temps d'intercorrélation τ_{sc} augmente avec la dispersion (Tab. 4.1).

28. On peut souligner ici que l'interféromètre est automatiquement "symétrisé" par notre procédure de normalisation. La mesure de la fonction d'intercorrélation est alors insensible à l'introduction de pertes différentes sur les deux bras.

29. Des mesures qui ne seront pas présentées ici ont été effectuées à la dégénérescence. La "zone" de coupure de nos miroirs étant de 60 nm – ce qui est très fin – les interférences en champs perturbaient trop la mesure pour en déduire la fonction d'intercorrélation.

30. L'origine de ce bruit demeure indéterminée. Le plus probable est qu'il soit dû aux vibrations mécaniques des miroirs. L'analyse fréquentielle ne fait ressortir aucune composante particulière.

31. Les temps d'intercorrélation sont estimés de manière analogue au temps de corrélation classique à partir de l'ajustement des données avec une gaussienne de la forme $g_{sc}^{(2)}(\tau) = 1 + e^{-\pi(\tau/\tau_{sc})^2}$.

Expérimentalement, une variation de la position d'équilibre des miroirs mobiles de plus d'une centaine de microns a également été observée et confirme la tendance prévue par la théorie³².

	Hors-dégénérescence	Très loin de la dégenérescence	Très loin de la dégenérescence + lame dispersive	
	$\Delta\lambda = 136$ nm	$\Delta\lambda = 240$ nm	$\Delta\lambda = 240$ nm	
τ_{sc} (fs)	Expérience	130	200	370
	Théorie	145	245	350

Table 4.1: Temps d'intercorrélation τ_{sc} estimés dans les différents cas (note 31).

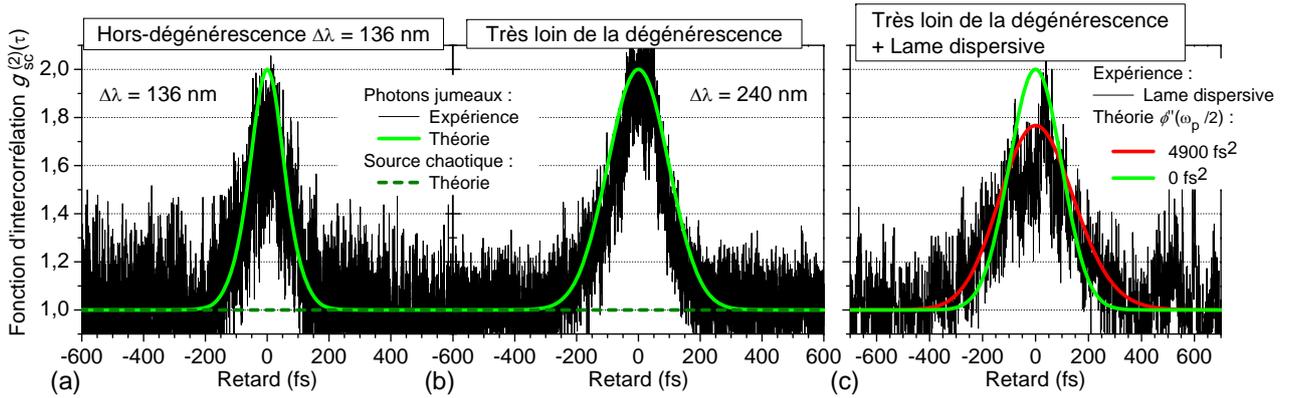


Figure 4.24: Fonction d'intercorrélation $g_{sc}^{(2)}(\tau)$ à différents accords de phase : (a) hors-dégénérescence [spectre en encart Fig. 4.19(c)] et (b) très loin de la dégenérescence [spectre en encart Fig. 4.22(a)]. (c) Influence de l'augmentation de la dispersion sur la fonction d'intercorrélation.

Enfin, il est intéressant de relier la mesure d'intercorrélation très loin de la dégenérescence et celle de la fonction d'autocorrélation précédente. Pour cela, il est possible d'introduire une fonction de corrélation équivalent du premier ordre entre signal et complémentaire $g_{sc}^{(1)}(\tau)$ tel que :

$$g_{sc}^{(2)}(\tau) = 1 + \left| g_{sc}^{(1)}(\tau) \right|^2 \quad (4.76)$$

32. Si la variation de la position d'équilibre est notable, sa mesure précise est difficile puisqu'elle nécessite une très bonne précision absolue de la platine de translation.

À partir de l'équation 4.73, il est possible de définir la fonction $g_{sc}^{(1)}(\tau)$:

$$g_{sc}^{(1)}(\tau) = \frac{\int_0^{\omega_p/2} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega) e^{i[\phi_c(\omega) + \phi_s(\omega_p - \omega)]} e^{i\omega\tau}}{\int_0^{\omega_p/2} d\omega |\nu(\omega)|^2} \quad (4.77)$$

Par ailleurs, dans le cadre de l'approche classique qui sera développée à la partie 4.7, il est possible d'exprimer le degré de cohérence du second ordre sous une forme encore plus simple :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + \frac{1}{2} \left(\left| g_{\text{chao.}}^{(1)}(\tau) \right|^2 + \left| g_{sc}^{(1)}(\tau) \right|^2 \right) (1 + \cos[(\omega_s - \omega_c)\tau]) \quad (4.78)$$

où $\left| g_{\text{chao.}}^{(1)}(\tau) \right|$ est le module de la fonction de corrélation du premier ordre d'une source chaotique que l'on assimile à celui du signal seul et également à celui du complémentaire seul³³. Il est alors possible d'ajuster la courbe expérimentale de $g^{(2)}(\tau)$ (Fig. 4.22(d)) par l'équation 4.78 et d'extraire la fonction $\left| g_{sc}^{(1)}(\tau) \right|^2$.

La comparaison des différentes fonctions obtenues est présentée sur la figure 4.25. L'accord entre l'expérience d'intercorrélation, sa modélisation et les valeurs extraites du degré de cohérence d'ordre deux est très bon ($\tau_{sc} \approx 240$ fs) et soulignons-le : **la mesure de la fonction d'intercorrélation obtenue sur ces échelles de temps très courtes à partir d'une procédure très simple est quantitative.**

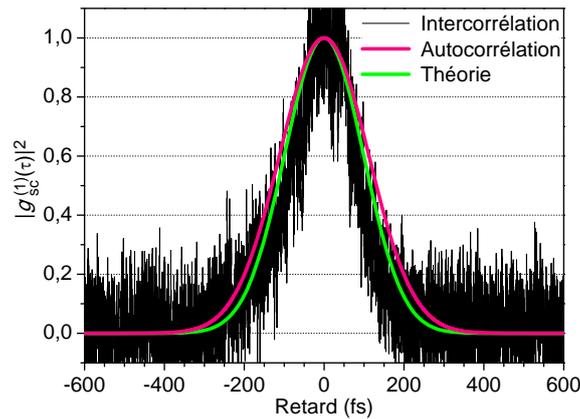


Figure 4.25: Comparaison des différentes mesures et modèles d'intercorrélation très loin de la dégénérescence : Fonctions de corrélation $\left| g_{sc}^{(1)}(\tau) \right|^2$ théorique (vert) et déduite des expériences d'intercorrélation (noir), d'autocorrélation (magenta).

33. On suppose ici que le temps cohérence des deux sources est identique.

4.7 Approche stochastique des expériences de mesure de corrélations de photons jumeaux à fort flux

Afin de compléter le modèle quantique présenté précédemment et proposer une interprétation plus intuitives des effets observés, nous présentons ici une description stochastique classique de la lumière paramétrique en s’inspirant de celle utilisée au chapitre 3. Nous avons vu au à la partie 3.3, que les corrélations des sources chaotiques pouvaient être modélisées à l’aide d’une description stochastique des champs. Partant de cette approche décrite par Loudon [Lou00], nous avons alors montré qu’il était possible de prévoir l’intégralité du signal d’interférence mesuré à deux photons.

Pour étendre ces considérations aux expériences de mesures de corrélations des photons issus d’un générateur paramétrique, nous allons dans un premier temps nous attacher à proposer une description classique du champ électrique caractéristique des photons jumeaux. Dans un second temps, nous verrons comment, à partir de quelques approximations, il est alors possible d’aboutir à une modélisation convenable illustrant bien les corrélations de photons jumeaux³⁴.

4.7.1 Établissement de l’expression des champs en sortie de cristal paramétrique

L’expression du champ électrique en sortie du cristal non linéaire repose sur plusieurs hypothèses. Elles sont basées sur deux propriétés des faisceaux de photons jumeaux et peuvent être résumées ainsi :

1. Le faisceau signal (resp. complémentaire) a un spectre large et présente, indépendamment de l’autre faisceau, les caractéristiques de celui issu d’une source chaotique présentées à la partie 3.3.2 [Lou00, Bla09]. On supposera donc que le champ signal (complémentaire) en sortie du cristal peut s’exprimer à partir du champ produit par un grand nombre ν de dipôles oscillant à une fréquence moyenne ω_s (ω_c) :

$$E_s(t) = E_{s,elem} e^{-i\omega_s t} \sum_{j=1}^{\nu} e^{-i\varphi_{s,j}(t)} \quad (4.79)$$

$$(E_c(t) = E_{c,elem} e^{-i\omega_c t} \sum_{j=1}^{\nu} e^{-i\varphi_{c,j}(t)}) \quad (4.80)$$

où $E_{s,elem}$ ($E_{c,elem} \approx E_{s,elem} \approx E_{0,elem}$) est l’amplitude du dipôle et $\varphi_{s,j}$ est l’angle de phase du champ signal (complémentaire) issu du dipôle “ j ”. Les phases $\varphi_{s,j}(t)$ et $\varphi_{s,k}(t)$ ($\varphi_{c,j}(t)$ et $\varphi_{c,k}(t)$) des champs signal (complémentaire) élémentaires issus de dipôles différents, *i.e.* $j \neq k$, ne présentent aucune corrélation.

34. Le modèle présenté dans cette partie est fondé sur des considérations classiques et semi-classiques simples. Le domaine de validité des hypothèses étant restreint, le lecteur gardera en tête que l’objectif de cette partie est d’illustrer l’origine des différents types de corrélations observées pour pouvoir les rapprocher d’une interprétation simple.

2. Les champs signal et complémentaire issus du même dipôle ' j ' sont corrélés; ils sont liés par une relation de phase avec le champ de pompe³⁵ :

$$\varphi_{s,j}(t) + \varphi_{c,j}(t) = \varphi_{pompe}(t) + \frac{\pi}{2} \approx Cte \quad (4.81)$$

où la phase de la pompe $\varphi_{pompe}(t)$ (un laser) est considérée comme constante. Les phases $\varphi_{s,j}(t)$ et $\varphi_{c,k}(t)$ des champs signal et complémentaire issus de dipôles différents n'ont aucun lien entre elles.

Le champ électrique total est alors donné par :

$$E(t) = E_s(t) + E_c(t).$$

Globalement, cela revient à considérer une source équivalente composée de deux sources chaotiques "jumelles" avec une relation de phase reliant les champs élémentaires deux à deux par paires.

4.7.2 Calcul du degré de cohérence d'ordre deux

Dans cette approche stochastique, le calcul de la fonction de corrélation d'ordre deux nécessite simplement l'évaluation de la moyenne de l'intensité $\langle I(t) \rangle = \langle E^*(t)E(t) \rangle$ et de celle du produit $\langle I(t)I(t+\tau) \rangle = \langle E^*(t)E^*(t+\tau)E(t+\tau)E(t) \rangle$. Le calcul du premier terme est direct et conduit sans surprise à :

$$\begin{aligned} \langle I(t) \rangle &= \langle (E_s^*(t) + E_c^*(t)) (E_s(t) + E_c(t)) \rangle \\ &= \langle E_s^*(t)E_s(t) \rangle + \langle E_c^*(t)E_c(t) \rangle \\ \langle I(t) \rangle &= I_s + I_c = 2I_0 \end{aligned} \quad (4.82)$$

L'évaluation du produit $\langle I(t)I(t+\tau) \rangle$ est nettement plus intéressante³⁶ :

$$\begin{aligned} \langle I(t)I(t+\tau) \rangle &= \langle (E_s^*(t) + E_c^*(t)) (E_s^*(t+\tau) + E_c^*(t+\tau)) (E_s(t+\tau) + E_c(t+\tau)) (E_s(t) + E_c(t)) \rangle \\ \langle I(t)I(t+\tau) \rangle &= g_{ss}^{(2)}(\tau)I_s^2 + g_{cc}^{(2)}(\tau)I_c^2 + 2 \langle I_s(t+\tau)I_c(t) \rangle + 2 Re \langle E_s(t)E_s^*(t+\tau)E_c(t+\tau)E_c^*(t) \rangle \end{aligned} \quad (4.83)$$

35. Cette relation de phase est celle qui permet le processus d'amplification paramétrique au détriment de celui de somme de fréquences.

36. Dans ce calcul, nous avons supposé que les produits $\langle I_s(t+\tau)I_c(t) \rangle$ et $\langle I_s(t)I_c(t+\tau) \rangle$ étaient égaux. Ceci implique plusieurs hypothèses que nous supposons vérifiées :

- les phases élémentaires corrélées des champs signal évoluent dans le temps de manière semblable – ce qui implique que les temps de cohérences relatifs à chaque champ sont égaux ;
- les différents processus d'altération du champ agissent "symétriquement" sur les deux champs (dispersion...).

où $I_s(t) = E_s^*(t)E_s(t)$ est l'intensité instantanée du signal, $g_{ss}^{(2)}(\tau)$ est son degré de cohérence d'ordre deux et $g_{cc}^{(2)}(\tau)$, celui du complémentaire. Les deux derniers termes apparaissant dans l'équation ci-dessus sont des termes croisés qui vont refléter les corrélations entre le signal et le complémentaire.

Introduction de la fonction d'intercorrélation

Commençons par calculer³⁷ le produit $\langle I_s(t + \tau)I_c(t) \rangle$ qui est, par définition, proportionnel à la fonction d'intercorrélation $g_{sc}^{(2)}(\tau)$:

$$\begin{aligned} \langle I_s(t + \tau)I_c(t) \rangle &= |E_{0,elem}|^4 \left\langle \left| \sum_{j=1}^{\nu} e^{-i\varphi_{s,j}(t+\tau)} \right|^2 \left| \sum_{j=1}^{\nu} e^{-i\varphi_{c,j}(t)} \right|^2 \right\rangle \\ &\approx \nu^2 |E_{0,elem}|^4 \left(1 + |\langle \exp[-i(\varphi_{s,j}(t + \tau) + \varphi_{c,j}(t))] \rangle|^2 \right) \\ \langle I_s(t + \tau)I_c(t) \rangle &= I_0^2 \left(1 + |\langle \exp[-i(\varphi_{s,j}(t + \tau) + \varphi_{c,j}(t))] \rangle|^2 \right) \end{aligned} \quad (4.84)$$

où $I_0 = \nu |E_{0,elem}|^2$ est l'intensité du signal et du complémentaire (Eq. 4.82). Dans cette équation, le second terme est la conséquence de la relation de phase (Eq. 4.81) et représente les coïncidences exactes entre signal et complémentaire.

L'équation 4.84 permet d'introduire la fonction d'intercorrélation $g_{sc}^{(2)}(\tau)$ qui s'écrit finalement :

$$\begin{aligned} g_{sc}^{(2)}(\tau) &= \frac{\langle I_s(t + \tau)I_c(t) \rangle}{\langle I_c(t) \rangle \langle I_s(t) \rangle} \\ g_{sc}^{(2)}(\tau) &= \left(1 + |\langle \exp[-i(\varphi_{s,j}(t + \tau) + \varphi_{c,j}(t))] \rangle|^2 \right). \end{aligned} \quad (4.85)$$

Pour se rapprocher des expressions usuelles des fonctions d'autocorrélation en intensité, on introduit la fonction $g_{sc}^{(1)}(\tau)$ telle que³⁸ :

$$\left| g_{sc}^{(1)}(\tau) \right| = |\langle \exp[-i(\varphi_{s,j}(t + \tau) + \varphi_{c,j}(t))] \rangle| \quad (4.86)$$

qui permet de récrire l'équation 4.85 sous la forme :

$$g_{sc}^{(2)}(\tau) = 1 + \left| g_{sc}^{(1)}(\tau) \right|^2. \quad (4.87)$$

37. En utilisant les simplifications faites à la partie 3.3, on négligera ici les termes proportionnels au nombre d'atomes ν devant ceux proportionnels à leur carré ν^2 .

38. Il est possible de définir la fonction $g_{sc}^{(1)}(\tau)$ directement à partir des champs signal et complémentaire :

$$g_{sc}^{(1)}(\tau) = \frac{\langle e^{i\omega_p t} E_s(t + \tau) E_c(t) \rangle}{\sqrt{\langle I_c(t) \rangle \langle I_s(t) \rangle}}$$

où le facteur $e^{i\omega_p t}$ est introduit artificiellement dans l'équation pour que l'évaluation de la valeur moyenne ne s'annule pas. Soulignons ici que cette fonction est un artifice de calcul et que sa signification est sans importance, contrairement à celle du carré de son module $\left| g_{sc}^{(1)}(\tau) \right|^2$.

On notera ici que les hypothèses utilisées pour décrire la fonction $|g_{sc}^{(1)}(\tau)|$ la bornent automatiquement :

$$0 \leq |g_{sc}^{(1)}(\tau)| \leq 1.$$

Nous nous permettrons cependant dans la suite de lui donner des valeurs supérieures à un, caractéristique des corrélations de photons jumeaux à faibles flux, et permettant de violer l'inégalité classique $|g_{sc}^{(2)}(\tau)|^2 \leq |g_{ss}^{(2)}(\tau)| |g_{cc}^{(2)}(\tau)|$ [Lou00] – valable pour sa définition quantique (Eq. 4.77).

Finalement, nous avons obtenu ici une expression simple du produit $\langle I_s(t + \tau) I_c(t) \rangle = I_0^2 g_{sc}^{(2)}(\tau)$ et mis en évidence les deux composantes essentielles de la fonction d'intercorrélation (Fig. 4.1) à savoir une composante liée aux coïncidences accidentelles "1" et une aux coïncidences exactes " $|g_{sc}^{(1)}(\tau)|^2$ ", dans l'équation 4.86.

Mise en évidence de la modulation

Afin de pouvoir obtenir l'expression complète du degré de cohérence d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$, il faut calculer le dernier terme de l'équation 4.83 :

$$\begin{aligned} & \langle E_s(t) E_s^*(t + \tau) E_c(t + \tau) E_c^*(t) \rangle \\ &= |E_{0,elem}|^4 e^{i(\omega_s - \omega_c)\tau} \left\langle \left(\sum_{j=1}^{\nu} e^{-i\varphi_{s,j}(t)} \right) \left(\sum_{j=1}^{\nu} e^{i\varphi_{s,j}(t+\tau)} \right) \left(\sum_{j=1}^{\nu} e^{-i\varphi_{c,j}(t+\tau)} \right) \left(\sum_{j=1}^{\nu} e^{i\varphi_{c,j}(t)} \right) \right\rangle \\ &\approx \nu^2 |E_{0,elem}|^4 e^{i(\omega_s - \omega_c)\tau} \langle \exp[-i(\varphi_{s,j}(t) - \varphi_{s,j}(t + \tau))] \rangle \langle \exp[-i(\varphi_{c,j}(t + \tau) - \varphi_{c,j}(t))] \rangle \\ &\quad + \nu^2 |E_{0,elem}|^4 e^{i(\omega_s - \omega_c)\tau} \langle \exp[-i(\varphi_{s,j}(t) + \varphi_{c,j}(t + \tau))] \rangle \langle \exp[-i(\varphi_{s,j}(t + \tau) + \varphi_{c,j}(t))] \rangle \\ &= I_0^2 e^{i(\omega_s - \omega_c)\tau} \left(|g_{ss}^{(1)}(\tau)| |g_{cc}^{(1)}(\tau)| + |g_{sc}^{(1)}(\tau)|^2 \right) \end{aligned}$$

où $g_{ss}^{(1)}(\tau)$ est le degré de cohérence du premier ordre défini à la page 73 relatif au signal seul. Finalement, on obtient l'expression du dernier terme de l'équation 4.83 suivante :

$$Re \langle E_s(t) E_s^*(t + \tau) E_c(t + \tau) E_c^*(t) \rangle = I_0^2 \left(|g_{ss}^{(1)}(\tau)| |g_{cc}^{(1)}(\tau)| + |g_{sc}^{(1)}(\tau)|^2 \right) \cos[(\omega_s - \omega_c)\tau] \quad (4.88)$$

soulignant clairement la modulation à la fréquence $\omega_s - \omega_c$ observée dans les expériences du chapitre 4.

Expression du degré de cohérence d'ordre deux d'une source de photons jumeaux

En injectant les équations 4.84, 4.85 et 4.88 dans l'équation 4.83 initiale, l'expression de la fonction d'autocorrélation $g^{(2)}(\tau)$ des photons jumeaux s'obtient facilement :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{1}{4} \left(g_{ss}^{(2)}(\tau) + g_{cc}^{(2)}(\tau) + 2g_{sc}^{(2)}(\tau) \right) + \frac{\cos[(\omega_s - \omega_c)\tau]}{2} \left(|g_{ss}^{(1)}(\tau)| |g_{cc}^{(1)}(\tau)| + |g_{sc}^{(1)}(\tau)|^2 \right) \quad (4.89)$$

4.7 Approche stochastique des expériences de mesure de corrélations de photons jumeaux à fort flux

L'équation ci-dessus s'écrit sous une forme simplifiée si on pose $|g_{ss}^{(1)}(\tau)| = |g_{cc}^{(1)}(\tau)| = |g_{\text{chao.}}^{(1)}(\tau)|$ (voir note 36 p.132) :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + \frac{|g_{\text{chao.}}^{(1)}(\tau)|^2}{2} (1 + \cos[(\omega_s - \omega_c)\tau]) + \frac{|g_{sc}^{(1)}(\tau)|^2}{2} (1 + \cos[(\omega_s - \omega_c)\tau]) \quad (4.90)$$

On voit ainsi apparaître clairement trois types de contribution associées aux trois termes ci-dessus :

1. une partie constante, le premier terme "1", valeur du degré de cohérence d'ordre deux pour les retards très grands³⁹ quand il n'y a plus de corrélation.
2. une partie due aux coïncidences chaotiques et accidentelles (Fig. 4.1) : c'est le *bunching* classique de photons.
3. une partie due aux coïncidences exactes entre les photons d'une même paire.

La modulation impactant les contributions chaotiques et exactes, observée expérimentalement et connue sous le nom de *quantum beating*, peut être expliquée par l'indiscernabilité des chemins empruntés par chacun des photons [Ou88, VG07].

Finalement, on notera que la valeur en $\tau=0$ est donnée par :

$$g^{(2)}(0) = 2 + |g_{sc}^{(1)}(0)|^2 \quad (4.91)$$

qui est bien supérieure à deux. À fort flux $|g_{sc}^{(1)}(0)|^2 \approx 1$ si l'on compense les phénomènes de dispersion et l'on retrouve la valeur de $g^{(2)}(0) = 3$ attendue.

Mise en perspective avec la modélisation quantique de la partie 4.4

Il est possible d'exprimer les fonctions de corrélation modélisées à la partie 4.4 à l'aide de la description stochastique présentée ci-dessus. Les parties incohérentes (Eq. 4.40) et cohérentes (Eq. 4.41) de la fonction de corrélation du second ordre s'écrivent alors :

$$g_{\text{Inc.}}^{(2)}(\tau) = 1 + \frac{|g_{\text{chao.}}^{(1)}(\tau)|^2}{2} (1 + \cos[(\omega_s - \omega_c)\tau]) \quad (4.92)$$

$$g_{\text{Coh.}}^{(2)}(\tau) = \frac{|g_{sc}^{(1)}(\tau)|^2}{2} (1 + \cos[(\omega_s - \omega_c)\tau]). \quad (4.93)$$

L'approche stochastique permet donc d'appréhender le comportement de notre source de photons jumeaux à l'aide d'arguments simples, basés sur l'existence de paires de photons et sur le comportement chaotique des sous-faisceaux considérés séparément. Nous allons désormais étudier l'interférogramme d'autocorrélation à deux photons dans son intégralité.

39. Ceci est vrai par définition uniquement pour la mesure de corrélation de source continue ce qui est bien notre cas.

4.7.3 Modélisation de l'interférogramme d'autocorrélation à deux photons

L'expression de l'interférogramme est obtenue à partir de l'équation 4.60 :

$$\frac{S_2(\tau)}{S_2^0} = 1 + 2G^{(2)}(\tau) + 4 \operatorname{Re} [F_1(\tau)] + \operatorname{Re} [F_2(\tau)] \quad (4.94)$$

où :

$$\begin{aligned} S_2^0 &= 2 \langle E^*(t)E^*(t)E(t)E(t) \rangle = 2 \langle I^2(t) \rangle & \left| \begin{aligned} F_1(\tau) &= \frac{1}{2} \frac{\langle (I(t)+I(t+\tau))E^*(t)E(t+\tau) \rangle}{\langle I^2(t) \rangle} \\ F_2(\tau) &= \frac{\langle E^*(t)E^*(t+\tau)E(t+\tau)E(t) \rangle}{\langle I^2(t) \rangle} \end{aligned} \right. \\ G^{(2)}(\tau) &= \frac{\langle E^*(t)E^*(t+\tau)E(t+\tau)E(t) \rangle}{\langle I^2(t) \rangle} \end{aligned}$$

En utilisant les hypothèses utilisées au chapitre 3 et celles ci-dessus, on obtient finalement des expressions simples pour ces différentes fonctions :

$$S_2^0 = 8I_0^2 g^{(2)}(0) \quad (4.95)$$

$$G^{(2)}(\tau) = \frac{g^{(2)}(\tau)}{g^{(2)}(0)} \quad (4.96)$$

$$\operatorname{Re} [F_1(\tau)] = \frac{1}{2g^{(2)}(0)} \left[\begin{aligned} & \left(2 |g_{ss}^{(1)}(\tau)| + |g_{sc}^{(1)}(0)| |g_{sc}^{(1)}(\tau)| \right) \cos \omega_s \tau \\ & + \left(2 |g_{cc}^{(1)}(\tau)| + |g_{sc}^{(1)}(0)| |g_{sc}^{(1)}(\tau)| \right) \cos \omega_c \tau \end{aligned} \right] \quad (4.97)$$

$$\operatorname{Re} [F_2(\tau)] = \frac{1}{2g^{(2)}(0)} \left[\begin{aligned} & |g_{ss}^{(1)}(\tau)|^2 \cos 2\omega_s \tau + |g_{cc}^{(1)}(\tau)|^2 \cos 2\omega_c \tau \\ & + 2 \left(|g_{ss}^{(1)}(\tau)| |g_{cc}^{(1)}(\tau)| + |g_{sc}^{(1)}(0)|^2 \right) \cos \omega_p \tau \end{aligned} \right] \quad (4.98)$$

où $\omega_p = \omega_s + \omega_c$ est la fréquence de la pompe. On remarquera que la valeur en $\tau = 0$ est toujours de :

$$\frac{S_2(0)}{S_2^0} = 8$$

tandis que, pour des valeurs du retard τ élevées, le signal de l'interférogramme ne se stabilise pas :

$$\frac{S_2(\tau \gg \tau_c)}{S_2^0} = 1 + 2 \frac{1}{g^{(2)}(0)} + \frac{|g_{sc}^{(1)}(0)|^2}{g^{(2)}(0)} \cos \omega_p \tau.$$

On retrouve bien, quel que soit le retard τ , la composante non nulle à la fréquence de pompe $\omega_p = \omega_s + \omega_c$ que nous avons observée expérimentalement au chapitre 4 lorsque les phénomènes de dispersion sont correctement compensés.

Les interférogrammes obtenus à l'aide de ce modèle stochastique sont présentés sur la figure 4.26. Les différentes fonctions de corrélation ont été simplement modélisées par des fonctions gaussiennes :

$$|g_{sc}^{(1)}(\tau)| = |g_{sc}^{(1)}(0)| e^{-\frac{\pi}{2} \left(\frac{\tau}{\tau_{sc}} \right)^2} \quad (4.99)$$

4.7 Approche stochastique des expériences de mesure de corrélations de photons jumeaux à fort flux

$$|g_{\text{chao.}}^{(1)}(\tau)| = e^{-\frac{\pi}{2} \left(\frac{\tau}{\tau_{\text{chao.}}} \right)^2} \quad (4.100)$$

où τ_{sc} est le temps de cohérence des photons jumeaux et $\tau_{\text{chao.}}$ le temps de cohérence du signal et du complémentaire – séparément. Pour pouvoir être comparés aux interférogrammes présentés au à la partie 4.5, ces différents temps de cohérence ont été arbitrairement fixés à la même valeur $\tau_c = 200$ fs. Les figures 4.26(a) et 4.26(b) correspondent aux conditions expérimentales reportées au long au long de ce chapitre.

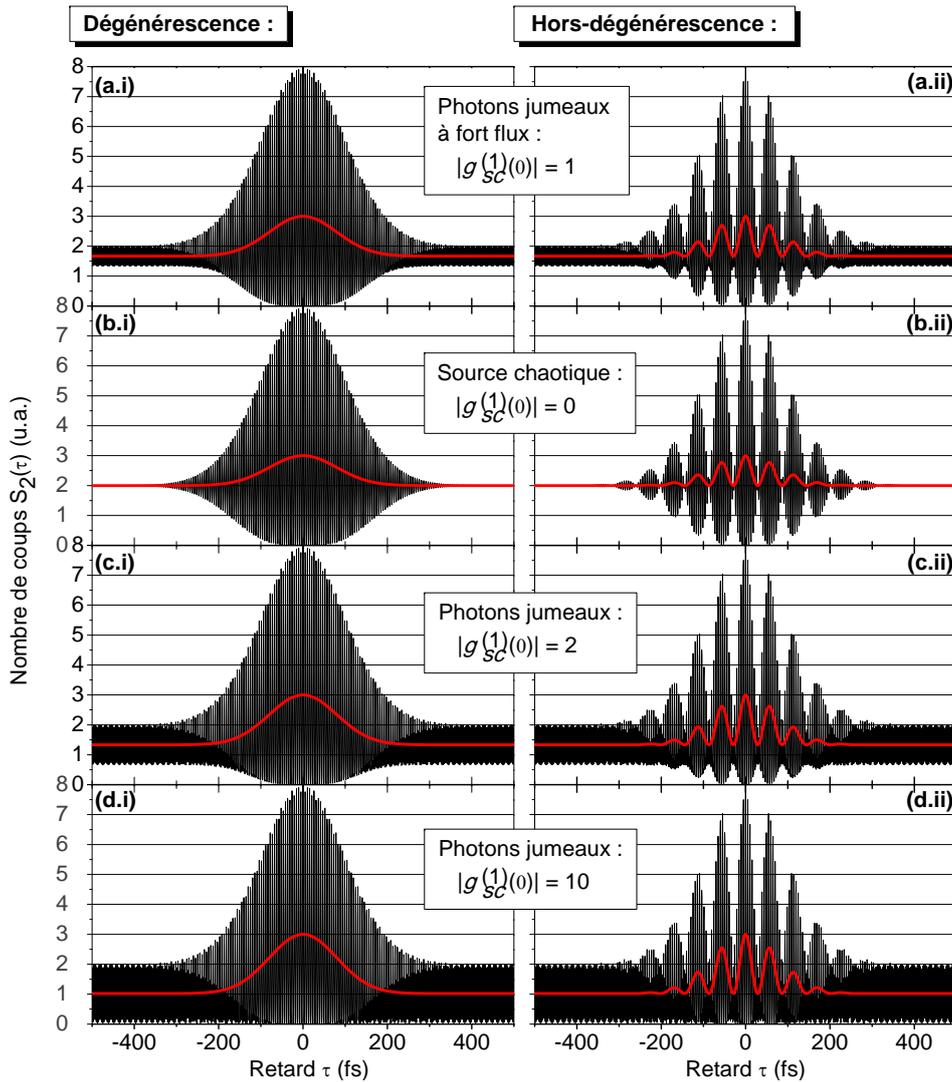


Figure 4.26: Modélisation basée sur l'approche stochastique des champs des interférogrammes d'autocorrélation (i) à la dégénérescence ($\lambda = 1,56 \mu\text{m}$) et (ii) hors de la dégénérescence ($\lambda_s = 1,49 \mu\text{m}$; $\lambda_c = 1,63 \mu\text{m}$) pour différentes valeurs de $|g_{sc}^{(1)}(0)|$. (temps de cohérence $\tau_c = 200$ fs)

On retrouve bien dans cette modélisation les principales caractéristiques des interférogrammes expérimentaux (allures générales, valeurs extrêmes, modulations, oscillations). Les figures 4.26(c)

et 4.26(d) correspondent aux résultats prévus si la valeur de $|g_{sc}^{(1)}(0)|$ est fixée supérieure à un. On observe alors une nette augmentation de l'amplitude des oscillations à ω_p qui constituerait expérimentalement une observation très encourageante lors de la mesure.

4.7.4 Modélisation des expériences d'*intercorrélation* à deux photons

L'expression du champ électrique total $E_{\text{Inter}}(t, \tau)$ arrivant sur le détecteur à deux photons dans les expériences d'intercorrélations réalisées à la partie 4.6 est nettement plus simple que celle du champ issu de l'interféromètre de Michelson lors des expériences d'autocorrélation en intensité : $E_{\text{Inter}}(t, \tau) = E_s(t + \tau) + E_c(t)$. La réponse du détecteur est alors proportionnelle à :

$$\begin{aligned} S_{2,\text{Inter}}(\tau) &= \langle E_{\text{Inter}}^*(t, \tau) E_{\text{Inter}}^*(t, \tau) E_{\text{Inter}}(t, \tau) E_{\text{Inter}}(t, \tau) \rangle \\ &= g_{ss}^{(2)}(0) I_s^2 + g_{cc}^{(2)}(0) I_c^2 + 4g_{sc}^{(2)}(\tau) I_s I_c. \end{aligned} \quad (4.101)$$

En utilisant les conventions précédentes, on obtient finalement :

$$\frac{S_{2,\text{Inter}}(\tau)}{S_{2,\text{Inter}}^0} = 1 + g_{sc}^{(2)}(\tau) = 2 + |g_{sc}^{(1)}(\tau)|^2 \quad (4.102)$$

qui donne bien la valeur attendue en $\tau = 0$ c'est-à-dire $\frac{S_{2,\text{Inter}}(0)}{S_{2,\text{Inter}}^0} = 3$.

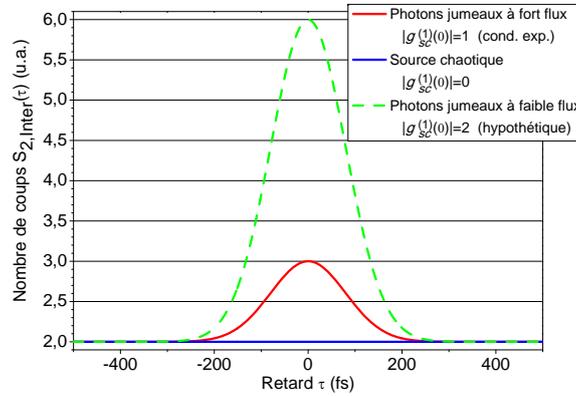


Figure 4.27: Modélisation basée sur l'approche stochastique des champs de la mesure d'intercorrélation $\frac{S_{2,\text{Inter}}(\tau)}{S_{2,\text{Inter}}^0}$ hors de la dégénérescence ($\lambda_s = 1,49 \mu\text{m}$; $\lambda_c = 1,63 \mu\text{m}$) pour différentes valeurs de $|g_{sc}^{(1)}(0)|$. (temps de cohérence $\tau_c = 200$ fs)

Les résultats de la modélisation du signal d'intercorrélation à deux photons sont présentés sur la figure 4.27 pour différentes valeurs de $|g_{sc}^{(1)}(0)|$ ⁴⁰. La courbe rouge, basée sur la valeur expérimentale et conforme à la valeur théorique en fort flux de $|g_{sc}^{(1)}(0)| = 1$, a la même allure que les courbes

40. L'évaluation de la fonction $|g_{sc}^{(1)}(\tau)|$ est basée sur l'expression présentée à l'équation 4.99 avec un temps de cohérence $\tau_{sc} = \tau_c = 200$ fs.

d'intercorrélation théorique et expérimentale présentées au chapitre 4. Ceci confirme la “puissance” de ce modèle stochastique simple. On notera enfin l'allure de la courbe (verte) qui illustre bien le fait que la mesure à deux photons à l'aide de cet interféromètre conduit quantitativement et quasi-directement à cette grandeur physique.

Synthèse

Nous avons montré au cours de ce chapitre l'intérêt de pouvoir compenser et contrôler la dispersion pour caractériser le signal d'autocorrélation d'une source paramétrique. La maîtrise de ce paramètre permet de distinguer les coïncidences exactes des photons jumeaux (corrélation cohérente) des autres coïncidences accidentelles (corrélation incohérente). Suite à la modélisation complète du signal d'autocorrélation, il a été possible de montrer que les coïncidences accidentelles n'étaient pas sensibles à la dispersion contrairement aux coïncidences exactes. Lorsque les phénomènes de dispersion sont importants, la partie cohérente de la fonction d'autocorrélation est “étalée” et seule la partie incohérente, semblable à celle d'une source chaotique, est révélée par la mesure. En compensant convenablement la dispersion, la contribution cohérente se traduit par une exaltation du signal d'autocorrélation et permet de révéler le caractère particulier des états à deux photons produit par la source. Suite à la réalisation de ces expériences et de l'excellent accord avec le modèle théorique développé, la mesure directe de la fonction d'intercorrélation a été réalisée grâce à au développement d'un nouvel interféromètre à deux photons qui a permis de souligner uniquement les coïncidences entre les photons signal et complémentaire, et a permis de distinguer de manière quantitative les coïncidences exactes des coïncidences accidentelles.

Conclusion et perspectives

Tout au long de ce manuscrit nous avons montré comment l'utilisation de l'absorption à deux photons dans un détecteur semiconducteur permettait de caractériser les corrélations de photons issus de différents types de sources, cohérentes, chaotiques ou paramétriques. Nous avons expliqué au chapitre 1, à travers l'étude de l'absorption à deux photons comme processus non linéaire d'ordre trois, les caractéristiques uniques de ce processus telles que la quasi-instantanéité, l'absence de condition d'accord de phase et donc la très grande bande passante. L'étude de ce chapitre a par ailleurs montré la maturité des technologies semiconducteurs à obtenir un signal d'absorption dans différents semiconducteurs, en particulier ceux aux transitions optiques directes comme dans l'InGaAs ou le GaAs, jusqu'à de très faibles flux continus tout en conservant une bande passante importante.

Les limites de la description du comptage à deux photons par l'optique non linéaire classique exposées dans ce premier chapitre ont été dépassées au chapitre 2. Pour pouvoir rendre compte des distributions statistiques mesurées, nous avons restreint notre étude théorique aux détecteurs fonctionnant en régime de comptage de photons. Dans un premier temps, après avoir brièvement rappelé le parallèle entre le formalisme de l'approche classique – les grandeurs mesurées au chapitre 1 – et semi-classique, nous avons pu mettre en évidence les limites de l'approche phénoménologique de la détection à deux photons conduisant à une statistique poissonnienne. Partant de ce constat d'un “vide” dans la théorie, deux approches quantiques différentes ont été développées. La première a consisté en la proposition de différents opérateurs de comptage à deux photons aux limites d'une absorption à deux photons idéale et d'une, plus réaliste, aux très faibles rendements. Si l'opérateur proposé aux très faibles rendements a permis de rendre compte des distributions observées, sa formulation ne repose que sur la simple extension du formalisme de détection à un photon. Pour justifier plus rigoureusement de la forme de cet opérateur, une seconde approche a été proposée. En s'inspirant de la démarche permettant l'établissement de la théorie quantique de la détection – linéaire – à un photon, les bases d'une description quantique du comptage à deux photons ont été esquissées. Bien qu'il ne s'agisse que de la première brique à l'établissement d'une théorie quantique complète, les premiers résultats obtenus sont très encourageants et permettent de retrouver l'ensemble des résultats de l'approche classique bien connue.

Au chapitre 3, nous avons démontré expérimentalement le phénomène de *bunching* de photons issus d'une source chaotique. Pour cela, nous avons dans un premier temps développé un interféromètre à deux photons, analogue à un interféromètre de Michelson suivi d'un détecteur à deux photons

permettant la détection de signaux compris entre 1,1 μm et 1,7 μm . Cette très grande bande passante nous a alors permis d'obtenir les interférogrammes d'autocorrélation de sources cohérentes mais surtout de sources chaotiques telles qu'une source d'émission spontanée amplifiée ou une lampe halogène, dont le spectre est proche de celui d'un corps noir. La modélisation du signal d'interférence par une approche ondulatoire nous a permis de montrer que, en plus de l'observation d'un signal d'interférence en champ bien connu, permettant de remonter aux propriétés spectrales de la source, notre dispositif permettait la mesure de fonctions d'autocorrélation $g^{(2)}(\tau)$ à des échelles de temps extrêmement courtes avec une excellente précision. Nous avons ainsi, pour la première fois, démontré expérimentalement le *bunching* de photons – *i.e.* l'arrivée de photons par paquet – pour des sources classiques très larges spectralement. Notons que ce phénomène a été prévu depuis longtemps par la théorie et souligne le caractère non markovien des sources chaotiques.

Après la caractérisation de sources classiques, nous nous sommes attelés au cours du chapitre 4 à la caractérisation des corrélations de sources paramétriques à la dégénérescence et hors de la dégénérescence. Pour cela, nous avons développé une source de photons jumeaux basée sur un cristal de niobate de lithium périodiquement retourné pompé par un laser centré à 780 nm délivrant des impulsions de 10 picosecondes. Suite à la caractérisation des processus d'absorption à deux photons d'une telle source, la mesure des interférogrammes nous a permis de mettre en lumière les coïncidences accidentelles, c'est-à-dire les coïncidences entre les photons n'appartenant pas à une même paire de photons, dont la fonction d'autocorrélation est semblable à celle obtenue avec une source chaotique. En outre, la mesure hors de la dégénérescence nous a permis de souligner que le caractère interférométrique de notre technique ne devait pas être sous-estimé puisqu'il permettait de mettre en évidence les modulations à la fréquence de l'écart entre signal et complémentaire. La modélisation de notre dispositif, basée sur une approche quantique, nous a permis de mettre en évidence l'importance des pertes mais surtout celle des phénomènes de dispersion au sein de notre montage et son influence sur les coïncidences exactes, c'est-à-dire celles des photons d'une même paire. Partant de l'analogie avec les sources impulsionnelles ultra-brèves sur laquelle débouchait notre modélisation, il a alors été possible d'utiliser les techniques usuelles de compression d'impulsions à l'aide d'une paire de prismes pour assurer la synchronisation des photons signal et complémentaire au moment de leur arrivée sur le détecteur à deux photons. À la partie 4.5, la mise en place de ces techniques a permis l'observation de l'exaltation significative de la fonction d'autocorrélation due à l'arrivée simultanée des photons d'une même paire. Soulignons ici qu'il ne s'agit pas juste de la mise en évidence du phénomène mais que cette exaltation a pu être mesurée de façon quantitative et est en parfait accord avec le modèle développé. Suite à ces résultats, un nouvel interféromètre a été développé à la partie 4.6, reposant sur une architecture dérivée de celle de l'interféromètre de Mach-Zehnder, permettant la mesure directe de la fonction d'intercorrélacion entre signal et complémentaire issu de la source fonctionnant hors dégénérescence. Pour cela signal et complémentaire sont séparés en entrée d'interféromètre puis recombinaés en sortie après avoir parcouru un chemin optique différent. Les résultats confirment les prévisions théoriques en révélant sans aucune ambiguïté une exaltation de la réponse à deux photons lorsque le retard entre les deux voies est nul, c'est-à-dire lorsque les photons signal et complémentaire

d'une même paire arrivent au même instant sur le détecteur. Là encore, soulignons que la mesure est quantitative : c'est la fonction d'intercorrélacion d'une source de photons jumeaux. Enfin, en combinant les résultats des mesures réalisées avec les deux interféromètres à deux photons, nous avons pu mettre en évidence le fait que nous étions à la limite de la description classique. Nul doute qu'une légère amélioration du rendement d'absorption à deux photons permettra d'ici peu de dépasser cette limite.

Au cours de ce travail, nous avons exploré les propriétés de corrélacions de différentes sources spécifiques à l'aide d'un photomultiplicateur équipé d'une photocathode en GaAs. Différentes pistes sont envisageables pour prolonger ce travail.

Le développement de détecteur plus adapté à l'absorption à deux photons à l'aide de structures plasmoniques, bien qu'initié au cours de ces travaux de thèse avec une proposition de brevet et l'établissement d'une collaboration avec le LPN, n'est pas encore assez abouti et doit être poursuivi. L'objectif principal est l'abaissement du seuil de détectivité à température ambiante qui permettrait la caractérisation des sources paramétriques en régime de faible gain dont la valeur des fonctions d'autocorrélacion à retard nul devrait tendre vers l'infini.

Partant du modèle quantique développé pour la caractérisation des sources paramétriques, l'étude des sources antibunchées ou à un photon est maintenant concrètement envisageable. Avant d'entreprendre l'étude de sources de photons uniques dont les flux sont encore insuffisants comparativement au seuil de détection actuel, les premières étapes d'un tel travail consistent à caractériser les propriétés de sources antibunchées plus courantes comme celles à la base des expériences de miroirs non linéaires qui permettent d'atteindre déjà de bons rendements de compression.

D'autres sources dont nous avons commencé l'étude à la partie 3.5.2, les sources supercontinuum, sont actuellement en cours de développement à l'Onera, cette fois à de hautes cadences, ce qui permettra de dépasser les limitations dues au faible taux de répétition. Les travaux théoriques de modélisation des corrélacions de telles sources sont à l'heure actuelle très peu nombreux, pour ne pas dire que le terrain est vierge, et la tâche est ardue.

Enfin, malgré la complexité (d'alignement) du dernier type d'interféromètre que nous avons développé, son principe et son architecture semblent particulièrement adaptés à l'étude des corrélacions spatiales de photons.

La poursuite de ces différentes études continuera sans nul doute à révéler les potentialités des détecteurs à deux photons et de leurs applications en interférométrie.

Annexes

Annexe A

Compléments du chapitre 2

A.1 Différents points de vues sur l'absorption à un photon

L'objectif de cette partie est de rappeler brièvement les différentes approches corpusculaires, semi-classique et quantique de la détection à un photon.

A.1.1 Approche corpusculaire

Dans le cadre de cette approche simpliste, la lumière est constituée d'un flot de photons répartis sur une longueur L . En divisant ce segment en N sous parties équivalentes, la probabilité de trouver deux photons ou plus dans un sous-segment devient négligeable si N est suffisamment grand. Cette approche ne se prête pas à la description de l'absorption à deux photons.

La probabilité P_m de trouver m photons uniformément répartis sur la distance L contenant les N sous-segments avec un flux moyen de photon de $\bar{m} = \phi \frac{L}{c}$ est donnée par la loi de Bernoulli [Fox06] :

$$P_m = \frac{N!}{m!(N-m)!} \left(\frac{m!}{N!}\right)^m \left(1 - \frac{m!}{N!}\right)^{N-m} \xrightarrow{N \rightarrow \infty} \frac{\bar{m}^m}{m!} e^{-\bar{m}}. \quad (\text{A.1})$$

A.1.2 Approche semi-classique

L'approche semi-classique considère les transitions électroniques par le biais de la règle d'or de Fermi qui donne la probabilité de l'émission d'un photoélectron pendant l'intervalle de temps dt :

$$p(t)dt = \xi \bar{I}(t)dt. \quad (\text{A.2})$$

Pour un intervalle de temps dt assez court, cette probabilité ne peut prendre que les valeurs 0 ou 1. Tout comme le précédent, ce modèle ne s'applique pas directement à l'absorption à deux photons.

En supposant que les évènements se produisant à des instants différents sont indépendants, la probabilité de détecter un photon entre les instants t et $t + dt$ est donnée par [Lou00] :

$$P_m(T) = \frac{[\xi \bar{I}(T)T]^m}{m!} e^{-\xi \bar{I}(T)T} \quad (\text{A.3})$$

où $\bar{I}(T) = \frac{1}{T} \int_0^T \bar{I}(t) dt$. Le résultat obtenu est semblable à celui de l'équation A.1.

Dans le cas des fluctuations statistiques de la lumière, l'intégration de $\bar{I}(t)$ sur l'ensemble des valeurs conduit à la formule de Mandel [Man95] :

$$P_m^{(2)}(T) = \left\langle \frac{(\xi \bar{I}(T)T)^m}{m!} e^{-\xi \bar{I}(T)T} \right\rangle \quad (\text{A.4})$$

où $\langle \rangle$ désigne la moyenne sur les fluctuations statistiques de la lumière.

A.1.3 Approche quantique

L'état correspondant à une source de lumière poissonnienne est l'état cohérent [Lou00] :

$$|\alpha\rangle = \hat{D}(\alpha) |0\rangle \quad (\text{A.5})$$

où $\hat{D}(\alpha)$ est l'opérateur de déplacement, permettant la description de l'état cohérent à partir de celui du vide :

$$\hat{D}(\alpha) = e^{\alpha \hat{a}^\dagger - \alpha^* \hat{a}}. \quad (\text{A.6})$$

La probabilité de mesurer m photons dans un état cohérent est alors de :

$$P_m = \langle m | \alpha \rangle = \frac{\bar{m}^m}{m!} e^{-\bar{m}} \quad (\text{A.7})$$

où $\bar{m} = \langle \alpha | \hat{n} | \alpha \rangle$. Là encore, le résultat obtenu est semblable à celui de l'équation A.1. Enfin la probabilité de mesurer m photons dans un détecteur imparfait, d'efficacité quantique ξ , durant l'intervalle de temps T est donnée dans n'importe quel état du champ par [Kel64, Lou00] :

$$P_m(T) = \left\langle : \frac{(\xi \hat{a}^\dagger \hat{a} T)^m}{m!} e^{-\xi \hat{a}^\dagger \hat{a} T} : \right\rangle \quad (\text{A.8})$$

où $\frac{(\xi \hat{a}^\dagger \hat{a} T)^m}{m!} e^{-\xi \hat{a}^\dagger \hat{a} T}$ est l'opérateur de Kelley-Kleiner-Mollow [Kel64, Mol68a], $\langle \rangle$ représente l'espérance quantique et $::$ signifie que les opérateurs sont pris dans l'ordre normal¹. L'expression ainsi obtenue est bien en accord avec la formule de Mandel à l'équation A.4.

1. L'ordre normal désigne simplement le fait de prendre les opérateurs création à gauche et destruction à droite lors des différents calculs. L'intérêt de cette notation se retrouve lorsque l'on compresse les expressions $\hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger = \hat{n}$ ce qui permet d'écrire $\langle : \hat{n}^2 : \rangle = \langle \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a} \rangle$.

Une telle cohérence entre les trois approches est le résultat d'un défi relevé au cours des années 60 par l'optique quantique, un travail analogue reste à faire pour l'absorption à deux photons (pas ici!).

A.2 Approche corpusculaire poissonnienne de la détection à deux photons

Le point de vue le plus simpliste consiste à considérer que l'absorption à deux photons ne se fait que lorsque deux photons arrivent dans un délai inférieur à la durée de vie τ de la transition virtuelle sur le détecteur ce qui revient à dire qu'il faut un flux suffisant de lumière pour que cette absorption ait lieu. En suivant ce raisonnement il va de soi que l'on va compter un coup si au moins deux photons arrivent pendant le temps τ .

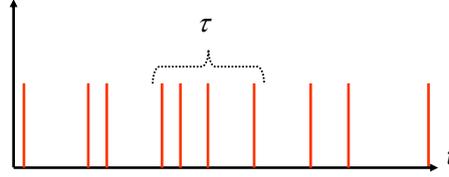


Figure A.1: Arrivée aléatoire des photons en fonction du temps.

Soit $N(t)$ un processus de Poisson de paramètre ν et $T_1 < T_2 \dots < T_i < \dots$ la suite des temps d'arrivée des événements poissonniens. Il vient que les variables aléatoires T_i suivent une loi gamma de paramètres i et ν . Soit $W_i = T_i - T_{i-1}$ la suite des durées entre deux événements consécutifs. Les variables aléatoires W_i sont des variables indépendantes et ont pour distribution une loi exponentielle de moyenne $\frac{1}{\nu}$. En s'intéressant à l'événement $\{T_i - T_{i-1} < \tau\}$, on construit la variable :

$$X_i < 1_{T_i - T_{i-1} < \tau} \quad (\text{A.9})$$

qui sera égale à 1 si deux photons arrivent dans un délai inférieur à τ . On cherche à calculer le nombre moyen de ces événements sur un intervalle de temps $[0, T]$. On construit donc la variable aléatoire

$$X_T = \sum_{i=1}^{N(T)} X_i \quad (\text{A.10})$$

d'espérance :

$$\overline{X_T} = \overline{\sum_{i=1}^{N(T)} X_i} = \sum_{k \geq 0} \overline{\left(\sum_{i=1}^k X_i \mid N(t) = k \right)} P(N(T) = k). \quad (\text{A.11})$$

Puisque les X_i suivent tous la même loi exponentielle :

$$\overline{X_T} = \sum_{k \geq 0} k \overline{X_i} \frac{(\nu T)^k}{k!} e^{-\nu T} \quad \text{avec} \quad \overline{X_i} = 1 - e^{-\nu \tau} \quad (\text{A.12})$$

soit un nombre moyen de paires de photons distants de moins de τ :

$$\begin{aligned}\overline{X_T} &= e^{-\nu T} (1 - e^{-\nu\tau}) \sum_{k \geq 0} k \frac{(\nu T)^k}{k!} = \nu T e^{-\nu T} (1 - e^{-\nu\tau}) \sum_{k \geq 1} \frac{(\nu T)^{k-1}}{(k-1)!} \\ \overline{X_T} &= \nu T (1 - e^{-\nu\tau}).\end{aligned}\tag{A.13}$$

La dépendance quadratique de la détection n'est alors valable que pour les faibles flux, *i.e.* $\overline{X_T} \xrightarrow{\nu\tau \rightarrow 0} \nu^2 T \tau$.

Pour poursuivre le raisonnement, il faut prendre en compte que le détecteur fonctionne en mode Geiger. Ainsi, il va de soi que l'on va compter un coup si au moins deux photons arrivent pendant le temps τ . Il faut néanmoins prendre en compte les photons supplémentaires qui arriveraient pendant ce temps τ . Nous faisons l'hypothèse heuristique, fondée sur la nature des photons, que dans un cluster de n photons distants de moins de τ , il faut compter 1 fois la seconde paire, 2 fois la troisième, ... $n-1$ fois la n -ème soit ² :

$$\frac{n(n-1)}{2} \text{ fois,}$$

d'où la nécessité de prendre en compte toutes les occurrences dans le calcul. Soit $M_i(\tau)$ le nombre d'occurrences de $t_i - t_{i-1} < \tau$, sommer sur toutes les occurrences revient à mesurer :

$$M(\tau) = \sum_{i=1}^{N(T)} M_i(\tau)\tag{A.14}$$

où $N(T)$ est un processus de poisson de paramètre ν sur l'intervalle $[0, T]$:

$$\begin{aligned}\overline{M(\tau)} &= \overline{\sum_{i=1}^{N(T)} M_i(\tau)} = \sum_{k=1}^{\infty} p(N(T) = k) \overline{\sum_{i=1}^k M_i(\tau)} \\ &= \sum_{k=1}^{\infty} p(N(T) = k) k \overline{M_i(\tau)} = \overline{M_i(\tau)} \sum_{k=1}^{\infty} p(N(T) = k) k \\ &= \overline{M_i(\tau)} \sum_{k=1}^{\infty} k \frac{(\nu T)^k}{k!} e^{-\nu T} \text{ avec } \overline{M_i(\tau)} = \sum_j j \times \text{nombre d'évènements pendant } \tau \\ &= \nu T \sum_i i \frac{(\nu\tau)^i}{i!} e^{-\nu\tau} \\ \overline{M(\tau)} &= \nu^2 \tau T.\end{aligned}\tag{A.15}$$

On retrouve bien qu'une loi quadratique décrit la variation du nombre de coups en fonction de la puissance reçue par le détecteur.

2. La prise en compte de l'ensemble des permutations relève en fait de la nature bosonique de la lumière.

Annexe B

Développement d'une source de fluorescence paramétrique continue

B.1 Modélisation d'une source paramétrique en guide d'onde

Dans le cadre des expériences, il s'avère utile de pouvoir prévoir le rendement de la source de photons jumeaux en fonction de la puissance du faisceau de pompe. On utilise pour cela un modèle simple de simulation dans un guide d'onde rectangulaire dans un cristal de niobate de lithium polarisé périodiquement (PPLN) reposant sur une approche ondulatoire. L'intérêt d'un tel matériau par rapport à un matériau massif réside en deux points :

- L'inversion périodique de domaine¹ permet de maintenir un pseudo accord de phase, modélisé comme un écart à l'accord de phase par l'utilisation d'un coefficient non linéaire effectif $d_{\text{eff}} = \frac{2}{\pi}d_{33}$ (Fig. B.1).
- La configuration guide d'onde permet de confiner l'onde dans le cristal et ainsi de maximiser les interactions entre les trois ondes : pompe, signal et complémentaire.

Le modèle représenté ci-dessous reprend celui développé par Baldi *et al.* [Bal95, Bal96] et utilisé dans le mémoire de thèse de Tanzilli [Tan02].

B.1.1 Équations des modes couplés en théorie classique

Les interactions à trois ondes au sein du cristal sont décrites par un système d'équations couplées. Dans le cadre de l'hypothèse paraxiale pour des champs se propageant le long de z et en négligeant les effets parasites (double réfraction, walk-off), le système d'équations couplées où les trois champs

1. L'utilisation du renversement périodique des domaines ferroélectriques du cristal a permis la rapide extension des processus paramétriques, notamment par le biais des OPO avec l'utilisation de PPLN dopé MgO [Fej92].

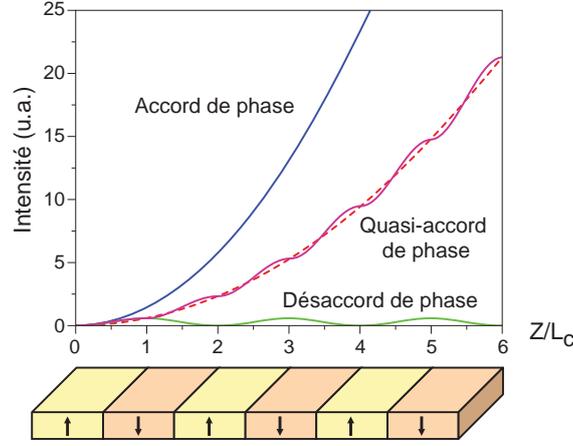


Figure B.1: Évolution de l'intensité en fonction de l'accord de phase dans un cristal périodiquement retourné.

sont à l'accord de phase s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dz} A_p(z) &= -\alpha_p A_p(z) - i\omega_p I_p A_s(z) A_i(z) \\ \frac{d}{dz} A_s(z) &= -\alpha_s A_s(z) - i\omega_s I_s A_p(z) A_i^*(z) \\ \frac{d}{dz} A_i(z) &= -\alpha_i A_i(z) - i\omega_i I_i A_p(z) A_s^*(z) \end{aligned} \quad (\text{B.1})$$

où :

- I_k est l'intégrale de normalisation reflétant le couplage entre les ondes dans le guide [Yar73] :

$$I_k = \frac{2d_{\text{eff}} \iint E_p(x,y) E_s(x,y) E_i(x,y) dx dy}{n_e c \iint E_k^2(x,y) dx dy}; \quad (\text{B.2})$$

- α_k est le coefficient d'absorption du matériau ;
- n_e est l'indice extraordinaire donné par les équations de Sellmeier [Jun97] :

$$n_e^2(\lambda, T) = a_1 + b_1 f(t) + \frac{a_2 + b_2 f(t)}{\lambda^2 - (a_3 + b_3 f(t))^2} + \frac{a_4 + b_4 f(t)}{\lambda^2 - a_5^2} - a_6 \lambda^2 \quad (\text{B.3})$$

où :

- λ est en micromètres ;
- $f(t)$ est donnée par

$$f(t) = (T - 24,5)(T + 570,82) \quad (\text{B.4})$$

avec T en degrés Celsius ;

- les coefficients a_i et b_i sont regroupés dans le tableau B.1.

Notons de plus que les différentes longueurs d'ondes en présence au sein du cristal obéissent aux équations suivantes qui reflètent la conservation de l'énergie et de l'impulsion des photons de pompe :

$a_1 = 5,35583$	$a_2 = 0,100473$	$a_3 = 0,20692$	$a_4 = 100$
$a_5 = 11,34927$	$a_6 = 1,5334 \cdot 10^{-2}$		
$b_1 = 4,629 \cdot 10^{-7}$	$b_2 = 3,862 \cdot 10^{-8}$	$b_3 = -0,89 \cdot 10^{-8}$	$b_4 = 2,657 \cdot 10^{-5}$

Table B.1: Coefficients de l'équation de Sellmeier [Jun97].

$$\begin{cases} \frac{1}{\lambda_p} &= \frac{1}{\lambda_s} + \frac{1}{\lambda_c} \\ \frac{n_{e,p}}{\lambda_p} - \frac{1}{\Lambda} &= \frac{n_{e,s}}{\lambda_s} + \frac{n_{e,c}}{\lambda_c} \end{cases} \text{ avec } \Lambda \text{ le pas du réseau} \quad (\text{B.5})$$

Ces équations permettent d'obtenir les courbes de quasi accord de phase, c'est-à-dire les longueurs d'ondes signal et complémentaire générées en fonction de la longueur d'onde de pompe et de la température.

B.1.2 Constante de gain paramétrique

En faisant l'hypothèse de la pompe non dépeuplée qui est amplement justifiée étant donné que nous sommes en régime de faible gain, l'amplitude $A_p(z)$ peut se simplifier :

$$A_p(z) = A_p(0)e^{-\alpha_p z} \quad (\text{B.6})$$

ce qui permet de résoudre simplement le système d'équations couplées B.1 :

$$\begin{cases} A_s(z) &= e^{-\alpha z} \left[A_s(0) \cosh G(z) - i \frac{A_c^*(0)}{\gamma} \sinh G(z) \right] \\ A_c^*(z) &= \gamma e^{-\alpha z} \left[\frac{A_c^*(0)}{\gamma} \cosh G(z) + i A_s(0) \sinh G(z) \right] \end{cases} \text{ avec } \alpha_s = \alpha_c = \alpha \text{ à la dégénérescence} \quad (\text{B.7})$$

avec :

$$\begin{aligned} G(z) &= \frac{g}{\alpha_p} (1 - e^{-\alpha_p z}) \\ \gamma &= \sqrt{\frac{\omega_c Z_c I_c}{n_{e,c}} \frac{n_{e,s}}{\omega_s Z_s I_s}} \end{aligned}$$

Le paramètre g est la constante de gain paramétrique, exprimée en cm^{-1} , et traduit l'efficacité de l'interaction paramétrique au sein du cristal. Elle s'exprime :

$$g^2 = \frac{2}{\epsilon_0 c^3} \frac{\omega_s \omega_c}{n_{e,s} n_{e,c}} \frac{P_p(0)}{n_{e,p}} I_r \quad (\text{B.8})$$

où :

- $P_p(0)$ est la puissance injectée en entrée du guide d'onde ;
- I_r est l'intégrale de recouvrement entre les champs en interaction [Yar73, Yar89] dans le guide :

$$I_r = \left(\frac{2d_{33}}{\pi} \right)^2 \frac{(\int \int E_p(x,y) E_s(x,y) E_c(x,y) dx dy)^2}{\int \int E_p^2(x,y) dx dy \int \int E_s^2(x,y) dx dy \int \int E_c^2(x,y) dx dy}. \quad (\text{B.9})$$

Les différents champs sont supposés être dans le mode TE00.

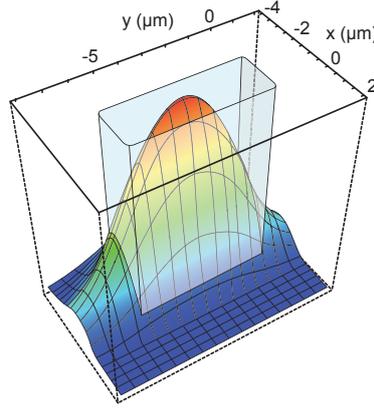


Figure B.2: Profil du signal dans un guide d'onde monomode de dimension $2,1 \mu\text{m} \times 6 \mu\text{m}$.

B.1.3 Efficacité de conversion

La solution triviale du système B.1 est nulle dans le cadre de la théorie classique. Pour justifier des phénomènes de fluorescence en optique non linéaire, on présente généralement un calcul simple monomode du nombre de photons en sortie de cristal en approche quantique, soulignant l'importance des fluctuations du vide, équivalente à un photon par mode (ou à un demi photon par mode en fonction des modèles) [Lou61, Kle62, Bye68]. Par la suite, pour calculer l'efficacité de conversion il faut prendre en compte la largeur des pics de fluorescence. On introduit pour cela une acceptation de décalage à l'accord de phase par le biais d'un facteur d'écart à l'accord de phase dans le système d'équations couplées, ce qui permet d'aboutir à la puissance de sortie à la dégénérescence [Tan02] :

$$P_s(l) = \frac{\hbar \omega_s g^2 l}{c |b|} e^{-2\alpha l} \left(\frac{1 - e^{-\alpha_p l}}{\alpha_p l} \right)^2 \quad (\text{B.10})$$

où :

- l est la longueur du guide ;
- b est une grandeur représentant l'acceptance d'écart à l'accord de phase au sein du cristal :

$$b = n_{e,c} - n_{e,s} + \frac{\partial n_e}{\partial \omega} \Big|_{\omega_c} - \frac{\partial n_e}{\partial \omega} \Big|_{\omega_s}. \quad (\text{B.11})$$

En implémentant le modèle avec les caractéristiques de notre montage expérimental décrites dans à la partie B.2.1 , la simulation aboutit à une puissance de fluorescence de l'ordre de 300 nW.

B.2 Réalisation d'une source paramétrique en guide d'onde

B.2.1 Montage expérimental

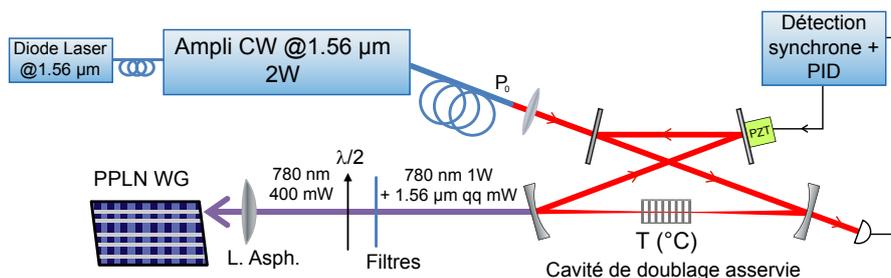


Figure B.3: Montage expérimental d'une source de fluorescence paramétrique continue pompée à l'aide d'une cavité de doublage asservie.

Le montage expérimental, représenté sur la figure B.3, est composé d'un cristal de PPLN d'un pas de $19 \mu\text{m}$ et d'une longueur de 32 mm en guide d'onde taillé avec un angle pour éviter les retours et pompé par une source continue à 780 nm . La pompe est constituée d'une cavité de doublage asservie très sur-tendue dans laquelle est placé un cristal de 5 mm de PPLN dans un four maintenant la température à $0,01^\circ\text{C}$ près. La cavité est alimentée par un amplificateur de 2 W à $1,56 \mu\text{m}$ précédé d'une diode laser et permet d'obtenir une puissance de 1 W à 780 nm en sortie. Le faisceau à 780 nm en sortie de cavité passe à travers plusieurs filtres colorés pour enlever les résidus du signal de pompe à $1,56 \mu\text{m}$ puis est focalisé dans un guide d'onde du second cristal à l'aide d'une lentille asphérique pour générer un signal de fluorescence paramétrique. Le changement de la température, contrôlée à $0,1^\circ\text{C}$ près, du four dans lequel est placé ce dernier cristal permet d'explorer les différents accords de phase, à la dégénérescence ou hors de la dégénérescence.

L'utilisation de la cavité de doublage asservie se justifie par la puissance de pompe à 780 nm nécessaire et le matériel disponible. La cavité a été développée par Bresson *et al.* dans le but d'obtenir une source puissante particulièrement stable en fréquence [Bre04]. Un tel système pourrait être avantageusement remplacé par un MOPA² semi-conducteur à injecter avec une diode laser de faible puissance à 780 nm dans notre cas.

B.2.2 Caractérisation de la source

Dans un premier temps, les différents guides ont été injectés et la température a été accordée de manière à obtenir la meilleure efficacité dans chaque guide. Le guide le plus performant a été déterminé à l'aide d'un détecteur DET 410 (InGaAs) de chez Thorlabs associé à une détection synchrone

2. Master Oscillator Power Amplifier.

verrouillée sur le signal du détecteur d'asservissement de la cavité. L'étude de l'accord de phase expé-

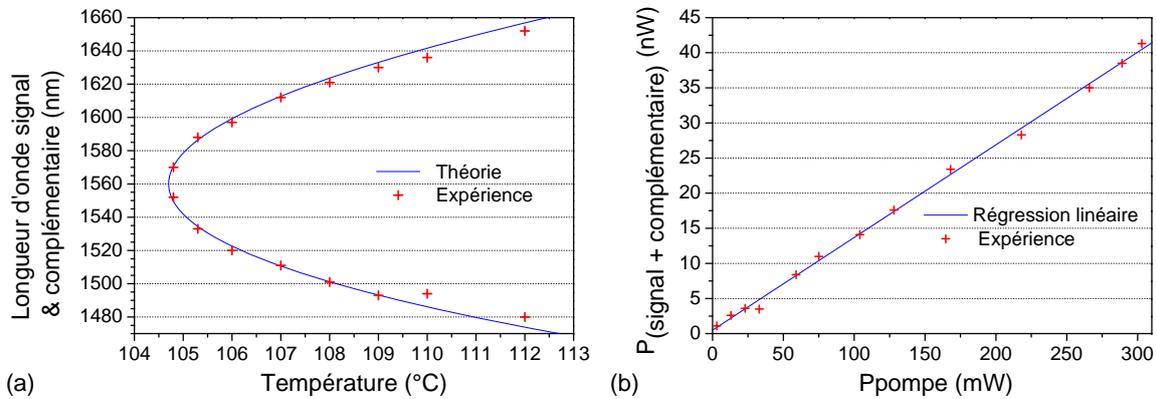


Figure B.4: (a) Courbe d'accord de phase du générateur paramétrique en guide d'onde pompé à 780 nm ; (b) Puissance moyenne de fluorescence paramétrique à la dégénérescence centrée à 1560 nm en fonction de la puissance de pompe incidente.

rimental est comparée à l'accord de phase prévu par l'équation de Sellmeier sur la figure B.4(a). Enfin la puissance de fluorescence paramétrique générée en fonction de la puissance de pompe incidente a été mesurée (Fig. B.4(b)). La dépendance linéaire de la puissance générée avec la puissance incidente nous confirme que nous sommes bien en régime de faible gain. Le rendement est plus faible que le rendement théorique ce qui peut s'expliquer par la difficulté de mesurer le coefficient de couplage avec un guide du fait des pertes supplémentaires aux interfaces.

La puissance maximale obtenue est de 42 nW. En travaillant sur l'asservissement de la cavité, il a été possible d'augmenter la puissance de pompe pour atteindre un signal de fluorescence de 47 nW. La cavité devient alors si sensible aux vibrations que l'asservissement n'est plus en mesure d'assurer le verrouillage³. On notera toutefois que l'utilisation d'une puissance plus élevée conduirait à l'endommagement des guides d'ondes⁴ par absorption du signal à 780 nm. Finalement, la limitation de la puissance générée ne permet pas la réalisation d'expériences d'absorption à deux photons à l'aide de ce dispositif.

B.3 Réalisation d'une première source paramétrique picoseconde pompée à 1064 nm

Dans le cadre du développement d'oscillateurs paramétriques optiques pompés à 1064 nm à l'Onera, il a été possible de caractériser la fluorescence d'un cristal de PPLN d'une longueur de 20 mm et d'un pas de 31,35 μm pompé par un laser à verrouillage de mode délivrant des impulsions de 10 ps à une

3. Cette sensibilité aux vibrations est une des raisons majeures qui ont poussé Bresson *et al.* à abandonner l'utilisation de ce type de cavité pour équiper leur montage avec des amplificateurs de puissances plus élevées suivis d'un cristal hors cavité.

4. Le seuil de dommage du guide vient d'une constatation empirique. Plusieurs guides du cristal ont été endommagés dans des expériences précédentes lorsqu'ils ont été soumis à des puissances à 780 nm inférieures à 500 mW.

cadence de 76 MHz. L'idée sous-jacente à cette expérience était la caractérisation de la source à l'aide du détecteur à avalanche SPCM-AQR13 en silicium. Malgré la non-idéalité de la réponse du détecteur en régime continu, il a été envisagé d'étudier de nouveau la réponse mais en régime impulsionnel. De plus, dans le cas où la déviation à l'idéalité persisterait, il a été envisagé de placer les puissances de chaque bras de l'interféromètre dans le domaine de réponse quadratique. L'histoire s'est tragiquement terminée puisque le détecteur, suite à un problème électronique entraînant l'endommagement de la photodiode, a dû partir en réparation pour un congé prolongé.

Le schéma de l'expérience ainsi que les résultats de la caractérisation de cette première source paramétrique picoseconde sont présentés sur la figure B.5. On observe bien l'inversion de la dépendance en température de l'accord de phase par rapport à 780 nm. De plus, on notera que nous sommes bien en régime de fort gain avec des intensités qui permettent aisément la caractérisation de la réponse à deux photons. Ces résultats préliminaires nous ont toutefois confortés dans l'idée d'utiliser des sources impulsionnelles picosecondes pour notre étude.

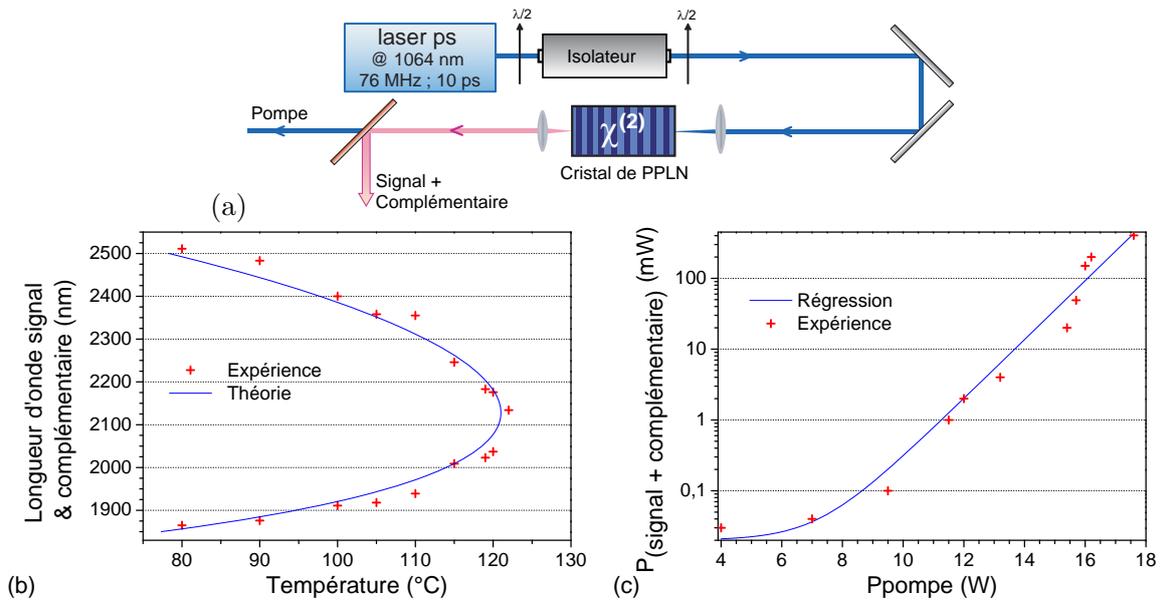


Figure B.5: (a) Montage expérimental d'une source de fluorescence paramétrique basée sur un cristal de PPLN pompé en régime picoseconde à 1064 nm. (b) Courbe d'accord de phase du générateur paramétrique. (c) Puissance moyenne de fluorescence paramétrique à la dégénérescence centrée à 2128 nm en fonction de la puissance moyenne de pompe incidente.

Annexe C

Modélisation des mesures de corrélation à deux photons avec prise en compte des pertes et de la dispersion

La présente annexe a pour objectif de présenter en détail la démarche qui a permis d'aboutir à la modélisation brièvement décrite et utilisée au chapitre 4

À partir des conventions générales définies à la partie 4.4.3, il est possible de calculer les différents termes contribuant à l'interférogramme à deux photons. Les calculs qui suivent sont valables pour les différentes étapes qui ont conduit à notre modèle¹ (parties 4.4.1, 4.4.2, 4.4.3 et 4.4.4).

C.1 Calcul de la fonction de corrélation du premier ordre

Cette simple mise en jambe va nous permettre de construire le raisonnement, reposant principalement sur les équations 4.14 et 4.15, qui suivra tout le long du calcul ainsi que de déterminer le flux de photons. Au niveau du détecteur, la fonction de corrélation d'ordre un s'exprime à partir de la valeur de $\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \rangle$ et du flux $\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \rangle$ où les bornes des intégrales sont imposées par le domaine de définition de la courbe de gain.

$$\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} d\omega d\omega' \langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, \omega) \hat{a}_p(z_d, \omega') \rangle e^{i\omega t} e^{-i\omega'[t+\tau]}$$

1. Il suffit de se placer dans le cadre des approximations correspondantes en accordant les paramètres associés (accord de phase parfait, pertes ou dispersion négligeables, régime de gain) pour retrouver les formules obtenues au cours du chapitre 4.

$$\begin{aligned}
&= \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} d\omega d\omega' \eta^*(\omega) \eta(\omega') \times \langle \hat{a}^\dagger(z_c, \omega) \hat{a}(z_c, \omega') \rangle e^{i\omega t} e^{-i\omega'[t+\tau]} \\
&= \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} d\omega d\omega' \eta^*(\omega) \eta(\omega') e^{i\omega t} e^{-i\omega'[t+\tau]} \times e^{i \left[\frac{\Delta k(\omega')}{2} - \frac{\Delta k(\omega)}{2} + k(\omega') - k(\omega) \right] z_c} \\
&\quad \times \left\langle \begin{array}{l} \left[\mu^*(\omega) \hat{a}^\dagger(0, \omega) - i\nu^*(\omega) \hat{a}(0, \omega_p - \omega) \right] \\ \times \left[\mu(\omega') \hat{a}(0, \omega') + i\nu(\omega') \hat{a}^\dagger(0, \omega_p - \omega') \right] \end{array} \right\rangle \\
&= \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} d\omega d\omega' \eta^*(\omega) \eta(\omega') e^{i\omega t} e^{i\omega'[t+\tau]} \times e^{i \left[\frac{\Delta k(\omega')}{2} - \frac{\Delta k(\omega)}{2} + k(\omega') - k(\omega) \right] z_c} \\
&\quad \times \nu^*(\omega) \nu(\omega') \langle \hat{a}(0, \omega_p - \omega) \hat{a}^\dagger(0, \omega_p - \omega') \rangle \\
&= \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} d\omega d\omega' \eta^*(\omega) \eta(\omega') e^{i\omega t} e^{-i\omega'[t+\tau]} \times e^{i \left[\frac{\Delta k(\omega')}{2} - \frac{\Delta k(\omega)}{2} + k(\omega') - k(\omega) \right] z_c} \times \nu^*(\omega) \nu(\omega') \delta(\omega - \omega') \\
&= \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{-i\omega\tau}
\end{aligned}$$

On retrouve ainsi la formule habituelle du degré de cohérence d'ordre 1 :

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{-i\omega\tau}}{\frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2} = \frac{1}{\Phi} \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{-i\omega\tau} \quad (\text{C.1})$$

où $\Phi = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2$ est le flux de photons.

C.2 Calcul de l'élément clé d'interaction à deux photons

L'évaluation de l'élément :

$$\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t_1) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t_2) \hat{a}_p(z_d, t_3) \hat{a}_p(z_d, t_4) \rangle \quad (\text{C.2})$$

va permettre de calculer toutes les composantes de l'interférogramme. La méthode utilisée est la même que celle utilisée ci-dessus et repose sur les critères exposés aux équations 4.14 et 4.15.

$$\begin{aligned}
\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t_1) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t_2) \hat{a}_p(z_d, t_3) \hat{a}_p(z_d, t_4) \rangle &= \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} d\omega d\omega' d\omega'' d\omega''' \times e^{i[\omega t_1 + \omega' t_2 - \omega'' t_3 - \omega''' t_4]} \\
&\quad \times \langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, \omega) \hat{a}_p^\dagger(z_d, \omega') \hat{a}_p(z_d, \omega'') \hat{a}_p(z_d, \omega''') \rangle
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} d\omega d\omega' d\omega'' d\omega''' \eta^*(\omega) \eta^*(\omega') \eta(\omega'') \eta(\omega''') \times e^{i[\omega t_1 + \omega' t_2 - \omega'' t_3 - \omega''' t_4]} \\
 &\quad \times \left\langle \hat{a}^\dagger(z_c, \omega) \hat{a}^\dagger(z_c, \omega') \hat{a}(z_c, \omega'') \hat{a}(z_c, \omega''') \right\rangle \\
 &= \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} \int_0^{\omega_p} d\omega d\omega' d\omega'' d\omega''' \eta^*(\omega) \eta^*(\omega') \eta(\omega'') \eta(\omega''') \times e^{i[\omega t_1 + \omega' t_2 - \omega'' t_3 - \omega''' t_4]} \\
 &\quad \times \nu^*(\omega) e^{-i\left[\frac{\Delta k(\omega)}{2} + k(\omega) + \frac{\Delta k(\omega')}{2} + k(\omega')\right] z_c} \times \nu(\omega''') e^{i\left[\frac{\Delta k(\omega'')}{2} + k(\omega'') + \frac{\Delta k(\omega''')}{2} + k(\omega''')\right] z_c} \\
 &\quad \times \left\{ \begin{aligned} &\mu^*(\omega') \mu(\omega'') \delta(\omega' + \omega - \omega_p) \delta(\omega'' + \omega''' - \omega_p) \\ &+ \nu^*(\omega') \nu(\omega'') [\delta(\omega - \omega'') \delta(\omega' - \omega''') + \delta(\omega' - \omega'') \delta(\omega - \omega''')] \end{aligned} \right\} \\
 &= \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\omega_p} d\omega' \eta^*(\omega_p - \omega') \eta^*(\omega') \nu^*(\omega') \mu^*(\omega') e^{i[\omega' t_2 - t_1] + \omega_p t_1} \times e^{-i[\Delta k(\omega') + k(\omega_p - \omega') + k(\omega')] z_c} \\
 &\quad \times \int_0^{\omega_p} d\omega \eta(\omega_p - \omega) \eta(\omega) \nu(\omega) \mu(\omega) e^{-i[\omega t_3 - t_4] + \omega_p t_4} e^{i[\Delta k(\omega) + k(\omega_p - \omega) + k(\omega)] z_c} \\
 &\quad + \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\omega_p} d\omega |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{i\omega[t_1 - t_3]} \int_0^{\omega_p} d\omega' |\eta(\omega')|^2 |\nu(\omega')|^2 e^{i\omega'[t_2 - t_4]} \\
 &\quad + \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\omega_p} d\omega |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{i\omega[t_1 - t_4]} \int_0^{\omega_p} d\omega' |\eta(\omega')|^2 |\nu(\omega')|^2 e^{i\omega'[t_2 - t_3]}.
 \end{aligned}$$

En considérant la définition de l'écart à l'accord de phase $\Delta k(\omega)$ à l'équation 4.31, les termes de phase dépendants des vecteurs d'ondes se simplifient pour aboutir à l'expression générale suivante :

$$\begin{aligned}
 &\left\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t_1) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t_2) \hat{a}_p(z_d, t_3) \hat{a}_p(z_d, t_4) \right\rangle \\
 &= \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\omega_p} d\omega' \eta^*(\omega_p - \omega') \eta^*(\omega') \nu^*(\omega') \mu^*(\omega') e^{i[\omega' t_2 - t_1] + \omega_p t_1} \\
 &\quad \times \int_0^{\omega_p} d\omega \eta(\omega_p - \omega) \eta(\omega) \nu(\omega) \mu(\omega) e^{-i[\omega t_3 - t_4] + \omega_p t_4} \\
 &\quad + \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\omega_p} d\omega |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{i\omega[t_1 - t_3]} \int_0^{\omega_p} d\omega' |\eta(\omega')|^2 |\nu(\omega')|^2 e^{i\omega'[t_2 - t_4]}
 \end{aligned}$$

$$+ \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{\omega_p} d\omega |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{i\omega[t_1-t_4]} \int_0^{\omega_p} d\omega' |\eta(\omega')|^2 |\nu(\omega')|^2 e^{i\omega'[t_2-t_3]} \quad (\text{C.3})$$

C.3 Calcul du degré de cohérence d'ordre deux

La fonction d'autocorrélation $g^{(2)}(\tau)$ est calculée à partir de l'élément :

$$\left\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t) \right\rangle. \quad (\text{C.4})$$

À partir de la formule C.3 obtenue dans la partie précédente, l'expression de cet élément est donnée par :

$$\begin{aligned} & \left\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t) \right\rangle \\ &= \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega \eta(\omega_p - \omega) \eta(\omega) \nu(\omega) \mu(\omega) e^{-i\omega\tau} \right|^2 + \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{-i\omega\tau} \right|^2 \\ & \quad + \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 \right|^2. \end{aligned} \quad (\text{C.5})$$

Le produit des paramètres de propagation peut s'écrire comme le produit d'une amplitude réelle et d'un terme de phase non-linéaire complexe :

$$\nu(\omega) \mu(\omega) = |\nu(\omega)| |\mu(\omega)| e^{i\phi_{NL}(\omega)}. \quad (\text{C.6})$$

En partant des coefficients $\nu(\omega)$ et $\mu(\omega)$ donnés aux équations 4.32, la contribution de la phase non-linéaire qui va participer au calcul est principalement due à la phase introduite par le terme $\mu(\omega)$. En introduisant cette phase non linéaire et en remplaçant le coefficient $\eta(\omega)$ par son expression complexe de l'équation 4.36, l'expression C.5 se simplifie et conduit à l'expression du degré de cohérence d'ordre deux suivant :

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\tau) &= 1 + \frac{1}{\Phi^2} \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega |\eta_0(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{-i\omega\tau} \right|^2 \\ & \quad + \frac{1}{\Phi^2} \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega \eta_0(\omega_p - \omega) \eta_0(\omega) |\nu(\omega)| |\mu(\omega)| e^{i[\phi(\omega) + \phi(\omega_p - \omega) + \phi_{NL}(\omega)]} e^{-i\omega\tau} \right|^2 \end{aligned} \quad (\text{C.7})$$

où Φ est le flux de la source définie à la partie C.1. Cette expression peut aussi s'exprimer de la manière suivante :

$$g^{(2)}(\tau) = g_{\text{Inc}}^{(2)}(\tau) + g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau) \quad (\text{C.8})$$

où $g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau)$ est appelé partie cohérente, représentant les coïncidences des paires de photons jumeaux, et $g_{\text{Inc}}^{(2)}(\tau)$, partie incohérente représentant les coïncidences accidentelles entre deux photons signaux, deux photons complémentaires, ou un photon signal et un complémentaire issues de paires différentes. Le terme incohérent peut s'écrire :

$$g_{\text{Inc}}^{(2)}(\tau) = 1 + \frac{1}{\Phi^2} \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega |\eta_0(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{-i\omega\tau} \right|^2 \quad (\text{C.9})$$

et le terme cohérent s'écrit, quant à lui :

$$g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau) = \frac{1}{\Phi^2} \left| \frac{1}{2\pi} \int_0^{\omega_p} d\omega \eta_0(\omega_p - \omega) \eta_0(\omega) |\nu(\omega)| |\mu(\omega)| e^{i[\phi(\omega) + \phi(\omega_p - \omega) + \phi_{NL}(\omega)]} e^{-i\omega\tau} \right|^2. \quad (\text{C.10})$$

L'analyse de l'influence des termes cohérent et incohérent participant à la fonction d'autocorrélation est réalisée au chapitre 4.

C.4 Évaluation de la partie cohérente du degré de cohérence d'ordre deux

Si on remarque aisément que la dispersion ne va pas avoir d'influence sur la partie incohérente de la fonction d'autocorrélation citée à l'équation C.9, son influence sur la partie cohérente est plus difficile à appréhender. Pour évaluer l'influence du phénomène, les pertes vont être négligées, *i.e.* $\eta(\omega) = 1$, et nous allons nous placer dans nos conditions expérimentales, *i.e.* en régime de fort gain. Dans ces conditions, les facteurs de propagation sont quasiment égaux et l'on peut écrire :

$$\mu(\omega) \approx \nu(\omega). \quad (\text{C.11})$$

Après un développement limité de la phase $\phi(\omega)$ comme celui de l'expression 4.47, on aboutit à l'expression simplifiée 4.49 de la partie cohérente. Pour analyser le rôle de la dispersion, la forme de la courbe de gain paramétrique peut être approximée par la somme de deux gaussiennes centrées aux fréquences ω_s et $\omega_c = \omega_p - \omega_s$, d'où l'approximation du module $|\nu(\omega)|^2 \approx e^{-\frac{[\omega - \omega_s]^2}{\Delta^2}} + e^{-\frac{[\omega - \omega_c]^2}{\Delta^2}}$, avec Δ la largeur des pics de fluorescence, qui permet d'écrire la partie cohérente :

$$\begin{aligned} g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau) &\propto \left| \int_0^{\omega_p} d\omega \left[e^{-\frac{[\omega - \omega_s]^2}{\Delta^2}} + e^{-\frac{[\omega - \omega_p + \omega_s]^2}{\Delta^2}} \right] e^{i\phi''(\frac{\omega_p}{2})[\omega - \frac{\omega_p}{2}]^2} e^{-i\omega\tau} \right|^2 \\ &\propto \left| \int_{-\omega_p/2}^{\omega_p/2} d\omega' \left[e^{-\frac{[\omega' - \omega_0]^2}{\Delta^2}} + e^{-\frac{[\omega' + \omega_0]^2}{\Delta^2}} \right] e^{i\phi''(\frac{\omega_p}{2})\omega'^2} e^{-i\omega'\tau} \right|^2 \quad \text{avec } \omega_0 = \omega_s - \frac{\omega_p}{2} \end{aligned}$$

$$\propto \left| e^{-i\omega_0\tau} \int_{-\omega_p/2-\omega_0}^{\omega_p/2-\omega_0} d\omega' e^{-\left[\frac{1}{\Delta^2}-i\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)\right]\omega'^2} e^{-i\omega'[\tau-2\omega_0\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)]} + e^{i\omega_0\tau} \int_{-\omega_p/2+\omega_0}^{\omega_p/2+\omega_0} d\omega' e^{-\left[\frac{1}{\Delta^2}-i\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)\right]\omega'^2} e^{-i\omega'[\tau+2\omega_0\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)]} \right|^2.$$

En supposant que les fréquences signal et complémentaire sont très grandes devant la largeur de la gaussienne (*i.e.* $\sim \Delta\omega \ll \omega_p/2$), les bornes de l'intégrale peuvent être étendues à l'infini :

$$g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau) \propto \frac{\Delta^2}{\sqrt{1 + \Delta^4\phi''^2\left(\frac{\omega_p}{2}\right)}} \left| e^{-\frac{[\tau-2\omega_0\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)]^2}{4\left[\frac{1}{\Delta^2}-i\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)\right]}-i\omega_0\tau} + e^{-\frac{[\tau+2\omega_0\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)]^2}{4\left[\frac{1}{\Delta^2}-i\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)\right]}+i\omega_0\tau} \right|^2$$

$$\propto \frac{\Delta^2}{\sqrt{1 + \Delta^4\phi''^2\left(\frac{\omega_p}{2}\right)}} \left| e^{-\frac{\Delta^2[\tau-2\omega_0\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)]^2}{4[1+i\Delta^2\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)]}} + e^{-\frac{\Delta^2[\tau+2\omega_0\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)]^2}{4[1+i\Delta^2\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)]}} e^{\frac{i2\omega_0\tau}{[1+i\Delta^2\phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right)]}} \right|^2.$$

Finalement, le développement conduit à une expression de la forme :

$$g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau) \propto \frac{\Delta\tau_0}{\Delta\tau} \left| e^{-\frac{[\tau-\tau_0]^2}{\Delta\tau^2}} + e^{-\frac{[\tau+\tau_0]^2}{\Delta\tau^2}} e^{-i\left[\frac{\Delta\tau_0}{\Delta\tau}\right]^2[\omega_s-\omega_c]\tau} \right|^2 \quad (\text{C.12})$$

avec :

$$\tau_0 = [\omega_s - \omega_c] \phi''\left(\frac{\omega_p}{2}\right) \quad (\text{C.13})$$

$$\Delta\tau = \Delta\tau_0 \sqrt{1 + \Delta^4\phi''^2\left(\frac{\omega_p}{2}\right)}. \quad (\text{C.14})$$

La modélisation de la partie cohérente, basée sur l'évaluation numérique de l'expression C.10, est présentée sur la figure C.1(a). On observe bien qu'au fur et à mesure que l'intensité des phénomènes de dispersion augmente, la modulation à $\omega_s - \omega_c$ – conséquence des “interférences en champs” – demeure centrée en $\tau = 0$ tandis que son amplitude diminue rapidement jusqu'à s'annuler. Ce comportement est bien conforme à celui prédit par le terme de droite de l'équation C.12. Dans cette équation, le terme de gauche rend compte de la déviation temporelle du maximum de la courbe de part et d'autre de $\tau = 0$ (Fig. C.1(b)) et de l'élargissement ces pics de corrélations cohérentes avec la dispersion. Le coefficient de proportionnalité $\frac{\Delta\tau_0}{\Delta\tau}$ en facteur de l'équation C.12 assure la conservation de l'énergie – ou du nombre de photons – et reflète la baisse de la valeur maximum de $g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau)$ consécutive l'étalement des pics (Fig. C.1(b)).

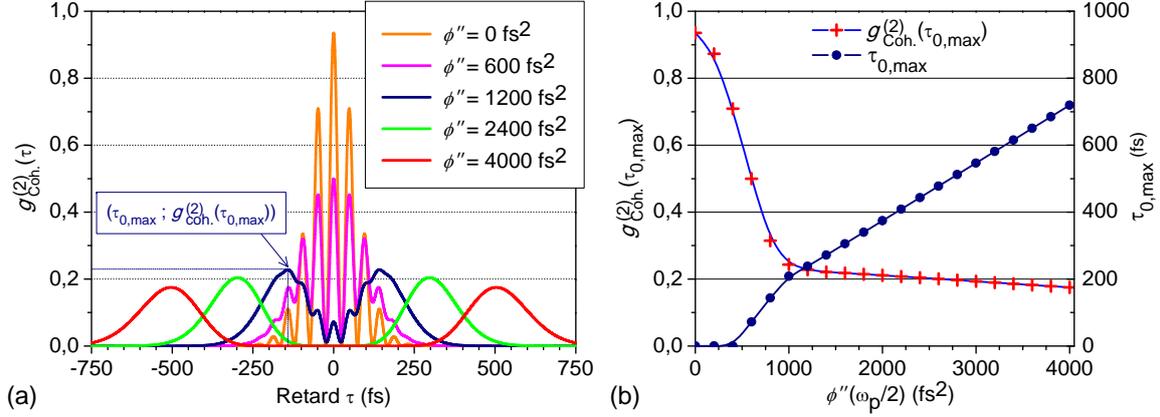


Figure C.1: (a) Influence de la valeur de dispersion de vitesse de groupe ϕ'' ($\frac{\omega_p}{2}$) sur la partie cohérente $g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau)$ de la fonction d'autocorrélation en intensité d'une paramétrique à fort flux. (b) Évolution de la valeur maximum $g_{\text{Coh}}^{(2)}(\tau_{0,\text{max}})$ et du décalage temporelle $\tau_{0,\text{max}}$ de la partie cohérente en fonction de la valeur de dispersion vitesse de groupe ϕ'' ($\frac{\omega_p}{2}$).

C.5 Modélisation de l'interférogramme d'autocorrélation à deux photons avec prise en compte des pertes et de la dispersion

À l'aide des conventions définies à la partie 4.4, il est possible d'exprimer la réponse à deux photons du détecteur $S_2(\tau)$ en fonction des opérateurs réduits $\hat{a}_p(t)$ et $\hat{a}_p(t + \tau)$. Tout calcul fait, l'évaluation du signal ne nécessite que le calcul de cinq éléments d'interaction.

$$\begin{aligned}
 S_2(\tau) &= 2 \left\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \right\rangle + 4 \left\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t) \right\rangle \\
 &+ 4 \text{Re} \left(\left\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \right\rangle + \left\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \right\rangle \right) \\
 &+ 2 \text{Re} \left\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \right\rangle. \tag{C.15}
 \end{aligned}$$

À l'aide de "l'élément clé", le calcul de la moyenne du carré de l'intensité reçue par le détecteur en fonction du retard τ aboutit à la généralisation quantique multimode de l'équation 3.6 obtenue avec une source classique de la forme :

$$\frac{S_2(\tau)}{S_2^0} = 1 + 2G^{(2)}(\tau) + 4 \text{Re} [F_1(\tau)] + \text{Re} [F_2(\tau)] \tag{C.16}$$

avec :

$$\begin{aligned}
 S_2^0 &= 2 \left\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \right\rangle \\
 &= 4 \left[\int_0^{\omega_p} d\omega |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 \right]^2 + 2 \left| \int_0^{\omega_p} d\omega \eta(\omega) \eta(\omega_p - \omega) \nu(\omega) \mu(\omega) \right|^2. \tag{C.17}
 \end{aligned}$$

Dans l'équation C.16, les composantes oscillantes aux fréquences signal et complémentaire apparaissent dans la fonctions $F_1(\tau)$ et celles oscillantes aux fréquences plus élevées – *e.g.* hors dégénérescence : $2\omega_s$, $2\omega_c$ et $\omega_s + \omega_c$ – dans la fonctions $F_2(\tau)$ ². Ces différentes fonctions définies par :

$$G^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t) \rangle}{\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \rangle} \quad (\text{C.18})$$

$$F_1(\tau) = \frac{1}{2} \frac{\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \rangle + \langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \rangle}{\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \rangle} \quad (\text{C.19})$$

$$F_2(\tau) = \frac{\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \hat{a}_p(z_d, t + \tau) \rangle}{\langle \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p^\dagger(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \hat{a}_p(z_d, t) \rangle} \quad (\text{C.20})$$

s'écrivent :

$$G^{(2)}(\tau) = \frac{2}{S_2^0} \left[\int_0^{\omega_p} d\omega |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 \right]^2 + \frac{2}{S_2^0} \left| \int_0^{\omega_p} d\omega |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{-i\omega\tau} \right|^2 + \frac{2}{S_2^0} \left| \int_0^{\omega_p} d\omega \eta(\omega) \eta(\omega_p - \omega) \nu(\omega) \mu(\omega) e^{-i\omega\tau} \right|^2 \quad (\text{C.21})$$

$$\begin{aligned} \text{Re } F_1(\tau) &= \frac{4}{S_2^0} \int_0^{\omega_p} d\omega |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 \int_0^{\omega_p} d\omega |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 \cos \omega\tau \\ &+ \frac{1}{S_2^0} \text{Re} \left[\int_0^{\omega_p} d\omega \eta^*(\omega) \eta^*(\omega_p - \omega) \nu^*(\omega) \mu^*(\omega) \times \int_0^{\omega_p} d\omega \eta(\omega) \eta(\omega_p - \omega) \nu(\omega) \mu(\omega) e^{-i\omega\tau} \right] \\ &+ \frac{1}{S_2^0} \text{Re} \left[\int_0^{\omega_p} d\omega \eta^*(\omega) \eta^*(\omega_p - \omega) \nu^*(\omega) \mu^*(\omega) e^{-i\omega\tau} \times \int_0^{\omega_p} d\omega \eta(\omega) \eta(\omega_p - \omega) \nu(\omega) \mu(\omega) \right] \end{aligned} \quad (\text{C.22})$$

$$\text{Re } F_2(\tau) = \frac{2}{S_2^0} \cos \omega_p \tau \left| \int_0^{\omega_p} d\omega \eta(\omega) \eta(\omega_p - \omega) \nu(\omega) \mu(\omega) \right|^2 + \frac{4}{S_2^0} \text{Re} \left[\int_0^{\omega_p} d\omega |\eta(\omega)|^2 |\nu(\omega)|^2 e^{-i\omega\tau} \right]^2 \quad (\text{C.23})$$

Les figures C.2(a) et C.2(c) présentent les interférogrammes résultants de cette modélisation (Eq. C.16) dans le cas idéal sans perte où les phénomènes de dispersion sont compensés dans deux conditions d'accord de phases, respectivement, à la dégénérescence et hors de la dégénérescence. Les figures C.2(b) et C.2(d) présentent les spectrogrammes respectivement associés aux deux interférogrammes précédents. On distingue les différentes fréquences relatives aux fonctions $G^{(2)}(\tau)$, $F_1(\tau)$ et $F_2(\tau)$. En comparant ces spectrogrammes à ceux obtenus à partir des interférogrammes expérimentaux

2. Le modèle présenté ici permet de décrire différents cas à la dégénérescence ou hors de la dégénérescence. Extraire une unique composante oscillante de la fonction $F_1(\tau)$ ou $F_2(\tau)$ ne permet pas de simplifier les calculs.

du chapitre 3 présentés à la figure C.3, on note plus particulièrement que la composante à la fréquence ω_p ne s'annule jamais, révélant le caractère particulier de la cohérence du champ "jumeaux" total.

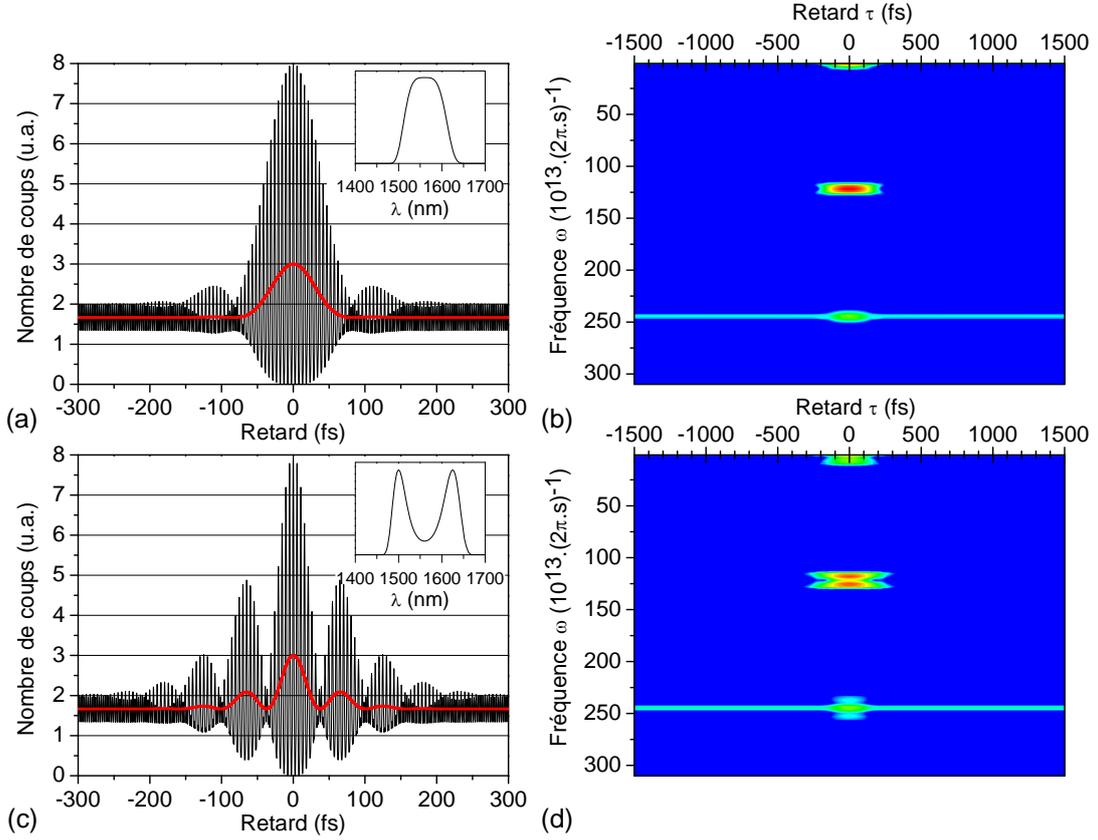


Figure C.2: Modélisation des interférogrammes d'autocorrélation à deux photons idéaux (Eq. C.16 sans perte et compensant la dispersion) dans deux cas d'accord de phases (a) à la dégénérescence, *i.e.* $\lambda_{s,c} = 2\lambda_p = 1,56 \mu\text{m}$, et (c) hors-dégénérescence, *i.e.* $\lambda_s = 1,50 \mu\text{m}$. La modélisation des spectres est présentée en encart des Fig. (a) et (c). Les figures (b) et (d) présentent les spectrogrammes – l'analyse temps-fréquences – associés, respectivement, aux interférogrammes (a) et (c).

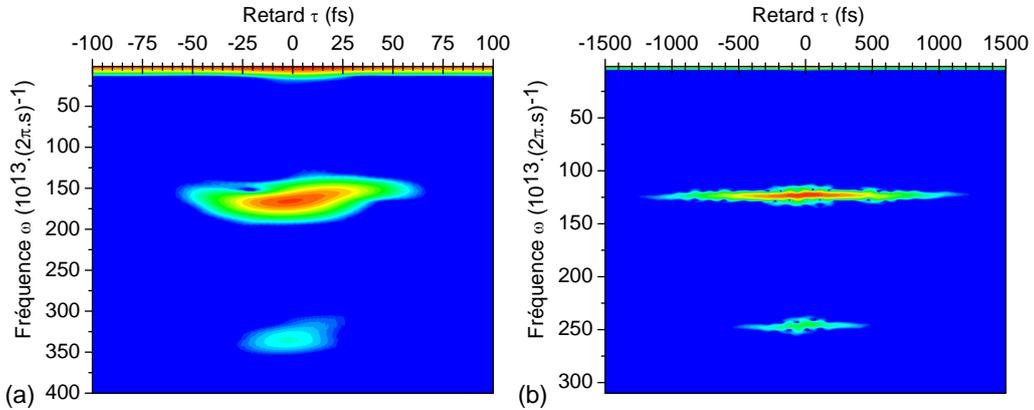


Figure C.3: (a) Spectrogramme de l'interférogramme expérimental de la lampe halogène (Fig. 3.6). (b) Spectrogramme de l'interférogramme expérimental d'une ASE (Fig. 3.4).

C.6 Modélisation des expériences d'*intercorrélation* à deux photons avec prise en compte des pertes et de la dispersion

Les calculs suivants détaillent le développement de la modélisation de l'interféromètre de type Mach-Zehnder à la partie 4.6.2 permettant l'observation du signal d'intercorrélation entre les photons signaux et complémentaires. La plupart des notations utilisées se réfère à celles utilisées dans la partie précédemment mentionnée.

C.6.1 Évaluation de l'élément clé

L'interféromètre est fort différent du précédent et le signal à deux photons issu de l'interféromètre est de la forme :

$$\begin{aligned}
 S_2(\tau) = & \left\langle \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_c(t) \hat{a}_c(t) \right\rangle + \left\langle \hat{a}_s^\dagger(t) \hat{a}_s^\dagger(t) \hat{a}_s(t) \hat{a}_s(t) \right\rangle + 4 \left\langle \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_s^\dagger(t + \tau) \hat{a}_s(t + \tau) \hat{a}_c(t) \right\rangle \\
 & + 4 \operatorname{Re} \left\langle \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_s^\dagger(t + \tau) \hat{a}_s(t + \tau) \hat{a}_s(t + \tau) \right\rangle + 4 \operatorname{Re} \left\langle \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_c(t) \hat{a}_s(t + \tau) \right\rangle \\
 & + 2 \operatorname{Re} \left\langle \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_s(t + \tau) \hat{a}_s(t + \tau) \right\rangle. \tag{C.24}
 \end{aligned}$$

Ainsi le calcul de l'élément clé va reposer sur l'évaluation d'un élément de la forme :

$$\left\langle \hat{a}_i^\dagger(t_1) \hat{a}_j^\dagger(t_2) \hat{a}_k(t_3) \hat{a}_l(t_4) \right\rangle$$

où les opérateurs $\hat{a}_i(t)$ sont de la forme :

$$\hat{a}_i(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\omega_p} d\omega f_i(\omega) \hat{a}(z_c, \omega) e^{i\omega t}. \tag{C.25}$$

L'évaluation de l'élément clé se fait à l'aide des conditions 4.14 et 4.15 et en suivant la méthode utilisée à la partie C.2 pour conduire à une solution de la forme :

$$\begin{aligned}
 \left\langle \hat{a}_i^\dagger(t_1) \hat{a}_j^\dagger(t_2) \hat{a}_k(t_3) \hat{a}_l(t_4) \right\rangle = & e^{i\omega_p[t_1-t_4]} \int_0^{\omega_p} d\omega f_i^*(\omega_p - \omega) f_j^*(\omega) \nu^*(\omega) \mu^*(\omega) e^{i\omega[t_2-t_1]} \\
 & \times \int_0^{\omega_p} d\omega f_k(\omega) f_l(\omega_p - \omega) \nu(\omega) \mu(\omega) e^{-i\omega[t_3-t_4]} \\
 & + \int_0^{\omega_p} d\omega f_i^*(\omega) f_k(\omega) |\nu(\omega)|^2 e^{i\omega[t_1-t_3]} \int_0^{\omega_p} d\omega f_j^*(\omega) f_l(\omega) |\nu(\omega)|^2 e^{i\omega[t_2-t_4]}
 \end{aligned}$$

$$+ \int_0^{\omega_p} d\omega f_i^*(\omega) f_l(\omega) |\nu(\omega)|^2 e^{i\omega[t_1-t_4]} \int_0^{\omega_p} d\omega f_j^*(\omega) f_k(\omega) |\nu(\omega)|^2 e^{i\omega[t_2-t_3]}. \quad (\text{C.26})$$

C.6.2 Calcul du signal d'intercorrél

En supposant que les miroirs d'entrée et de sortie ont une coupure parfaite à la fréquence $\omega_p/2$, c'est-à-dire que :

$$\eta(\omega) = \begin{cases} 1 & \text{si } \omega < \omega_p/2 \\ 0 & \text{si } \omega > \omega_p/2 \end{cases}$$

le signal à deux photons peut s'exprimer à partir des seuls éléments non nuls :

$$S_2(\tau) = \langle \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_c(t) \hat{a}_c(t) \rangle + \langle \hat{a}_s^\dagger(t) \hat{a}_s^\dagger(t) \hat{a}_s(t) \hat{a}_s(t) \rangle + 4 \langle \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_s^\dagger(t+\tau) \hat{a}_s(t+\tau) \hat{a}_c(t) \rangle. \quad (\text{C.27})$$

En supposant de plus que les pertes sont à peu près constantes sur chaque domaine de fréquences signales et complémentaires, *i.e.* $D_{s,c}^0(\omega) = D_{s,c}^0$, le signal à deux photons s'écrit finalement :

$$\begin{aligned} \frac{S_2(\tau)}{S_2^0} &= 1 + \frac{4}{4\pi^2 S_2^0} \left(D_c^0 D_s^0 \right)^2 \left[\int_0^{\omega_p/2} d\omega |\nu(\omega)|^2 \right]^2 \\ &+ \frac{4}{4\pi^2 S_2^0} \left(D_c^0 D_s^0 \right)^2 \left| \int_0^{\omega_p/2} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega) e^{i[\phi_c(\omega) + \phi_s(\omega_p - \omega)]} e^{i\omega\tau} \right|^2 \end{aligned} \quad (\text{C.28})$$

où :

$$\begin{aligned} S_2^0 &= \langle \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_c(t) \hat{a}_c(t) \rangle + \langle \hat{a}_s^\dagger(t) \hat{a}_s^\dagger(t) \hat{a}_s(t) \hat{a}_s(t) \rangle \\ &= \frac{2}{4\pi^2} \left[\left(D_c^0 \right)^4 + \left(D_s^0 \right)^4 \right] \left[\int_0^{\omega_p/2} d\omega |\nu(\omega)|^2 \right]^2. \end{aligned} \quad (\text{C.29})$$

La comparaison entre la modélisation présentée ci-dessus et les résultats expérimentaux est effectuée à la partie 4.6 (Chap. 4) à la page 125.

Annexe D

Influence de la dépendance spectrale du coefficient d'absorption à deux photons sur les mesures de corrélation hors-dégénérescence

Nous avons vu au chapitre 1 que l'absorption de deux photons non dégénérés était possible si la somme des énergies de chaque photon était supérieure à l'énergie de la bande interdite du semiconducteur, avec notamment la démonstration du principe de *Solid State Infrared Quantum Counters* (partie 1.4). Nous avons par la suite tiré parti de cette propriété au chapitre 4 pour mesurer les corrélations de photons jumeaux à fort flux à des longueurs d'ondes très différentes sans revenir sur notre technique de mesure. Nous nous proposons ici d'étudier brièvement l'influence du coefficient d'absorption à deux photons β sur les mesures de corrélation à deux photons présentées au chapitre 4. Pour cela nous verrons comment il est possible d'intégrer le coefficient d'absorption à deux photons dans le modèle quantique développé au chapitre 4 dans le cas où les deux ondes signal et complémentaire sont loin de la dégénérescence. Nous analyserons alors l'impact de la dépendance en longueur d'onde de ce coefficient sur nos différentes mesures de corrélation réalisées hors dégénérescence.

D.1 Introduction du coefficient d'absorption à deux photons dans la modélisation des mesures de corrélation

D.1.1 Mise en évidence de la nécessité du coefficient d'absorption à deux photons

En s'inspirant des travaux de Shen sur le traitement semi-classique des processus non linéaires [She67, She84], il est possible d'écrire l'équivalent bien connu de l'expression classique de la réponse

du détecteur à deux photons (Eq. 1.7) pour un champ monomode de fréquence ω sous la forme :

$$\langle N_2 \rangle = \beta(\omega) \langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \hat{a}(t) \rangle \quad (\text{D.1})$$

où $\hat{a}(t)$ est l'opérateur de destruction en temps et $\beta(\omega)$ le coefficient d'absorption à deux photons. En utilisant ce formalisme, l'évolution du coefficient $\beta(\omega)$ est donnée par une équation de la forme¹ :

$$\beta(\omega) \propto \begin{cases} \frac{(2\hbar\omega - E_g)^{3/2}}{(\hbar\omega)^4} & \text{si } E_g > \hbar\omega > \frac{E_g}{2} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (\text{D.2})$$

où E_g est l'énergie de la bande interdite du GaAs [Sze06]. La figure D.1(a) présente la variation théorique du coefficient d'absorption à deux photons (dégénéré) en fonction de la longueur d'onde incidente. On voit instantanément que l'absorption à deux photons de longueurs d'ondes élevées va conduire, pour un nombre donné de photons incidents, à une réponse plus faible que celle de deux photons à des longueurs d'ondes courtes. Ce point est par ailleurs bien illustré sur la figure 4.10(a) qui, rappelons le, présente distinctement les contributions du signal et du complémentaire à un interférogramme d'auto-corrélation à deux photons. L'introduction du coefficient d'absorption à deux photons apparaît donc nécessaire si l'on veut expliquer la différence entre la contribution du signal seul ou du complémentaire seul. Nous allons voir désormais ce qu'il en est de l'absorption non dégénérée d'un photon signal et complémentaire.

D.1.2 Formulation quantique de l'absorption à deux photons non dégénérés

De manière analogue, nous pouvons étendre l'équation 1.30, régissant la réponse du détecteur lors de l'absorption à deux photons non dégénérés, au formalisme semi-classique² :

$$\langle N_2 \rangle = \beta(\omega_1) \langle \hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_1(t) \hat{a}_1(t) \rangle + \beta(\omega_2) \langle \hat{a}_2^\dagger(t) \hat{a}_2^\dagger(t) \hat{a}_2(t) \hat{a}_2(t) \rangle + 4\beta(\omega_1, \omega_2) \langle \hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_2^\dagger(t) \hat{a}_2(t) \hat{a}_1(t) \rangle \quad (\text{D.3})$$

où $\hat{a}_1(t)$ (resp. $\hat{a}_2(t)$) est l'opérateur de destruction en temps associé au champ 1 (2) de fréquence ω_1 (ω_2) avec $\omega_1 \neq \omega_2$. Dans cette équation, $\beta(\omega_1, \omega_2)$ est le coefficient d'absorption à deux photons non

1. Il s'agit en fait d'une adaptation de l'Eq. 1.20 à sa formulation en "nombre de photons" présentée à l'Eq. D.1.

2. On notera ici que les équations non linéaires sont en générales données pour deux champs non corrélés de fréquences ω_1 et ω_2 différentes que nous relierons à la réponse du détecteur de la manière suivante :

$$\begin{cases} \frac{\partial I_1}{\partial z} = -\beta_{11} I_1^2 - 2\beta_{12} I_1 I_2 \\ \frac{\partial I_2}{\partial z} = -\beta_{22} I_2^2 - 2\beta_{21} I_1 I_2 \end{cases} \Rightarrow \langle N_2 \rangle \approx -\frac{L}{2\hbar} \left(\frac{1}{\omega_1} \frac{\partial I_1}{\partial z} + \frac{1}{\omega_2} \frac{\partial I_2}{\partial z} \right) = \beta(\omega_1) \left(\frac{I_1}{\hbar\omega_1} \right)^2 + 4\beta(\omega_1, \omega_2) \frac{I_1}{\hbar\omega_1} \frac{I_2}{\hbar\omega_2} + \beta(\omega_2) \left(\frac{I_2}{\hbar\omega_2} \right)^2$$

où I_1 et I_2 sont les intensités respectivement associées aux champs 1 et 2. $\beta(\omega_1, \omega_2)$ est défini de manière à être continu et à respecter les deux conditions limites $\beta(\omega_1, \omega_1) = \beta(\omega_1)$ et $\beta(\omega_2, \omega_2) = \beta(\omega_2)$ [Hut92]. Ces équations ne sont pas valables si les fréquences ω_1 et ω_2 sont égales. Il est nécessaire d'exprimer les équations non linéaires à l'aide des amplitudes des champs en fréquences pour généraliser ce traitement. C'est ce que nous allons faire directement dans notre traitement semi-classique

dégénérés donné par une expression de la forme [Hut92] :

$$\beta(\omega_1, \omega_2) \propto \frac{[\hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 - E_g]^{3/2}}{4\hbar^2\omega_1\omega_2} \left[\frac{1}{\hbar\omega_1} + \frac{1}{\hbar\omega_2} \right]^2 \quad (\text{D.4})$$

dont le facteur de proportionnalité va permettre de respecter les conditions limites :

$$\begin{cases} \beta(\omega_1, \omega_1) = \beta(\omega_1) \\ \beta(\omega_2, \omega_2) = \beta(\omega_2) \end{cases} \quad (\text{D.5})$$

Dans le cas d'une source de photons jumeaux loin de la dégénérescence telle que celle que nous avons utilisée au chapitre 4, les fréquences sont celles du signal ω_s et du complémentaire $\omega_c = \omega_p - \omega_s$. La figure D.1(b) montre l'évolution théorique du coefficient d'absorption à deux photons non dégénérés d'un photon signal et d'un photon complémentaire pour différentes longueurs d'onde de pompe. Ce coefficient est à peu près constant sur toute la gamme de longueurs d'ondes que nous avons explorées. Un développement limité au premier ordre conduit à :

$$\beta(\omega_s, \omega_c) = \beta(\omega_p) \left[1 + 3 \left(\frac{\Delta\lambda}{\lambda_s} \right)^2 \right] \quad (\text{D.6})$$

où λ_s est la fréquence de l'onde signal et $\Delta\lambda = |\lambda_s - 2\lambda_p|$ l'écart en longueur d'onde à la dégénérescence. Un écart $\Delta\lambda$ de 150 nm conduit ainsi à une déviation par rapport à la dégénérescence de l'ordre de 3% seulement. Toutefois, si le coefficient non dégénéré est constant, le système total est quant à lui décrit par trois coefficients d'absorption à deux photons $\beta(\omega_s)$, $\beta(\omega_c)$ et $\beta(\omega_s, \omega_c)$ qui sont bien différents.

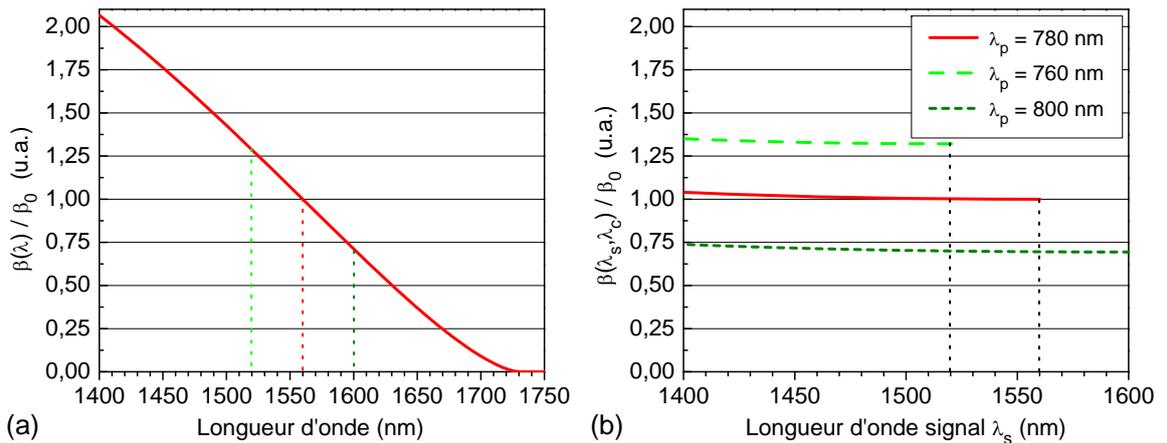


Figure D.1: Évolution théorique des coefficients d'absorption à deux photons (a) dégénérés en fonction de la longueur d'onde incidente et (b) non dégénérés en fonction de la longueur d'onde signal issu d'une source de photons jumeaux pompée à différentes longueurs d'ondes ($\lambda_p = 780$ nm (rouge) ; 760 nm (vert clair) ; 800 nm (vert foncé)).

D.1.3 Modélisation des mesures d'intercorrélation

Nous allons ici nous intéresser à la prise en compte du coefficient d'absorption à deux photons dans la mesure d'intercorrélation. Sous certaines approximations, que nous allons nous empresser de souligner, l'expression de la réponse à deux photons précédente (Eq. D.3) est la généralisation de notre modélisation du chapitre 4 (Eq. C.27). Deux hypothèses supplémentaires sont toutefois nécessaires :

- Les longueurs d'ondes signal λ_s et complémentaire λ_c sont suffisamment loin de la dégénérescence pour être considérées séparément.
- Les largeurs spectrales associées aux ondes signal, centrée en ω_{s0} , et complémentaire, centrée en ω_{c0} , sont assez fines pour que l'on puisse considérer que les différents coefficients d'absorption à deux photons soient constant *i.e.* :

$$\beta(\omega_1, \omega_2) = \begin{cases} \beta_{ss} & \text{si } (\omega_1, \omega_2) = (\omega_s, \omega_s) \\ \beta_{cc} & \text{si } (\omega_1, \omega_2) = (\omega_c, \omega_c) \\ \beta_{sc} & \text{si } (\omega_1, \omega_2) = (\omega_s, \omega_c) \end{cases} \quad (\text{D.7})$$

Il suffit alors de poser $\hat{a}_1(t) = \hat{a}_c(t)$ et $\hat{a}_2(t) = \hat{a}_c(t + \tau)$ pour aboutir à l'expression souhaitée. En supposant que les pertes sur chacune des ondes sont négligeables, l'introduction de la dépendance spectrale de $\beta(\omega_1, \omega_2)$ conduit à modifier l'équation C.28 sous la forme suivante :

$$\frac{S_{2,Inter}(\tau)}{S_{2,Inter}^0} = 1 + \frac{2\beta_{sc}}{\beta_{ss} + \beta_{cc}} \left[1 + \frac{\left| \int_0^{\omega_p/2} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega) e^{i[\phi_c(\omega) + \phi_s(\omega_p - \omega)]} e^{i\omega\tau} \right|^2}{\left(\int_0^{\omega_p/2} d\omega |\nu(\omega)|^2 \right)^2} \right] \quad (\text{D.8})$$

où :

$$\begin{aligned} S_{2,Inter}^0 &= \beta_{ss} \langle \hat{a}_s^\dagger(t) \hat{a}_s^\dagger(t) \hat{a}_s(t) \hat{a}_s(t) \rangle + \beta_{cc} \langle \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_c^\dagger(t) \hat{a}_c(t) \hat{a}_c(t) \rangle \\ S_{2,Inter}^0 &= \frac{1}{4\pi^2} [\beta_{ss} + \beta_{cc}] \left(\int_0^{\omega_p/2} d\omega |\nu(\omega)|^2 \right)^2. \end{aligned} \quad (\text{D.9})$$

L'approximation faite au chapitre 4 ($\beta_{ss} = \beta_{cc} = \beta_{sc}$) lors de la modélisation va introduire une erreur simplement donnée par le rapport entre la moyenne arithmétique des coefficients dégénérés $\frac{\beta_{ss} + \beta_{cc}}{2}$ et la valeur du coefficient non dégénéré β_{sc} . La valeur de cet écart à l'idéalité est présentée sur la figure D.2(a). Dans notre cas ($\lambda_p = 780$ nm), l'erreur maximum introduite est d'environ 7% et conduit à une erreur de l'ordre 1% sur la réponse à deux photons (Fig. D.2(b)). On notera de plus sur la figure D.2(b) que la réponse idéale ($\beta_{sc} = \beta_{ss} = \beta_{cc} = 1$) correspond est la même que celle obtenue en prenant $\beta_{sc} = \frac{\beta_{ss} + \beta_{cc}}{2}$.

Par ailleurs, il faut souligner ici que notre procédure de normalisation – décrite à la partie 4.6 – appliquée à l'équation D.8 permet de s'affranchir complètement de cette déviation et conduit bien à

la fonction d'intercorrélation :

$$g_{sc}^{(2)}(\tau) = \left(\frac{S_{2,Inter}(\tau)}{S_{2,Inter}^0} - 1 \right) \frac{1}{\left(\frac{S_{2,Inter}(\tau \gg \tau_c)}{S_{2,Inter}^0} - 1 \right)} = 1 + \frac{\left| \int_0^{\omega_p/2} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega) e^{i[\phi_c(\omega) + \phi_s(\omega_p - \omega)]} e^{i\omega\tau} \right|^2}{\left(\int_0^{\omega_p/2} d\omega |\nu(\omega)|^2 \right)^2}. \quad (D.10)$$

La prise en compte de la variation du coefficient d'absorption à deux photons β en fonction de la longueur d'onde n'a aucune influence sur les mesures de la fonction d'intercorrélation $g_{sc}^{(2)}(\tau)$ réalisées au chapitre 4.

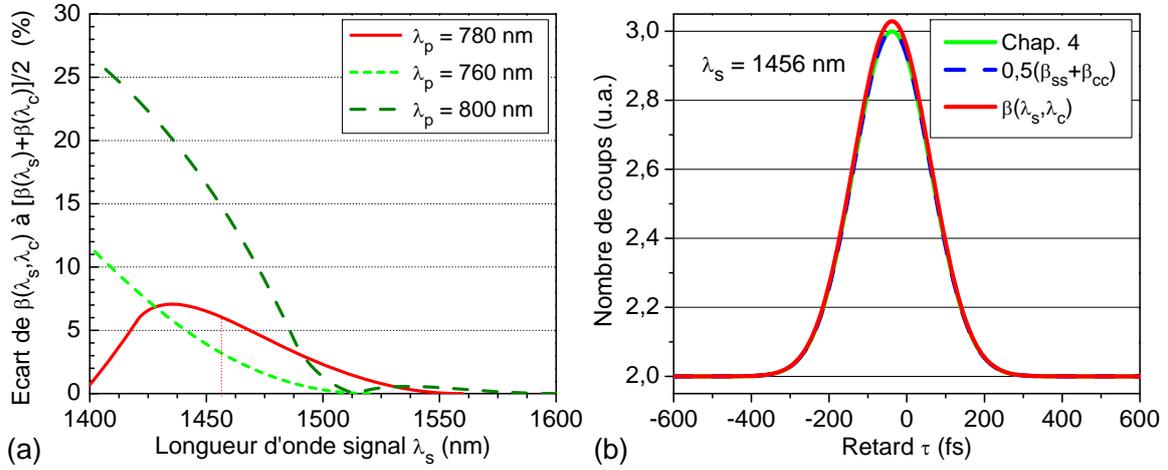


Figure D.2: (a) Écart relatif entre la valeur du coefficient d'absorption à deux photons non dégénérés β_{sc} et celle de la moyenne arithmétique des coefficients dégénérés $\frac{\beta_{ss} + \beta_{cc}}{2}$ en fonction de la longueur d'onde signal issu d'une source de photons jumeaux pompée à différentes longueurs d'ondes ($\lambda_p = 780$ nm (rouge) ; 760 nm (vert clair) ; 800 nm (vert foncé)). L'écart affiché est relatif à la moyenne arithmétique de β à la longueur signal λ_s . (b) Modélisation de l'expérience d'intercorrélation pour différentes approximations des coefficients d'absorption dans les conditions expérimentales les plus défavorables rencontrées au chapitre 4 ($\lambda_p = 780$ nm ; $\lambda_s = 1456$ nm).

D.2 Influence du coefficient d'absorption à deux photons sur les mesures d'autocorrélation

D.2.1 Modélisation des mesures d'autocorrélation

La modélisation du signal à deux photons dans les expériences d'autocorrélation est un peu plus complexe – surtout longue en fait – mais reste basée sur les mêmes hypothèses que celles utilisées dans la partie précédente. Nous nous contenterons ici d'exposer les grandes lignes de notre démarche. Pour pouvoir appliquer ces deux hypothèses, il suffit d'exprimer l'opérateur $\hat{a}_p(z_d, t)$ introduit à l'équation 4.37 comme la somme de deux opérateurs s'adressant respectivement aux domaines de fréquences

du complémentaire et du signal :

$$\hat{a}_p(z_d, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left[\int_0^{\omega_p/2} d\omega i\eta(\omega) \hat{a}(z_c, \omega) e^{-i\omega t} + \int_{\omega_p/2}^{\infty} d\omega i\eta(\omega) \hat{a}(z_c, \omega) e^{-i\omega t} \right]. \quad (\text{D.11})$$

Il est alors possible de calculer le nouvel “élément clé” en prenant en compte les coefficients d'absorption à deux photons qui serait la transcription du celui effectué à l'annexe C.2. En introduisant ensuite cet élément dans l'équation de la réponse à deux photons des expériences d'autocorrélation (Eq. C.15), on aboutit, toutes simplifications faites – négligeant pertes et dispersion –, à l'équation désirée :

$$\frac{S_2(\tau)}{S_2^0} = 1 + 2G^{(2)}(\tau) + 4 \operatorname{Re} [F_1(\tau)] + \operatorname{Re} [F_2(\tau)] \quad (\text{D.12})$$

où en posant $\Phi_0 = \int_0^{\omega_p} d\omega |\nu(\omega)|^2$ le flux de photons incident :

$$S_2^0 = [\beta_{ss} + \beta_{cc} + 2\beta_{sc}] \Phi_0^2 + 2\beta_{sc} \left| \int_0^{\omega_p} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega) \right|^2 \quad (\text{D.13})$$

et où les différentes fonctions de τ s'écrivent “simplement” :

$$\begin{aligned} G^{(2)}(\tau) &= \frac{\Phi_0^2}{2S_2^0} [\beta_{ss} + \beta_{cc} + 2\beta_{sc}] + \frac{2}{S_2^0} \beta_{sc} \left| \int_0^{\omega_p} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega) e^{-i\omega\tau} \right|^2 \\ &+ \frac{\Phi_0^2}{2S_2^0} \left[\beta_{ss} |g_s^{(1)}(\tau)|^2 + \beta_{cc} |g_c^{(1)}(\tau)|^2 + 2\beta_{sc} \operatorname{Re} [g_s^{(1)*}(\tau) g_c^{(1)}(\tau)] \right] \end{aligned} \quad (\text{D.14})$$

$$\begin{aligned} \operatorname{Re} [F_1(\tau)] &= \frac{\Phi_0^2}{2S_2^0} \operatorname{Re} \left[(\beta_{ss} + \beta_{sc}) g_s^{(1)}(\tau) + (\beta_{cc} + \beta_{sc}) g_c^{(1)}(\tau) \right] \\ &+ \frac{1}{S_2^0} \beta_{sc} \operatorname{Re} \left[\int_0^{\omega_p} d\omega \nu^*(\omega) \mu^*(\omega) e^{-i\omega\tau} \times \int_0^{\omega_p} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega) \right] \\ &+ \frac{1}{S_2^0} \beta_{sc} \operatorname{Re} \left[\int_0^{\omega_p} d\omega \nu^*(\omega) \mu^*(\omega) \times \int_0^{\omega_p} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega) e^{-i\omega\tau} \right] \end{aligned} \quad (\text{D.15})$$

$$\begin{aligned} \operatorname{Re} [F_2(\tau)] &= \frac{\Phi_0^2}{S_2^0} \operatorname{Re} \left[\beta_{ss} (g_s^{(1)}(\tau))^2 + \beta_{cc} (g_c^{(1)}(\tau))^2 + 2\beta_{sc} (g_s^{(1)}(\tau) g_c^{(1)}(\tau)) \right] \\ &+ \frac{2}{S_2^0} \beta_{sc} \cos \omega_p \tau \left| \int_0^{\omega_p} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega) \right|^2 \end{aligned} \quad (\text{D.16})$$

Avant d'aller plus avant dans l'analyse de l'influence des coefficients d'absorption à deux photons, notons tout d'abord que la valeur normalisée de la réponse en $\tau = 0$ reste inchangée – et égale à huit –

tout comme l'évolution globale pour les très grands retards³ :

$$\begin{cases} \frac{S_2(0)}{S_2^0} & = 8 \\ \frac{S_2(\tau \gg \tau_c)}{S_2^0} & = 1 + \frac{\Phi_0^2}{2S_2^0} [\beta_{ss} + \beta_{cc} + 2\beta_{sc}] + \frac{2}{S_2^0} \beta_{sc} \cos \omega_p \tau \left| \int_0^{\omega_p} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega) \right|^2 \end{cases} \quad (\text{D.17})$$

Nous allons voir désormais quelques conséquences générales sur les mesures réalisées au chapitre 4, en particulier sur l'allure des interférogrammes et la mesure du degré de cohérence d'ordre deux.

D.2.2 Conséquences sur l'évaluation du degré de cohérence du second ordre $g^{(2)}(\tau)$

En utilisant la méthode présentée au chapitre 3 (Eq. 3.10), le degré de cohérence d'ordre deux est obtenu à partir de la fonction $G^{(2)}(\tau)$:

$$\begin{aligned} g_\beta^{(2)}(\tau) = \frac{G^{(2)}(\tau)}{G^{(2)}(\infty)} &= 1 + \frac{1}{[\beta_{ss} + \beta_{cc} + 2\beta_{sc}]} \left[\beta_{ss} \left| g_s^{(1)}(\tau) \right|^2 + \beta_{cc} \left| g_c^{(1)}(\tau) \right|^2 + 2\beta_{sc} \operatorname{Re} \left[g_s^{(1)*}(\tau) g_c^{(1)}(\tau) \right] \right] \\ &+ \frac{1}{\Phi_0^2} \frac{4\beta_{sc}}{[\beta_{ss} + \beta_{cc} + 2\beta_{sc}]} \left| \int_0^{\omega_p} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega_p - \omega) e^{-i\omega\tau} \right|^2. \end{aligned} \quad (\text{D.18})$$

On voit alors apparaître une influence différente de celle rencontrée lors du traitement des expériences d'intercorrélations. Nous allons distinguer deux influences distinctes associées à la partie incohérente et à la partie cohérente.

Influence de β sur la partie incohérente

La partie incohérente de la fonction d'autocorrélation mesurée représentant les coïncidences de photons issus de paires différentes, du signal seul et du complémentaire seul s'écrit :

$$g_{\text{inc.},\beta}^{(2)}(\tau) = 1 + \frac{1}{[\beta_{ss} + \beta_{cc} + 2\beta_{sc}]} \left[\beta_{ss} \left| g_s^{(1)}(\tau) \right|^2 + \beta_{cc} \left| g_c^{(1)}(\tau) \right|^2 + 2\beta_{sc} \operatorname{Re} \left[g_s^{(1)*}(\tau) g_c^{(1)}(\tau) \right] \right]. \quad (\text{D.19})$$

Les conséquences sur la mesure sont alors bien visibles :

1. la contribution des coïncidences dues au complémentaire seul va être masquée devant les autres du fait de la faible valeur de β_{cc} ($\beta_{cc} \ll \beta_{ss}, \beta_{sc}$) ;
2. Le contraste de la modulation à $(\omega_s - \omega_c)$ est donné par l'écart entre la valeur de β_{sc} et la moyenne arithmétique des coefficients dégénérés $\frac{\beta_{ss} + \beta_{cc}}{2}$ (Fig. D.2) ;
3. Dans le cas d'une source chaotique, la valeur en $\tau = 0$ est bien de $g_{\text{Inc.},\beta}^{(2)}(0)$.

Si la contribution du *bunching* de photon dû au complémentaire seul est masquée, cette propriété est tout de même représentée par le terme "croisé". Si l'on suppose que le temps de cohérence des faisceaux signal et complémentaire est égal, la prise en compte des différents coefficients n'a alors que

³ La valeur du signal pour les très grands retards tend vers une constante plus une fonction oscillante à la fréquence de pompe ω_p .

peu d'influence comparable, comme dans la partie D.1, à l'écart relatif entre la valeur du coefficient non dégénéré et la moyenne des coefficients dégénérés.

Influence de β sur la partie cohérente

La partie cohérente de la fonction d'autocorrélation mesurée représentant les coïncidences exactes des photons issus d'une même paire s'écrit:

$$g_{\text{Coh.},\beta}^{(2)}(\tau) = \frac{1}{\Phi_0^2} \frac{4\beta_{sc}}{[\beta_{ss} + \beta_{cc} + 2\beta_{sc}]} \left| \int_0^{\omega_p} d\omega \nu(\omega) \mu(\omega_p - \omega) e^{-i\omega\tau} \right|^2 = \frac{4\beta_{sc}}{[\beta_{ss} + \beta_{cc} + 2\beta_{sc}]} g_{\text{Coh.}}^{(2)}(\tau). \quad (\text{D.20})$$

L'équation ci-dessus est porteuse d'excellentes nouvelles :

1. l'amplitude de la modulation mesurée ne va pas dépendre de la valeur des coefficients d'absorption ;
2. l'écart à l'idéalité est donné par le rapport :

$$\frac{g_{\text{Coh.}}^{(2)}(\tau)}{g_{\text{Coh.},\beta}^{(2)}(\tau)} = \frac{1}{2} \left[1 + \frac{\beta_{ss} + \beta_{cc}}{2} \frac{1}{\beta_{sc}} \right] \quad (\text{D.21})$$

dont l'évolution avec la longueur d'onde signal est présentée sur la figure D.3(a). L'erreur de mesure introduite est inférieure à 3,5 %.

Au vu des faibles erreurs introduites par la prise en compte des coefficients d'absorption à deux photons par rapport à l'incertitude de mesure expérimentale, leur influence est bien négligeable sur la partie cohérente.

Conséquences globale sur la mesure de $g^{(2)}(\tau)$

La figure D.3(b) représente la modélisation du degré de cohérence d'ordre deux dans les conditions expérimentales les plus défavorables rencontrées au chapitre 4. On voit alors que la courbe idéale et celle prenant en compte l'influence de la variation du coefficient d'absorption à deux photons sont très proches, ce qui justifie de la non prise en compte de la dépendance spectrale du coefficient d'absorption à deux photons.

D.2.3 Conséquences sur les fonctions oscillantes $F_1(\tau)$ et $F_2(\tau)$

Nous nous contenterons dans cette partie d'avoir des arguments qualitatifs sur les deux fonctions oscillantes et en particulier sur l'intensité des fréquences représentées.

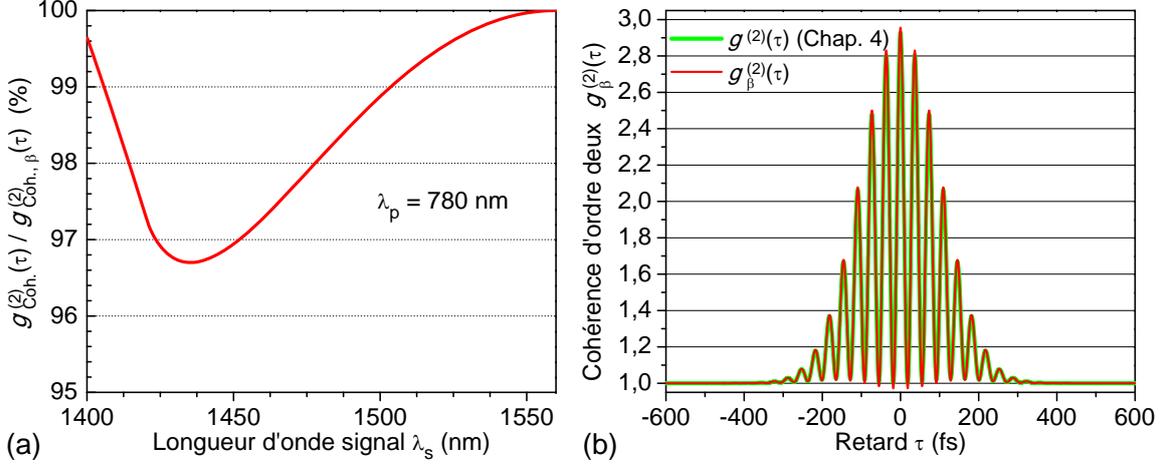


Figure D.3: (a) Rapport de la partie cohérente du degré de cohérence d'ordre deux idéal et de celle incluant l'effet de la mesure. (b) Modélisation du degré de cohérence d'ordre deux mesuré dans le cas idéal (vert) et avec prise en compte des coefficients d'absorption à deux photons.

Influence de β sur les oscillations du premier ordre

Il s'agit ici de s'intéresser à la fonction $F_1(\tau)$ donnée à l'équation D.15. Deux composantes fréquentielles majeures sont présentes, centrées en ω_{s0} et ω_{c0} . On voit que, du fait que $\beta_{ss} > \beta_{cc}$ la composante oscillant à ω_{c0} va être moins intense que celle oscillant à ω_{s0} . En régime de fort gain et dans le cas extrêmes où $\beta_{cc} = 0$ et où l'on suppose que $\beta_{sc} = \frac{\beta_{ss} + \beta_{cc}}{2}$, l'équation D.15 se réécrit :

$$\text{Re}[F_1(\tau)] = \frac{1}{3} \text{Re} \left[\frac{3g_s^{(1)}(\tau) + g_c^{(1)}(\tau)}{4} \right] + \frac{1}{3} \text{Re} \left[\frac{\int_0^{\omega_p} d\omega \nu^{*2}(\omega) \times \int_0^{\omega_p} d\omega \nu(\omega)^2 e^{-i\omega\tau}}{\Phi_0^2} \right]. \quad (\text{D.22})$$

Le rapport en intensité des fréquences signal sur complémentaire est de 2. Les deux composantes sont donc bien visibles sur l'interférogramme.

Influence de β sur les oscillations du second ordre

Il s'agit ici de s'intéresser à la fonction $F_2(\tau)$ donnée à l'équation D.16. Dans ce cas trois composantes fréquentielles ressortent : $2\omega_{s0}$, $2\omega_{c0}$ et $\omega_{c0} + \omega_{s0} = \omega_p$. Les intensités relatives sont alors de :

- β_{ss} pour la composante à $2\omega_{s0}$;
- β_{cc} pour la composante à $2\omega_{c0}$;
- $4\beta_{sc}$ pour la composante à $\omega_{c0} + \omega_{s0} = \omega_p$.

La composante oscillant à $2\omega_{c0}$ va alors être masquée devant les autres composantes tandis que la composante la plus intense sera celle due aux interférences signal complémentaire.

D.2.4 Bilan de l'influence sur les mesures d'autocorrélation

Suite à l'étude des différentes fonctions composant le signal d'autocorrélation mesuré nous pouvons souligner quelques points principaux, illustrés sur la figure D.4, de l'influence de la variation du coefficient d'absorption à deux photons sur nos mesures et le traitement des interférogrammes d'autocorrélation réalisés au chapitre 4 :

1. Dans les cas expérimentaux les plus défavorables, la faiblesse de la constante d'absorption à deux photons du complémentaire va masquer dans la fonction de corrélation et la fonction oscillante $F_2(\tau)$ les caractéristiques inhérentes uniquement aux complémentaires, c'est à dire ces propriétés chaotiques.
2. Les propriétés de cohérence du complémentaires – celles du point 1 ci-dessus – peuvent néanmoins être évaluées par le biais de la fonction $F_1(\tau)$! Elles demeurent donc aisément accessibles par notre mesure.
3. **La composante due à l'intercorrélation entre signal et complémentaire n'est que très faiblement affectée par les coefficients d'absorption (quelques %).**
4. **La mesure de la fonction de corrélation du second ordre n'est globalement que très peu affectée** (quelques % au plus). En particulier, on soulignera que l'allure de la partie cohérente $g_{\text{Coh}}^{(2)}$ est affectée de manière négligeable par les coefficients d'absorption à deux photons. Seule une déviation de sa valeur maximal de 3,5 % – au plus – est observable dans certains cas particuliers.

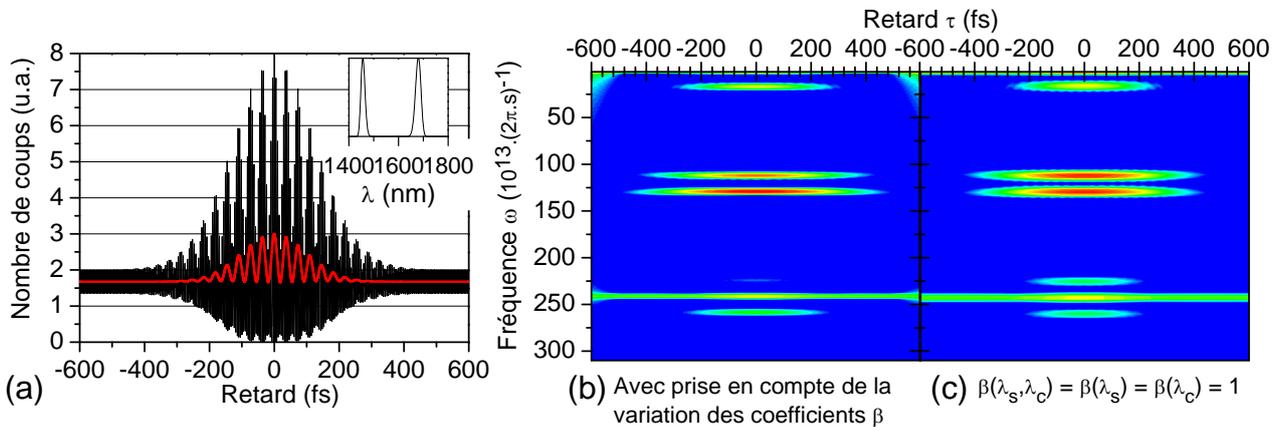


Figure D.4: (a) Modélisation avec prise en compte des coefficients d'absorption à deux photons d'un interférogramme à deux photons d'une source de photons jumeaux très loin de la dégénérescence (spectre en encart). (b) Spectrogramme de l'interférogramme à deux photons présenté à la figure (a). (c) Spectrogramme de l'interférogramme à deux photons modélisé sans prise en compte des coefficients β ($\beta_{ss} = \beta_{cc} = \beta_{sc} = 1$; spectre de l'encart (a)).

Annexe E

Index des figures relatives à l'étude des corrélations de photons

Le tableau de la page suivante indique les figures présentant les principaux résultats présentés tout au long de la seconde partie cette étude et dans les annexes associées. Les figures associées aux modélisations théoriques, lorsqu'elles ont été présentées, sont indiquées entre parenthèses.

Type de sources	Interférogramme à deux photons	Spectrogramme	Fonction d'auto- corrélation $g^{(2)}(\tau)$	Fonction d'inter- corrélation $g_{sc}^{(2)}(\tau)$
Classiques:				
ASE	Fig. 3.4 p.70 (Fig. 3.5 p.78)	Fig. C.3(b) p.167	Fig. 3.7 p.80	
	Halogène	Fig. 3.6 p.80	Fig. C.3(a) p.167	Fig. 3.7 p.80
Photons jumeaux :				
<i>Phénomènes de dispersion forts :</i>				
à la dégenérescence	Fig. 4.5(b) p.97 (Fig. 4.16(b) p.116)		Fig. 4.15(a) p.116 (<i>id.</i>)	
	hors-dégenérescence (* : très loin)	Fig. 4.6(a) p.99 (Fig. 4.16(a) p.116)	Fig. 4.21(d) p.122	Fig. 4.15(b) p.116 (<i>id.</i>)
<i>Phénomènes de dispersion faibles ou compensés :</i>				
à la dégenérescence	Fig. 4.19(b) p.120 (Fig. C.2(a) p.167)	(Fig. C.2(b) p.167)	Fig. 4.20(a) p.121 (<i>id.</i>)	
	hors-dégenérescence	Fig. 4.19(c) p.120 (Fig. C.2(c) p.167)	Fig. 4.21(c) p.122 (Fig. C.2(d) p.167)	Fig. 4.20(b) p.121 (<i>id.</i>)
très loin de la dégenérescence	Fig. 4.22(a) p.124 (Fig. 4.22(b) p.124)	Fig. 4.22(c) p.124 (Fig. D.4(c) p.180)	Fig. 4.22(d) p.124 (<i>id.</i>)	Fig. 4.24(b) p.129 (<i>id.</i>)

Bibliographie

Bibliographie de l'auteur

Articles parus dans des revues à comité de lecture

- [Art09a] F. Boitier, J.-B. Dherbecourt, A. Godard et E. Rosencher, “Infrared quantum counting by nondegenerate two photon conductivity in GaAs”, *Appl. Phys. Lett.* **94**(8), 081112 (2009).
- [Art09b] F. Boitier, A. Godard, E. Rosencher et C. Fabre, “Measuring photon bunching at ultrashort timescale by two photon absorption in semiconductors”, *Nature phys.* **5**(4), 267–270 (2009).
- [Art10] F. Boitier, A. Godard, A. Ryasnyanskiy, N. Dubreuil, P. Delaye, C. Fabre et E. Rosencher, “Second order coherence of broadband down-converted light on ultrashort time scale determined by two photon absorption in semiconductor”, *Opt. Express* **18**(19), 20401–20408 (2010).

Articles en cours de rédaction ou de relecture

- [ArtXa] F. Boitier, A. Godard, N. Dubreuil, P. Delaye, C. Fabre et E. Rosencher, “Extrabunching of biphoton beam measured by two photon counting in a semiconductor”,
(Parution souhaitée dans *Science*).
- [ArtXb] F. Boitier, A. Godard, N. Dubreuil, P. Delaye, C. Fabre et E. Rosencher, “Two photon counting interferometry”,
(Parution souhaitée dans *Phys. Rev. A*).
- [ArtXc] F. Boitier, A. Godard, E. Rosencher et C. Fabre, “The two-photon counter”,
(Parution souhaitée dans *Phys. Rev. A*).

Conférences invitées

- [CoIn09a] F. Boitier, A. Godard, C. Fabre et E. Rosencher, “Capture des corrélations de photons aux temps ultracourts par absorption à deux photons dans les semiconducteurs : l’expérience d’Hanbury-Brown et Twiss revisitée”, dans *Coloq 11* (Société Française d’Optique, Mouans-Sartoux, 2009).

- [CoIn09b] F. Boitier, A. Godard, C. Fabre et E. Rosencher, “Photon quantum correlation measurement by two photon absorption in semi-conductors: Do blackbody photons effectively bunch?”, dans *Nonlinear Optics*, NWE3 (Optical Society of America, Honolulu, 2009).
- [CoIn09c] F. Boitier, A. Godard, E. Rosencher et C. Fabre, “Photon quantum correlation measurements by two photon absorption in semiconductors”, dans *LEOS Annual Meeting Conference Proceedings*, p. 813–814 (IEEE, Belek-Antalya, 2009).

Autres communications principales

- [Com09a] F. Boitier, J.-B. Dherbecourt, A. Godard, C. Fabre et E. Rosencher, “Absorption à deux photons non-dégénérés dans les semiconducteurs en GaAs: une courte-échelle quantique”, dans *Coloq 11* (Société Française d’Optique, Mouans-Sartoux, 2009).
- [Com09b] F. Boitier, J.-B. Dherbecourt, A. Godard et E. Rosencher, “Photon detection by non degenerate two photon absorption in GaAs: A quantum “leg up” effect”, dans *CLEO/IQEC*, IMH4 (Optical Society of America, Baltimore, 2009).
- [Com09c] F. Boitier, A. Godard, J. Bonnet, E. Rosencher et C. Fabre, “Direct evidence of intensity correlation of broadband incoherent CW sources at ultrashort timescale by second-order interferometry with a two-photon-absorption detector”, dans *CLEO/IQEC*, CTuB2 (Optical Society of America, Baltimore, 2009).
- [Com09d] F. Boitier, A. Godard, J. Bonnet, E. Rosencher et C. Fabre, “Measuring photon bunching at ultrashort timescale by two-photon absorption in semiconductors”, dans *CLEO/IQEC*, IMH1 (Optical Society of America, Baltimore, 2009).
- [Com09e] F. Boitier, A. Godard, C. Fabre et E. Rosencher, “Photon quantum correlations and two photon absorption in semiconductors”, dans *Journée Nationale des Cristaux pour l’Optique* (CNRS/MRCT CMDO, Ecully, 2009).
- [Com10a] F. Boitier, A. Godard, E. Rosencher et C. Fabre, “Two photon counting: Experiment and theory”, dans *ICONO/LAT*, IWF4 (Russian Academy of Sciences & Optical Society of America, Kazan, 2010).
- [Com10b] F. Boitier, A. Godard, E. Rosencher et C. Fabre, “Two photon counting: Theory and experiment”, dans *CLEO/IQEC*, QTuE1 (Optical Society of America, San Jose, 2010).
- [Com10c] F. Boitier, A. Ryasnyansky, N. Dubreuil, P. Delaye, A. Godard, E. Rosencher et C. Fabre, “Second order coherence of parametric light determined by two photon absorption in a semiconductor”, dans *SPIE Photonics Europe*, PE-7727-4 (SPIE, Bruxelles, 2010).
- [Com10d] F. Boitier, A. Ryasnyansky, N. Dubreuil, P. Delaye, A. Godard, E. Rosencher et C. Fabre, “Second order coherence of parametric light determined by two photon absorption in a semiconductor”, dans *CLEO/IQEC*, QTuE2 (Optical Society of America, San Jose, 2010).

Bibliographie générale

- [Abr86] I. Abram, R. K. Raj, J. L. Oudar et G. Dolique, “Direct observation of the second-order coherence of parametrically generated light”, *Phys. Rev. Lett.* **57**(20), 2516–2519 (1986).
- [Aga87] G. S. Agarwal, “Squeezing in two photon absorption from a strong coherent beam”, *Optics Comm.* **62**(3), 190–192 (1987).
- [Are66] F. T. Arecchi, E. Gatti et A. Sona, “Time distribution of photons from coherent and Gaussian sources”, *Phys. Lett.* **20**(1), 27–29 (1966).
- [Arm67] J. A. Armstrong, “Measurement of picosecond laser pulse widths”, *Appl. Phys. Lett.* **10**(1), 16–18 (1967).
- [Ass09] M. Assmann, F. Veit, M. Bayer, M. van der Poel et J. M. Hvam, “Higher-order photon bunching in a semiconductor microcavity”, *Science* **325**(5938), 297–300 (2009).
- [Ass10] M. Assmann, F. Veit, J.-S. Tempel, T. Berstermann, H. Stolz, M. van der Poel, J. M. Hvam et M. Bayer, “Measuring the dynamics of second-order photon correlation functions inside a pulse with picosecond time resolution”, *Opt. Express* **18**(19), 20229–20241 (2010).
- [Ave94] C. Aversa, J. E. Sipe, M. Sheik-Bahae et E. W. Van Stryland, “Third-order optical nonlinearities in semiconductors: The two-band model”, *Phys. Rev. B* **50**(24), 18073–18082 (1994).
- [Bal95] P. Baldi, P. Aschieri, S. Nouh, M. De Micheli, D. B. Ostrowsky, D. Delacourt et M. Papuchon, “Modeling and experimental observation of parametric fluorescence in periodically poled lithium niobate waveguides”, *IEEE J. Quantum Electron.* **31**(6), 997–1008 (1995).
- [Bal96] P. Baldi, M. Sundheimer, K. El Hadi, M. P. de Micheli et D. B. Ostrowsky, “Comparison between difference-frequency generation and parametric fluorescence in quasi-phase-matched lithium niobate stripe waveguides”, *IEEE Sel. Top. Quant. Electron.* **2**(2), 385–395 (1996).
- [Bay98] G. Baym, “The physics of Hanbury Brown-Twiss intensity interferometry: from stars to nuclear collisions”, *Acta Phys. Pol. B* **29**, 1839–1884 (1998). (arXiv:nucl-th/9804026v2).
- [Bec76] J. H. Bechtel et W. L. Smith, “Two-photon absorption in semiconductors with picosecond laser pulses”, *Phys. Rev. B* **13**(8), 3515–3522 (1976).
- [Bec07] M. Beck, “Comparing measurements of $g^{(2)}(0)$ performed with different coincidence detection techniques”, *J. Opt. Soc. Am. B* **24**(12), 2972–2978 (2007).
- [Bel64] J. A. Bellisio, C. Freed et H. A. Haus, “Noise measurements on He-Ne laser oscillators”, *Appl. Phys. Lett.* **4**(1), 5–6 (1964).

- [Ber83] M. Bertolotti, *Masers and Lasers: An Historical Approach* (IOP Publishing, Adam Hilger, Bristol, 1983).
- [Ber00] B. Berne et R. Pecora, *Dynamic Light Scattering* (Dover Publications, Dover, 2000).
- [Bla09] B. Blauensteiner, I. Herbauts, S. Bettelli, A. Poppe et H. Hubel, “Photon bunching in parametric down-conversion with continuous-wave excitation”, *Phys. Rev. A* **79**(6), 63846–6 (2009).
- [Blo59] N. Bloembergen, “Solid state infrared quantum counters”, *Phys. Rev. Lett.* **2**(3), 84–85 (1959).
- [Bou97] D. Bouwmeester, J.-W. Pan, K. Mattle, M. Eibl, H. Weinfurter et A. Zeilinger, “Experimental quantum teleportation”, *Nature* **390**, 575–579 (1997).
- [Bou00] D. Bouwmeester, A. K. Ekert et A. Zeilinger, *The Physics of Quantum Information* (Springer-Verlag, New York, 2000).
- [Boy92] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, San Diego, 1992).
- [Bra56] E. Brannen et H. I. S. Ferguson, “The question of correlation between photons in coherent light rays”, *Nature* **178**, 481–482 (1956).
- [Bra64] R. Braunstein et N. Ockman, “Optical double-photon absorption in CdS”, *Phys. Rev.* **134**(2A), A499–A507 (1964).
- [Bra74] D. J. Bradley et G. H. C. New, “Ultrashort pulse measurements”, *Proc. IEEE* **62**(3), 313–345 (1974).
- [Bre04] A. Bresson, X. Orlik, A. Manchon et F. Lienhart, “Continuous laser source for cooling Rubidium atoms using second harmonic generation from a PPLN crystal”, dans *CLEO/IQEC* (Optical Society of America, 2004).
- [Bro10] Y. Bromberg, Y. Lahini, E. Small et Y. Silberberg, “Hanbury Brown and Twiss interferometry with interacting photons”, *Nature Photon.* **4**(10), 721–726 (2010).
- [Bur70] D. C. Burnham et D. L. Weinberg, “Observation of simultaneity in parametric production of optical photon pairs”, *Phys. Rev. Lett.* **25**(2), 84–87 (1970).
- [But90] P. N. Butcher et D. Cotter, *The Elements of Nonlinear Optics* (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1990).
- [Bye68] R. L. Byer et S. E. Harris, “Power and bandwidth of spontaneous parametric emission”, *Phys. Rev.* **168**(3), 1064–1068 (1968).
- [Cag73] B. Cagnac, G. Grynberg et F. Biraben, “Spectroscopie d’absorption multiphotonique sans effet Doppler”, *J. Phys. France* **34**(10), 845–858 (1973).
- [Chi06] S. H. Chin, Y. J. Kim, H. S. Song et D. Y. Kim, “Complete chirp analysis of a gain-switched pulse using an interferometric two-photon absorption autocorrelation”, *Appl. Opt.* **45**(29), 7718–7722 (2006).
- [CT77] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Laloe, *Quantum Mechanics* (John Wiley & Sons, 1977).

-
- [Cui08] H. Y. Cui, Z. F. Li, Z. L. Liu, C. Wang, X. S. Chen, X. N. Hu, Z. H. Ye et W. Lu, “Modulation of the two-photon absorption by electric fields in HgCdTe photodiode”, *Appl. Phys. Lett.* **92**(2), 021128–3 (2008).
- [Cum74] H. Z. Cummins et E. R. Pike, *Photon Correlation Spectroscopy and Light Beating Spectroscopy* (Plenum Press, New York, 1974).
- [Day05] B. Dayan, A. Pe’er, A. A. Friesem et Y. Silberberg, “Nonlinear interactions with an ultrahigh flux of broadband entangled photons”, *Phys. Rev. Lett.* **94**(4), 043602–4 (2005).
- [Day07] B. Dayan, “Theory of two-photon interactions with broadband down-converted light and entangled photons”, *Phys. Rev. A* **76**(4), 043813–19 (2007).
- [Die06] J.-C. Diels et W. Rudolph, *Ultrashort Laser Pulse Phenomena* (Academic Press, Oxford, 2006), second éd.
- [Dou10] A. Dousse, J. Suffczynski, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaitre, I. Sagnes, J. Bloch, P. Voisin et P. Senellart, “Ultrabright source of entangled photon pairs”, *Nature* **466**, 217–220 (2010).
- [Dud06] J. M. Dudley, G. Genty et S. Coen, “Supercontinuum generation in photonic crystal fiber”, *Rev. Mod. Phys.* **78**(4), 1135–1184 (2006).
- [Duh09] M. Duhant, *Génération de supercontinuum au delà du proche infrarouge*, Mémoire de Master, Université Rennes 1 - Onera (2009).
- [Dvo94] M. D. Dvorak, W. A. Schroeder, D. R. Andersen, A. L. Smirl et B. S. Wherrett, “Measurement of the anisotropy of two-photon absorption coefficients in zincblende semiconductors”, *IEEE J. Quantum Electron.* **30**(2), 256–268 (1994).
- [Est68] L. Esterowitz, A. Schnitzler, J. Noonan et J. Bahler, “Rare earth infrared quantum counter”, *Appl. Opt.* **7**(10), 2053–2070 (1968).
- [Fan61] U. Fano, “Quantum theory of interference effects in the mixing of light from phase independent sources”, *Am. J. Phys.* **29**(8), 539–545 (1961).
- [Fej92] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt et R. L. Byer, “Quasi-phase-matched 2nd harmonic-generation - tuning and tolerances”, *IEEE J. Quantum Electron.* **28**(11), 2631–2654 (1992).
- [Fel57] P. Fellgett, “The question of correlation between photons in coherent beams of light”, *Nature* **179**, 956–957 (1957).
- [Fol02a] H. Folliot, M. Lynch, A. L. Bradley, L. A. Dunbar, J. Hegarty, J. F. Donegan, L. P. Barry, J. S. Roberts et G. Hill, “Two-photon absorption photocurrent enhancement in bulk AlGaAs microcavities”, *Appl. Phys. Lett.* **80**(8), 1328–3 (2002).
- [Fol02b] H. Folliot, M. Lynch, A. L. Bradley, T. Krug, L. A. Dunbar, J. Hegarty, J. F. Donegan et L. P. Barry, “Two-photon-induced photoconductivity enhancement in semiconductor microcavities: A theoretical investigation”, *J. Opt. Soc. Am. B* **19**(10), 2396–2402 (2002).
- [For84] R. L. Fork, O. E. Martinez et J. P. Gordon, “Negative dispersion using pairs of prisms”, *Opt. Lett.* **9**(5), 150–152 (1984).

- [Fox06] M. Fox, *Quantum Optics: An Introduction* (Oxford Univ. Press, Oxford, 2006).
- [Fre65] C. Freed et H. A. Haus, "Photoelectron statistics produced by a laser operating below the threshold of oscillation", *Phys. Rev. Lett.* **15**(25), 943–946 (1965).
- [Fre66] C. Freed et H. A. Haus, "1A1–Photoelectron statistics produced by a laser operating below and above the threshold of oscillation", *IEEE J. Quantum Electron.* **2**(8), 190–195 (1966).
- [Fri85] S. Friberg, C. K. Hong et L. Mandel, "Measurement of time delays in the parametric production of photon pairs", *Phys. Rev. Lett.* **54**(18), 2011–2013 (1985).
- [Gar06a] H. Garcia, "Tunneling assisted two-photon absorption: The nonlinear Franz-Keldysh effect", *Phys. Rev. B* **74**(3), 035212–6 (2006).
- [Gar06b] H. Garcia et R. Kalyanaraman, "Phonon-assisted two-photon absorption in the presence of a dc-field: The nonlinear Franz-Keldysh effect in indirect gap semiconductors", *J. Phys. B* **39**(12), 2737–2746 (2006).
- [GB89] J. Gea-Banacloche, "Two-photon absorption of nonclassical light", *Phys. Rev. Lett.* **62**(14), 1603–1606 (1989).
- [Gen07] G. Genty, S. Coen et J. M. Dudley, "Fiber supercontinuum sources (Invited)", *J. Opt. Soc. Am. B* **24**(8), 1771–1785 (2007).
- [Geo95] N. P. Georgiades, E. S. Polzik, K. Adamatsu, H. J. Kimble et A. S. Parkins, "Nonclassical excitation for atoms in a squeezed vacuum", *Phys. Rev. Lett.* **75**(19), 3426–3429 (1995).
- [Geo97] N. P. Georgiades, E. S. Polzik et H. J. Kimble, "Atoms as nonlinear mixers for detection of quantum correlations at ultrahigh frequencies", *Phys. Rev. A* **55**(3), R1605–R1608 (1997).
- [Geo99] N. P. Georgiades, E. S. Polzik et H. J. Kimble, "Quantum interference in two-photon excitation with squeezed and coherent fields", *Phys. Rev. A* **59**(1), 676–690 (1999).
- [Gil93] L. Gilles et P. L. Knight, "Two-photon absorption and nonclassical states of light", *Phys. Rev. A* **48**(2), 1582–1593 (1993).
- [Gio67] J. A. Giordmaine, P. M. Rentzepis, S. L. Shapiro et K. W. Wecht, "Two-photon excitation of fluorescence by picosecond light pulses", *Appl. Phys. Lett.* **11**(7), 216–218 (1967).
- [Gis02] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel et H. Zbinden, "Quantum cryptography", *Rev. Mod. Phys.* **74**(1), 145–195 (2002).
- [Gis07] N. Gisin et R. T. Thew, "Quantum communication", *Nature Photon.* **1**(3), 165–171 (2007).
- [Gla63] R. J. Glauber, "Photon correlations", *Phys. Rev. Lett.* **10**(3), 84–86 (1963).
- [Gla64] R. J. Glauber, "Quantum optics and electronics", dans *Les Houches Summer School*, édité par Gordon et Breach (Les Houches, 1964).
- [Gla91] R. J. Glauber et M. Lewenstein, "Quantum optics of dielectric media", *Phys. Rev. A* **43**(1), 467–491 (1991).
- [GM31] M. Göppert-Mayer, "Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen", *Annalen der Physik* **401**(3), 273–294 (1931). (Trad. par D. C. Koepke : "Elementary processes with two quantum transitions", *Ann. Phys. (Berlin)* **18**(7–8), 466–479 (2009).).

-
- [God04] A. Godard et E. Rosencher, “Energy yield of pulsed optical parametric oscillators: A rate-equation analysis”, *IEEE J. Quantum Electron.* **40**(6), 784–790 (2004).
- [Goo00] J. W. Goodman, *Statistical Optics* (Wiley Interscience, New York, 2000).
- [Gre95] C. W. Greeff et H. R. Glyde, “Anomalous Urbach tail in GaAs”, *Phys. Rev. B* **51**(3), 1778–1783 (1995).
- [Gro07] N. B. Grosse, T. Symul, M. Stobinska, T. C. Ralph et P. K. Lam, “Measuring photon anti-bunching from continuous variable sideband squeezing”, *Phys. Rev. Lett.* **98**(15), 153603–4 (2007).
- [Gry10] G. Grynberg, A. Aspect et C. Fabre, *Introduction to Quantum Optics: From the Semi-classical Approach to Quantized Light* (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 2010).
- [Ham08] K. Hammani, C. Finot, J. M. Dudley et G. Millot, “Optical rogue-wave-like extreme value fluctuations in fiber Raman amplifiers”, *Opt. Express* **16**(21), 16467–16474 (2008).
- [Hay08] A. Hayat, P. Ginzburg et M. Orenstein, “Infrared single-photon detection by two-photon absorption in silicon”, *Phys. Rev. B* **77**(12), 125219–4 (2008).
- [Hay10a] A. Hayat, A. Nevet et M. Orenstein, “Femtosecond $g^{(4)}$ measurement by HBT interferometry of an upconversion based autocorrelation”, dans *CLEO/IQEC*, p. 1–2 (Optical Society of America, 2010).
- [Hay10b] A. Hayat, A. Nevet et M. Orenstein, “Ultrafast partial measurement of fourth-order coherence by HBT interferometry of upconversion-based autocorrelation”, *Opt. Lett.* **35**(5), 793–795 (2010).
- [HB56a] R. Hanbury Brown et R. Q. Twiss, “Correlation between photons in two coherent beams of light”, *Nature* **177**, 27–29 (1956).
- [HB56b] R. Hanbury Brown et R. Q. Twiss, “The question of correlation between photons in coherent light rays”, *Nature* **178**, 1447–1448 (1956).
- [HB57] R. Hanbury Brown et R. Q. Twiss, “Interferometry of the intensity fluctuations in light. I. Basic theory: The correlation between photons in coherent beams of radiation”, *Proc. R. Soc. A* **242**(1230), 300–324 (1957).
- [HB58] R. Hanbury Brown et R. Q. Twiss, “Interferometry of the intensity fluctuations in light. II. An experimental test of the theory for partially coherent light”, *Proc. R. Soc. A* **243**(1234), 291–319 (1958).
- [Hei87] A. Heidmann, R. J. Horowicz, S. Reynaud, E. Giacobino, C. Fabre et G. Camy, “Observation of quantum noise reduction on twin laser beams”, *Phys. Rev. Lett.* **59**(22), 2555–2557 (1987).
- [Hel76] C. W. Helstrom, *Quantum Detection and Estimation Theory* (Academic Press, New York, 1976).
- [Hla08] F. Hlawatch et F. Auger, *Time-Frequency Analysis: Concepts and Methods*, Digital Signal and Image Processing (ISTE, London, 2008).

- [Hon87] C. K. Hong, Z. Y. Ou et L. Mandel, “Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference”, *Phys. Rev. Lett.* **59**(18), 2044–2046 (1987).
- [Hop63] J. J. Hopfield, J. M. Worlock et K. Park, “Two-quantum absorption spectrum of KI”, *Phys. Rev. Lett.* **11**(9), 414–417 (1963).
- [Hut90] B. Huttner, S. Serulnik et Y. Ben-Aryeh, “Quantum analysis of light propagation in a parametric amplifier”, *Phys. Rev. A* **42**(9), 5594–5600 (1990).
- [Hut92] D. C. Hutchings et E. W. Van Stryland, “Nondegenerate two-photon absorption in zinc blende semiconductors”, *J. Opt. Soc. Am. B* **9**(11), 2065–2074 (1992).
- [Isp00] R. G. Ispasoiu et T. Goodson, “Photon-number squeezing by two-photon absorption in an organic polymer”, *Optics Comm.* **178**(4–6), 371–376 (2000).
- [Jak68] E. Jakeman et E. R. Pike, “The intensity fluctuation distribution of Gaussian light”, *J. Phys. A* **1**(1), 128–138 (1968).
- [Jav90] J. Javanainen et P. L. Gould, “Linear intensity dependence of a 2-photon transition rate”, *Phys. Rev. A* **41**(9), 5088–5091 (1990).
- [Jel07] T. Jelte, J. M. McNamara, W. Hogervorst, W. Vassen, V. Krachmalnicoff, M. Schellekens, A. Perrin, H. Chang, D. Boiron, A. Aspect et C. I. Westbrook, “Comparison of the Hanbury Brown–Twiss effect for bosons and fermions”, *Nature* **445**, 402–405 (2007).
- [Joh66] F. A. Johnson, R. Jones, T. P. McLean et E. R. Pike, “Dead-time corrections to photon counting distributions”, *Phys. Rev. Lett.* **16**(13), 589–592 (1966).
- [Jun97] D. H. Jundt, “Temperature-dependent Sellmeier equation for the index of refraction, n_e , in congruent lithium niobate”, *Opt. Lett.* **22**(20), 1553–1555 (1997).
- [Jur95] C. Jurczak, K. Sengstock, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, C. I. Westbrook et A. Aspect, “Observation of intensity correlations in the fluorescence from laser cooled atoms”, *Optics Comm.* **115**(5-6), 480–484 (1995).
- [Jur96] C. Jurczak, B. Desruelle, K. Sengstock, J. Y. Courtois, C. I. Westbrook et A. Aspect, “Atomic transport in an optical lattice: an investigation through polarization-selective intensity correlations”, *Phys. Rev. Lett.* **77**(9), 1727–1730 (1996).
- [Kai61] W. Kaiser et C. G. B. Garrett, “Two-photon excitation in $\text{CaF}_2: \text{Eu}^{2+}$ ”, *Phys. Rev. Lett.* **7**(6), 229–231 (1961).
- [Kel64] P. L. Kelley et W. H. Kleiner, “Theory of electromagnetic field measurement and photoelectron counting”, *Phys. Rev. A* **136**(2A), 316–334 (1964).
- [Kik98] K. Kikuchi, “Highly sensitive interferometric autocorrelator using Si avalanche photodiode as two-photon absorber”, *Electron. Lett.* **34**(1), 123–125 (1998).
- [Kle62] D. A. Kleinman, “Laser and two-photon processes”, *Phys. Rev.* **125**(1), 87–88 (1962).
- [Kus54] P. Kusch, “Some observations of double- and triple-quantum transitions”, *Phys. Rev.* **93**(5), 1022–1025 (1954).

-
- [Kus56] P. Kusch, “Further observations of multiple-quantum transitions. saturation effects in radio-frequency transitions”, *Phys. Rev.* **101**(2), 627–636 (1956).
- [Kwi90] P. G. Kwiat, W. A. Vareka, C. K. Hong, H. Nathel et R. Y. Chiao, “Correlated two-photon interference in a dual-beam Michelson interferometer”, *Phys. Rev. A* **41**(5), 2910–2913 (1990).
- [Lam67] P. Lambropoulos, “Quantum statistics of a two-photon quantum amplifier”, *Phys. Rev.* **156**(2), 286–297 (1967).
- [Lam68] P. Lambropoulos, “Field-correlation effects in two-photon processes”, *Phys. Rev.* **168**(5), 1418–1423 (1968).
- [Lan05] C. Langrock, E. Diamanti, R. V. Roussev, Y. Yamamoto, M. M. Fejer et H. Takesue, “Highly efficient single-photon detection at communication wavelengths by use of upconversion in reverse-proton-exchanged periodically poled LiNbO₃ waveguides”, *Opt. Lett.* **30**(13), 1725–1727 (2005).
- [Lan06] L. Lanco, S. Ducci, J.-P. Likforman, X. Marcadet, J. A. W. van Houwelingen, H. Zbinden, G. Leo et V. Berger, “Semiconductor waveguide source of counterpropagating twin photons”, *Phys. Rev. Lett.* **97**(17), 173901–4 (2006).
- [Lau94] F. R. Laughton, J. H. Marsh, D. A. Barrow et E. L. Portnoi, “The two-photon absorption semiconductor waveguide autocorrelator”, *IEEE J. Quantum Electron.* **30**(3), 838–845 (1994).
- [Lec74] C. Lecompte, G. Mainfray, C. Manus et F. Sanchez, “Experimental demonstration of laser temporal coherence effects on multiphoton ionization processes”, *Phys. Rev. Lett.* **32**(6), 265–268 (1974).
- [Lec75] C. Lecompte, G. Mainfray, C. Manus et F. Sanchez, “Laser temporal-coherence effects on multiphoton ionization processes”, *Phys. Rev. A* **11**(3), 1009–1015 (1975).
- [Lee74] C. H. Lee et S. Jayaraman, “Measurement of ultrashort optical pulses by two-photon photoconductivity techniques”, *Opt. and Quant. Electron.* **6**(1), 115–120 (1974).
- [Lia05] T. Liang, L. Nunes, T. Sakamoto, K. Sasagawa, T. Kawanishi, M. Tsuchiya, G. Priem, D. Van Thourhout, P. Dumon, R. Baets et H. Tsang, “Ultrafast all-optical switching by cross-absorption modulation in silicon wire waveguides”, *Opt. Express* **13**(19), 7298–7303 (2005).
- [Lin07] Q. Lin, J. Zhang, G. Piredda, R. W. Boyd, P. M. Fauchet et G. P. Agrawal, “Dispersion of silicon nonlinearities in the near infrared region”, *Appl. Phys. Lett.* **91**(2), 021111–3 (2007).
- [Lou61] W. H. Louisell, A. Yariv et A. E. Siegman, “Quantum fluctuations and noise in parametric processes. I”, *Phys. Rev.* **124**(6), 1646–1654 (1961).
- [Lou84] R. Loudon, “Squeezing in two-photon absorption”, *Optics Comm.* **49**(1), 67–70 (1984).
- [Lou00] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light* (Oxford Univ. Press, Oxford, 2000).
- [Mai66] M. Maier, W. Kaiser et J. A. Giordmaine, “Intense light bursts in the stimulated Raman effect”, *Phys. Rev. Lett.* **17**(26), 1275–1277 (1966).

- [Man58] L. Mandel, “Fluctuations of photon beams and their correlations”, *Proc. Phys. Soc.* **72**(6), 1037–1048 (1958).
- [Man61] L. Mandel et E. Wolf, “Correlation in the fluctuating outputs from two square-law detectors illuminated by light of any state of coherence and polarization”, *Phys. Rev.* **124**(6), 1696–1702 (1961).
- [Man65] L. Mandel et E. Wolf, “Coherence properties of optical fields”, *Rev. Mod. Phys.* **37**(2), 231–287 (1965).
- [Man71] L. Mandel et E. Wolf, *Selected Papers on Coherence and Fluctuations of Light* (Dover Publication, Dover, 1971).
- [Man79] L. Mandel, “Sub-poissonian photon statistics in resonance fluorescence”, *Opt. Lett.* **4**(7), 205–207 (1979).
- [Man95] L. Mandel et E. Wolf, *Optical Coherence and Quantum Optics* (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1995).
- [McC59] C. W. McCombie, “Fluctuations in photon streams”, *Nature* **184**, 969–970 (1959).
- [McN74] K. J. McNeil et D. F. Walls, “A master equation approach to nonlinear optics”, *J. Phys. A* **7**(5), 617–631 (1974).
- [McN75] K. J. McNeil et D. F. Walls, “Possibility of observing enhanced photon bunching from two photon emission”, *Phys. Lett. A* **A 51**(4), 233–234 (1975).
- [McN76] K. J. McNeil et D. F. Walls, “A master equation approach to nonlinear optics”, *J. Phys. A* **9**(1), 185–186 (1976).
- [Mig99] A. Migdall, “Correlated photon metrology without absolute standards”, *Physics Today* **52**(1), 41–46 (1999).
- [Mog88] K. Mogi, K. Naganuma et H. Yamada, “A novel real-time measurement method for ultrashort optical pulses”, *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**(11), 2078–2081 (1988).
- [Mol68a] B. R. Mollow, “Quantum theory of field attenuation”, *Phys. Rev.* **168**(5), 1896–1919 (1968).
- [Mol68b] B. R. Mollow, “Two photon absorption and field correlation functions”, *Phys. Rev.* **175**(5), 1555–1563 (1968).
- [Mol73] B. R. Mollow, “Photon correlations in the parametric frequency splitting of light”, *Phys. Rev. A* **8**(5), 2684–2694 (1973).
- [Mor66] B. L. Morgan et L. Mandel, “Measurement of photon bunching in a thermal light beam”, *Phys. Rev. Lett.* **16**(22), 1012–1015 (1966).
- [Nas08] M. B. Nasr, S. Carrasco, B. E. A. Saleh, A. V. Sergienko, M. C. Teich, J. P. Torres, L. Torner, D. S. Hum et M. M. Fejer, “Ultrabroadband biphotons generated via chirped quasi-phase-matched optical parametric down-conversion”, *Phys. Rev. Lett.* **100**(18), 183601–4 (2008).
- [Nat85] V. Nathan, A. H. Guenther et S. S. Mitra, “Review of multiphoton absorption in crystalline solids”, *J. Opt. Soc. Am. B* **2**(2), 294–316 (1985).

- [O'D09] K. A. O'Donnell et A. B. U'Ren, "Time-resolved up-conversion of entangled photon pairs", *Phys. Rev. Lett.* **103**(12), 123602–4 (2009).
- [Ou88] Z. Y. Ou et L. Mandel, "Observation of spatial quantum beating with separated photodetectors", *Phys. Rev. Lett.* **61**(1), 54–57 (1988).
- [Ou99] Z. Y. Ou, J. K. Rhee et L. J. Wang, "Photon bunching and multiphoton interference in parametric down-conversion", *Phys. Rev. A* **60**(1), 593–604 (1999).
- [Pat71] C. K. N. Patel, "How to measure subnanosecond laser pulses at $10.6 \mu\text{m}$ ", *Appl. Phys. Lett.* **18**(1), 25–28 (1971).
- [Pe'05] A. Pe'er, B. Dayan, A. A. Friesem et Y. Silberberg, "Temporal shaping of entangled photons", *Phys. Rev. Lett.* **94**(7), 073601–4 (2005).
- [Pom09] E. Pomarico, B. Sanguinetti, N. Gisin, R. T. Thew, H. Zbinden, G. Schreiber, A. Thomas et W. Sohler, "Waveguide-based OPO source of entangled photon pairs", *New J. Phys.* **11**(11), 113042–13 (2009).
- [Pur56] E. M. Purcell, "The question of correlation between photons in coherent light rays", *Nature* **178**, 1449–1450 (1956).
- [Rar90] J. G. Rarity, P. R. Tapster, E. Jakeman, T. Larchuk, R. A. Campos, M. C. Teich et B. E. A. Saleh, "Two-photon interference in a Mach-Zehnder interferometer", *Phys. Rev. Lett.* **65**(11), 1348–1351 (1990).
- [Rav08] M. Ravaro, *Guides d'onde non-linéaires GaAs/AlOx pour la génération paramétrique*, Thèse de doctorat, Université Denis Diderot - Paris VII (2008).
- [Reb57] G. A. Rebka et R. V. Pound, "Time-correlated photons", *Nature* **180**, 1035–1036 (1957).
- [Rei73] J. F. Reintjes et J. C. McGroddy, "Indirect two-photon transitions in Si at $1.06 \mu\text{m}$ ", *Phys. Rev. Lett.* **30**(19), 901–903 (1973).
- [Rez03] S. Reza, *Characterization of two-photon absorption detectors for applications in high speed optical system*, Mémoire de Master, University of Maryland (2003).
- [Rib98] G. Ribordy, J.-D. Gautier, H. Zbinden et N. Gisin, "Performance of InGaAs/InP avalanche photodiodes as gated-mode photon counters", *Appl. Opt.* **37**(12), 2272–2277 (1998).
- [Rib00] G. Ribordy, J. Brendel, J.-D. Gautier, N. Gisin et H. Zbinden, "Long-distance entanglement-based quantum key distribution", *Phys. Rev. A* **63**(1), 012309–12 (2000).
- [Ros95] E. Rosencher, B. Vinter, V. Berger et N. Laurent, "Two-photon absorption due to resonant inter-intraband transitions in asymmetric quantum well", *Nonlinear Optics* **11**, 115–120 (1995).
- [Ros02] E. Rosencher et B. Vinter, *Optoelectronics* (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 2002).
- [Rot02] J. M. Roth, T. E. Murphy et C. Xu, "Ultrasensitive and high-dynamic-range two-photon absorption in a GaAs photomultiplier tube", *Opt. Lett.* **27**(23), 2076–2078 (2002).

- [Rya08] A. Ryasnyanskiy, N. Dubreuil, P. Delaye, R. Frey et G. Roosen, “Fourier transformed picosecond synchronously pumped optical parametric oscillator without spectral filtering element”, *J. Eur. Opt. Soc.* **3**(3), 08037–5 (2008).
- [SB90] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T.-H. Wei, D. J. Hagan et E. W. Van Stryland, “Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam”, *IEEE J. Quantum Electron.* **26**(4), 760–769 (1990).
- [SB91] M. Sheik-Bahae, D. C. Hutchings, D. J. Hagan et E. W. Van Stryland, “Dispersion of bound electron nonlinear refraction in solids”, *IEEE J. Quantum Electron.* **27**(6), 1296–1309 (1991).
- [SB92] M. Sheik-Bahae, J. Wang, R. DeSalvo, D. J. Hagan et E. W. Van Stryland, “Measurement of nondegenerate nonlinearities using a two-color Z scan”, *Opt. Lett.* **17**(4), 258–260 (1992).
- [Sca68] D. B. Scarf, “Measurements of photon correlations in partially coherent light”, *Phys. Rev.* **175**(5), 1661–1668 (1968).
- [Sch01] G. Schreiber, D. Hofmann, W. Grundkotter, Y. L. Lee, H. Suche, V. Quiring, R. Ricken et W. Sohler, “Nonlinear integrated optical frequency converters with periodically poled Ti : LiNbO₃ waveguides”, dans *Integrated Optics Devices V*, p. 144–160 (SPIE, 2001).
- [Sch08] H. Schneider, H. C. Liu, S. Winnert, O. Drachenko, M. Helm et J. Fiast, “Room temperature midinfrared two-photon photodetector”, *Appl. Phys. Lett.* **93**(10), 101114–3 (2008).
- [Sen10] S. Sensarn, G. Y. Yin et S. E. Harris, “Generation and compression of chirped Biphotons”, *Phys. Rev. Lett.* **104**(25), 253602–4 (2010).
- [Ser01] A. V. Sergienko, “Quantum metrology with entangled photons”, dans *CXLVI International School of Physics "Enrico Fermi"*, édité par T. J. Quinn, S. Leschiutta et P. Tavella, p. 715–746 (IOS Press, 2001).
- [Ser03] A. V. Sergienko et G. S. Jaeger, “Quantum information processing and precise optical measurement with entangled-photon pairs”, *Cont. Phys.* **44**(4), 341–356 (2003).
- [She67] Y. R. Shen, “Quantum statistics of nonlinear optics”, *Phys. Rev.* **155**(3), 921–931 (1967).
- [She84] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley Interscience, New York, 1984).
- [Shi03] Y. Shih, “Entangled biphoton source - property and preparation”, *Rep. Prog. Phys.* **66**(6), 1009–1044 (2003).
- [Sil57] R. M. Sillitto, “Correlation between events in photon detectors”, *Nature* **179**, 1127–1128 (1957).
- [Sim75] H. D. Simaan et R. Loudon, “Quantum statistics of single-beam two-photon absorption”, *J. Phys. A* **8**(4), 539–554 (1975).
- [Sim78] H. D. Simaan et R. Loudon, “Off-diagonal density matrix for single-beam two-photon absorbed light”, *J. Phys. A* **11**(2), 435–441 (1978).
- [Sze06] S. M. Sze et K. K. Ng, *Physics of Semiconductor Devices* (Wiley Interscience, New York, 2006), 3 éd.

-
- [Tak92] Y. Takagi, T. Kobayashi, K. Yoshihara et S. Imamura, “Multiple- and single-shot autocorrelator based on two-photon conductivity in semiconductors”, *Opt. Lett.* **17**(9), 658–660 (1992).
- [Tan02] S. Tanzilli, *Optique intégrée pour les communications quantiques*, Thèse de doctorat, Université de Nice-Sophia Antipolis - Science et technologie de l’information (2002).
- [Tan03] Y. Tanaka, N. Sako, T. Kurokawa, H. Tsuda et M. Takeda, “Profilometry based on two-photon absorption in a silicon avalanche photodiode”, *Opt. Lett.* **28**(6), 402–404 (2003).
- [Tei69] M. C. Teich et P. Diament, “Two-photon counting statistics for laser and chaotic radiation”, *J. Appl. Phys.* **40**(2), 625–633 (1969).
- [Tem06] G. Temporão, S. Tanzilli, H. Zbinden, N. Gisin, T. Aellen, M. Giovannini et J. Faist, “Mid-infrared single-photon counting”, *Opt. Lett.* **31**(8), 1094–1096 (2006).
- [The08] R. T. Thew, H. Zbinden et N. Gisin, “Tunable upconversion photon detector”, *Appl. Phys. Lett.* **93**(7), 071104–3 (2008).
- [Twi57a] R. Q. Twiss et R. Hanbury Brown, “The question of correlation between photons in coherent beams of light”, *Nature* **179**, 1128–1129 (1957).
- [Twi57b] R. Q. Twiss, A. G. Little et R. Hanbury Brown, “Correlation between photons in coherent light beams of light detected by a coincidence counting technique”, *Nature* **180**, 324–326 (1957).
- [Vai80] A. Vaidyanathan, T. Walker, A. H. Guenther, S. S. Mitra et L. M. Narducci, “Two-photon absorption in several direct-gap crystals”, *Phys. Rev. B* **21**(2), 743–748 (1980).
- [VdL71] D. Von der Linde, A. Laubereau et W. Kaiser, “Molecular vibrations in liquids: direct measurement of the molecular dephasing time; determination of the shape of picosecond light pulses”, *Phys. Rev. Lett.* **26**(16), 954–957 (1971).
- [VG07] J. Viana-Gomes, D. Boiron et M. Belsley, *Density correlations of an ultra-cold quantum gas in the vicinity of Bose-Einstein condensation*, chap. 13, p. 335–384 (World Scientific, Singapore, 2007).
- [VS85] E. W. Van Stryland, M. A. Woodall, H. Vanherzeele et M. J. Soileau, “Energy band-gap dependence of two-photon absorption”, *Opt. Lett.* **10**(10), 490–492 (1985).
- [Web67] H. P. Weber, “Method for pulsewidth measurement of ultrashort light pulses generated by phase-locked lasers using nonlinear optics”, *J. Appl. Phys.* **38**(5), 2231–2234 (1967).
- [Web71] H. P. Weber, “Two-photon-absorption laws for coherent and incoherent radiation”, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-7**(5), 189–195 (1971).
- [Whe84] B. S. Wherrett, “Scaling rules for multiphoton interband absorption in semiconductors”, *J. Opt. Soc. Am. B* **1**(1), 67–72 (1984).
- [Wie09] J. Wiersig, C. Gies, F. Jahnke, M. Aszmann, T. Berstermann, M. Bayer, C. Kistner, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Hofling, A. Forchel, C. Kruse, J. Kalden et D. Hommel, “Direct observation of correlations between individual photon emission events of a microcavity laser”, *Nature* **460**, 245–249 (2009).

- [Win59] J. M. Winter, *Étude théorique et expérimentale des transitions à plusieurs quanta entre les sous-niveaux zeeman d'un atome*, Thèse de doctorat, Faculté des sciences de l'université de Paris (1959). (publié dans : Ann. de Phys. **4**, 745 (1959)).
- [Wol58] E. Wolf, "Reciprocity inequalities, coherence time and bandwidth in signal analysis and optics", Proc. Phys. Soc. **71**(2), 257–269 (1958).
- [Xu02] C. Xu, J. M. Roth, W. H. Knox et K. Bergman, "Ultra-sensitive autocorrelation of 1.5 μm light with single photon counting silicon avalanche photodiode", Electron. Lett. **38**(2), 86–88 (2002).
- [Yar73] A. Yariv, "Coupled mode theory for guided wave optics", IEEE J. Quantum Electron. **9**(9), 919–933 (1973).
- [Yar89] A. Yariv, *Quantum Electronics* (John Wiley & Son, New York, 1989), 3 éd.
- [Yas96] M. Yasuda et F. Shimizu, "Observation of two-atom correlation of an ultracold neon atomic beam", Phys. Rev. Lett. **77**(15), 3090–3093 (1996).
- [Zäh08] F. Zäh, M. Halder et T. Feurer, "Amplitude and phase modulation of time-energy entangled two-photon states", Opt. Express **16**(21), 16452–16458 (2008).
- [Zhe97] Z. Zheng, A. M. Weiner, J. H. Marsh et M. M. Karkhanehchi, "Ultrafast optical thresholding based on two-photon absorption GaAs waveguide photodetectors", IEEE Photonics Technol. Lett. **9**(4), 493–495 (1997).

Fabien Boitier

Absorption à deux photons et effets de corrélation quantique dans les semiconducteurs

Résumé : Les corrélations de photons sont à la base d'un certain nombre d'expériences et d'applications (spectroscopie de corrélation de photons, profilométrie haute résolution, cryptographie quantique, téléportation). L'évaluation de ces propriétés de corrélation revêt dès lors une importance toute particulière et correspond à la thématique dans laquelle s'inscrit ce travail de thèse de Doctorat. Tout d'abord, les concepts de compteur de photons par absorption à deux photons ont été (ré)évalués expérimentalement dans différents semiconducteurs et nous ont conduits à établir les bases d'un modèle quantique du comptage à deux photons. Par la suite, l'absorption à deux photons dans les semiconducteurs est appliquée dans une nouvelle technique qui permet la mesure du degré de cohérence d'ordre deux de sources optiques continues de faibles puissances (0,1 μW au minimum) avec une bande passante allant de 1,1 à 1,7 μm et une résolution de l'ordre de la femtoseconde. Expérimentalement, le montage est conceptuellement proche d'un interféromètre de Hanbury Brown et Twiss où, dans notre cas, les deux sous-faisceaux décalés dans le temps sont recombinaés sur un compteur à deux photons. Grâce à la très large bande passante à deux photons, les corrélations de sources larges spectralement sont caractérisées au moyen de ce montage qui permet la mesure du degré de cohérence d'ordre deux de sources chaotiques aussi bien que d'un générateur paramétrique – à la dégénérescence ou hors de la dégénérescence. Pour la première fois, le phénomène de *bunching* des photons issus d'un corps noir a été vérifié par une mesure directe. Pour ce qui est de la lumière paramétrique, après avoir développé une source de photons jumeaux, nous avons démontré que notre montage expérimental était à même de mesurer les coïncidences exactes des photons issus d'une même paire aussi bien que les coïncidences accidentelles entre photons de paires différentes en contrôlant les phénomènes de dispersion chromatiques à l'aide d'une paire de prismes. Enfin, deux modèles théoriques originaux de corrélation de photons jumeaux ont été développés, basés sur les approches quantique et classique, et sont en excellent accord avec l'ensemble de nos résultats expérimentaux.

Mots-clés : Absorption à deux photons, corrélation de photons, cohérence d'ordre deux, source chaotique, fluorescence paramétrique, photons jumeaux, semiconducteur.

Two photon absorption and quantum correlation effects in semiconductors

Abstract: Photon correlation properties are now harnessed in various experiments and applications (photon correlation spectroscopy, high resolution profiling, quantum cryptography, quantum teleportation...). The determination of the correlation properties of light is thus of paramount importance and corresponds to the topic investigated in this PhD thesis. Firstly, the semiclassical concept of Two-Photon Counter is experimentally revisited using two photon absorption in various semiconductors and leads to the development of the foundations of an unified two-photon counting theory. Then, two photon conductivity in semiconductors is exploited in a new technique that enables the determination of second order correlation of cw optical sources with output power down to 0.1 μW , bandwidth in the 1.1 to 1.7 μm range and time resolution in the femtosecond range. Experimentally, the system is similar to a Hanbury Brown & Twiss interferometer but, in our case, the two delayed sub-beams are recombined in a two-photon counting device. Thanks to the huge available bandwidth, broadband source correlations are characterized by measuring, with the same apparatus, the degree of second order coherence of chaotic sources or optical parametric generator (both degenerate and non degenerate cases). For the first time, the bunching effect in a real blackbody is unambiguously shown down to the femtosecond level. Concerning parametric light, after developing down converted source, we demonstrate that our experimental set-up is able to determine the exact coincidence of twin photon as well as the accidental one between photons from different pairs by controlling chromatic dispersion phenomena with a prism pair set-up. Finally, two theoretical modeling of twin photons correlation were developed, based on a full quantum theory of two multimodal-photon interaction and a classical stochastic field approach, and are both in excellent agreement with all our experimental results.

Keywords: Two-photon absorption, photon correlation, second order coherence, chaotic source, down-conversion, twin photons, semiconductor.