

Rapport
d'activité
1988

OPTIQUE
QUANTIQUE

ECOLE POLYTECHNIQUE

En 1794, à l'instigation de Gaspard MONGE et de Lazare CARNOT, la Convention crée, en pleine période révolutionnaire, l'École Polytechnique destinée « à former des ingénieurs en tous genres, à rétablir l'enseignement des sciences exactes et à donner une haute formation scientifique à des jeunes gens, soit pour être employés par le Gouvernement aux travaux de la République, soit pour reporter dans leur foyer l'instruction qu'ils auront reçue et y prodiguer les connaissances utiles ».

Dans un environnement aujourd'hui bien différent notre mission demeure ; le monde a changé et de si considérable façon que notre tâche est plus vaste et plus complexe.

L'École Polytechnique c'est environ sept cent cinquante élèves présents à Palaiseau, plus de deux cents enseignants, près de neuf cents chercheurs, ingénieurs ou techniciens dans les laboratoires, environ cinq cents militaires et civils se consacrant à la formation des élèves et à la marche générale de l'établissement.

De cette longue tradition nous avons hérité deux principes qui guident notre action :

- l'excellence à rechercher sans cesse,
- la pluridisciplinarité pour rester ouvert aux formes multiples du savoir.

Maurice BERNARD
Directeur de l'Enseignement
et de la Recherche

EP - OPTQ - RA -- 1988

OPTIQUE QUANTIQUE

Directeur : **Christos FLYTZANIS**

Directeur de Recherche au CNRS

Laboratoire propre du CNRS

Secteur M.P.B.

Téléphone : (33) (1) 60 19 41 24

SOMMAIRE

PERSONNEL DE RECHERCHE	2
EXPOSE GENERAL	4
EXPOSE ANALYTIQUE	5
I - ETUDE DE LA DYNAMIQUE VIBRATIONNELLE EN PHASE DENSE. POLARITONS ET BIPHONONS	5
II - PROPRIETES OPTIQUES NONLINEAIRES DES MATERIAUX COMPOSITES ET DES AGREGATS METALLIQUES ET SEMICONDUCTEURS	7
III - DYNAMIQUE MOLECULAIRE ULTRARAPIDE ETUDIEE PAR FLUORESCENCE RESOLUE EN TEMPS	8
IV - INTERACTIONS NONLINEAIRES INTRACAVITE D'ONDES LUMINEUSES	9
V - INTERACTION MOLECULE-SURFACE; TRANSFERT ET REPARTITION D'ENERGIE SUR LA SURFACE	10
VI - ETUDE DES NIVEAUX VIBROROTATIONNELS EXCITES DE MOLECULES CONTENANT PLUSIEURS LIAISONS EQUIVALENTES	11
PUBLICATIONS	13
REVUES SCIENTIFIQUES	13
COMMUNICATIONS A DES CONGRES	15
THESES	17
ORGANISATION DE COLLOQUES	17

PERSONNEL DE RECHERCHE

Christos	FLYTZANIS	Directeur de recherche au CNRS (Ingénieur KHT (Stockholm), Dr.Sc., Orsay) Directeur du Laboratoire
Marc	CHATELET	Chargé de recherche au CNRS (ENS St-Cloud, Dr.Sc., Paris-Nord)
Amor	CHEBIRA	Allocataire de recherche à l'Ecole Polytechnique (X 84)
José	CHESNOY	Chargé de recherche au CNRS (X 74, Dr.Sc., Orsay)
Michèle	CHEVALIER	Allocataire de recherche à l'Ecole Polytechnique (ENS Fontenay, Dr, Orsay)
Jean	FREY	Allocataire de recherche à l'Ecole Polytechnique (X 84)
Robert	FREY	Directeur de recherche au CNRS Professeur associé à l'ENST (Ing.ESO, Dr.Sc.Orsay)
Geoffrey	GALE	Directeur de recherche au CNRS (Ph.D., Belfast)
François	HACHE	Chargé de recherche au CNRS (X 81, Dr, Orsay)
Marie-Claire	KLEIN	Allocataire de recherche à l'Ecole Polytechnique (X 85)
Antonello	DE MARTINO	Chargé de recherche au CNRS (X 74, Dr.Sc., Orsay)
Ahmed	MOKHTARI	Allocataire de recherche à l'Ecole Polytechnique (X 82)
François	PRADERE	Directeur de recherche au CNRS Chef de Travaux Pratiques de Physique à l'Ecole Polytechnique (Dr.Sc.,Orsay) Directeur Adjoint du Laboratoire
Daniel	RICARD	Directeur de recherche au CNRS Maître de Conférences à l'Ecole Polytechnique (ENS Ulm, Dr.Sc., Orsay)
Frédéric	De ROUGEMONT	Chargé de Recherche au CNRS (X 79, Dr.Sc., Orsay)
Philippe	ROUSSIGNOL	Chargé de recherche au CNRS (ENS St Cloud, Dr 3ème cycle, Orsay)
Pierre	SCHANNE	Ingénieur de l'Armement (X 83)
Holger	VACH	Attaché de recherche à l'Ecole Polytechnique (Ph.D., Munich)
Fabrice	VALLEE	Chargé de recherche au CNRS (ENS Ulm, Dr. 3ème cycle, Paris)

VISITEURS

Sten LJUNGSTROM

Franco BOGANI

PERSONNEL ITA

Marcel BIERRY

Michel BONNEAU

Patrick CHAUFFOURNIER

Dominique CLEMENT

Frédéric HAMOUDA

Jean-Claude JEANNOT

Maryse LE ROUX

Françoise PETREQUIN

EXPOSE GENERAL

L'activité du Laboratoire concerne l'étude du comportement des matériaux denses et dilués soumis à des champs lumineux très intenses et ultrabrefs.

Un aspect important de cette activité est l'étude de l'évolution spatiotemporelle des différentes excitations élémentaires ou composites dans les cristaux et milieux moléculaires denses, en particulier leur cohérence, leurs échanges d'énergie avec les autres degrés de liberté de l'environnement, plus ou moins ordonné, et leur relaxation. Des techniques d'optique nonlinéaire très puissantes avec résolution temporelle et spatiale ont été développées à ce but.

Une partie importante de l'activité est aussi concentrée sur l'étude des interactions nonlinéaires des faisceaux intenses et ultrabrefs dans des matériaux inhomogènes ou composites et dans des microstructures artificielles. Un aspect important ici est de cerner les mécanismes et l'influence du désordre et du confinement pour exalter ou contrôler sélectivement les interactions nonlinéaires.

Finalement une activité importante est la photophysique des surfaces et l'étude de l'interaction molécule surface et des transferts énergétiques qui l'accompagnent lors de la diffusion des jets moléculaires sur des surfaces sous des conditions de vide et de température très particulières.

Pour ces études fondamentales, des techniques d'optique nonlinéaire très puissantes, en particulier celles exploitant les interactions nonlinéaires intracavité, ont été développées et utilisées pour la mise au point des sources lumineuses avec des performances uniques, tant en intensité et plages d'accord de fréquences (de l'infrarouge lointain à ultraviolet lointain), qu'en durée d'impulsions jusqu'à quelques dizaines de femtonsecondes. Par ailleurs le Laboratoire possède maintenant des techniques très puissantes d'optique nonlinéaire et de diagnostic de surface.

Le Laboratoire entretient des collaborations très étroites avec d'autres Laboratoires français et étrangers et reçoit des chercheurs étrangers pour de longs séjours. Les chercheurs du Laboratoire sont fortement impliqués dans l'enseignement de Physique à l'Ecole Polytechnique et du DEA "Lasers et Matière" de l'Université de Paris-Sud (Orsay) Ecole Polytechnique. Plusieurs jeunes chercheurs préparent leur thèse sous leur direction.

EXPOSE ANALYTIQUE

1 - ETUDE DE LA DYNAMIQUE VIBRATIONNELLE EN PHASE DENSE. POLARITONS ET BIPHONONS

1. Etude spatio-temporelle d'une impulsion phonon-polariton dans un cristal anisotrope

F. Vallée, G. Gale et C. Flytzanis

Les études récentes réalisées au Laboratoire grâce à la technique CARS picoseconde, résolue dans le temps et dans l'espace, ont permis de mettre en évidence un certain nombre de résultats inédits concernant les caractéristiques spatio-temporelles des phonon-polaritons dans les cristaux cubiques (voir rapports 86-87).

Nous avons étendu cette technique à l'étude des cristaux non-cubiques, donc optiquement anisotropes, pour lesquels les branches polaritons sont beaucoup plus complexes. Ainsi pour le cas d'un cristal uniaxe, tel que l'iodate de lithium (LiIO_3), pour une direction fixée du vecteur d'onde, deux types de polariton (ordinaire et extraordinaire) peuvent exister avec des courbes de dispersion différentes. Par ailleurs en exploitant la biréfringence de ces cristaux on a accès avec des techniques Raman à toute la courbe de dispersion et en particulier à la branche supérieure qui est inaccessible dans les cristaux cubiques.

La démonstration a été faite sur le polariton ordinaire associé aux modes de vibration E_1 du cristal de LiIO_3 sur une gamme de fréquence comprise entre 650 cm^{-1} et 900 cm^{-1} qui contient la bande interdite (768 cm^{-1} à 843 cm^{-1}). Nous avons observé une forte dépendance en fréquence de la vitesse de déphasage du polariton et la présence d'un minimum au voisinage de ω_{TO} qui indiquent que celle-ci est dominée par la désintégration du polariton en deux phonons ($\omega_{\pi} \rightarrow \omega_p + \omega_p$). Cette interprétation a été aussi corroborée par la dépendance en température de la vitesse de déphasage entre 10 K et 300 K.

L'extension de ce type d'expérience à d'autres excitations élémentaires est particulièrement attractive notamment en ce qui concerne les polaritons de surface, car elle permettrait une étude directe de ces excitations en contraste avec les études indirectes actuellement utilisées. Ces études sont néanmoins très difficiles à réaliser du fait de la faible longueur d'interaction du polariton de surface avec les impulsions lumineuses et de sa forte vitesse de propagation. Les essais sont actuellement en cours.

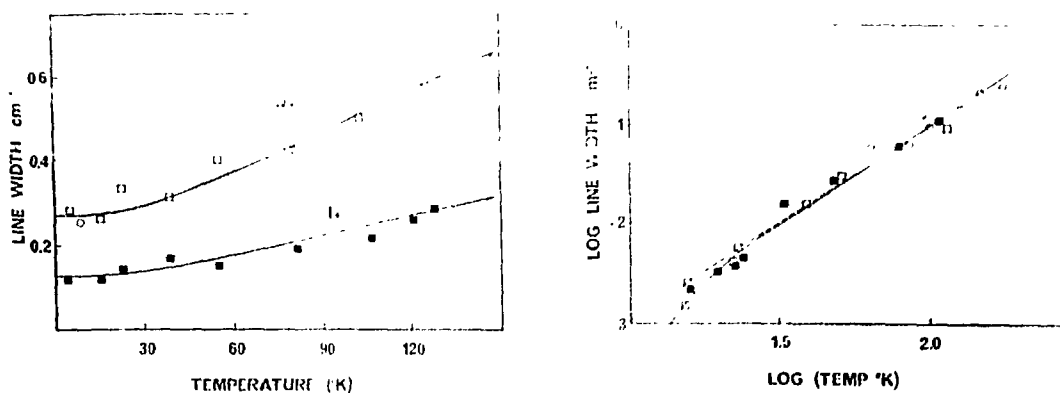
2. Spectroscopie cohérente des impuretés isotopiques en phase dense

P. Schanne, G. Gale et P. Ranson

Plusieurs aspects de l'interaction des phonons dans les cristaux sont activement étudiés par plusieurs laboratoires. Un tel aspect important est l'apparition des états à deux phonons liés (biphonons) en particulier dans les cristaux moléculaires ; le point particulièrement difficile ici est l'identification des mécanismes de la relaxation et des canaux de leur désintégration. Un exemple pertinent est donné par le doublet de Fermi dans le CO_2 solide où deux mécanismes de relaxation (l'un T_1 , l'autre T_2) paraissent plausibles. Afin d'élucider ce problème, nous avons entrepris une étude systématique des satellites isotopiques C-13 (I_+ et I_-) du doublet de Fermi (Ω_+ et Ω_-) dans le CO_2 solide, entre 5 et 130 K, car les déplacements en énergie des raies satellites fournissent une sonde sensible des mécanismes prépondérants de relaxation.

Avec notre nouveau système DFDL (voir rapport précédent) nous avons pu isoler les deux satellites, en dépit de leur proximité ($\approx 10^{-4}$ en CARS) et ainsi mesurer leurs temps de déphasage. Les résultats de ces expériences sont portés sur la figure 1 pour la transition isotopique I_+ et la raie Ω_+ (au-dessus de la bande à deux phonons libres $2\omega_1$), et sur la figure 2 pour I_- et Ω_- . (noter l'échelle logarithmique).

Nous observons que les largeurs de la bande I_+ (fig.1) sont environ deux fois plus petites que pour la bande parente Ω_+ et que la largeur de raie tend vers une valeur constante à faible température. Ce comportement peut être très bien décrit par un processus de relaxation de population (T_1) vers la bande à deux phonons libres avec émission d'un phonon acoustique d'énergie $\approx 60 \text{ cm}^{-1}$ au maximum de la densité d'états des phonons du réseau (traits noirs - fig.1). La différence entre les temps de déphasage des deux états I_+ et Ω_+ est expliquée par la variation de la densité d'états finaux, dû à l'écart d'énergie entre I_+ et Ω_+ .



Par contre, les transitions I_- et Ω_- ont exactement la même largeur de raie. Cette largeur commune augmente de façon quadratique avec la température du cristal entre 15 et 130 K. On peut décrire parfaitement ce comportement par un processus de déphasage pur (T_2), car ce processus ne dépend que peu de l'énergie de l'état initial et donne directement une variation en T_2 à forte température (trait plein - fig.2).

L'unité de l'interprétation exposée ci-dessus repose sur la description des états à deux phonons liés comme des impuretés. Cette approximation est justifiée quand la dispersion de l'état lié est très faible, ce qui est vérifié pour les transitions Ω_+ et Ω_- dans le CO_2 solide. Les états Ω_+ et I_+ , de forte énergie, se désexcitent par un processus de relaxation de population. Les états Ω_- et I_- , de faible énergie, subissent un déphasage pur. Cette identification des mécanismes prépondérants de relaxation permet de comprendre les résultats d'une étude antérieure au laboratoire de la transition liquide/solide dans le CO_2 comme étant dus à la nature différente des états au-dessus et en-dessous de la bande à deux phonons libres.

II.- PROPRIETES OPTIQUES NONLINEAIRES DES MATERIAUX COMPOSITES ET DES AGREGATS METALLIQUES ET SEMICONDUCTEURS

Nous avons achevé en 1988 l'étude de l'effet Kerr optique dans les verres à l'or pour lesquels nous avons totalement élucidé le mécanisme qui est à l'origine de la nonlinéarité d'une petite sphère d'or.

En ce qui concerne les verres de semiconducteurs, notre travail porte maintenant entièrement sur des verres contenant de petites particules avec un effet de confinement quantique marqué. En particulier, nous avons montré l'importance de l'élargissement par phonons.

1. Les verres à l'or

F. Hache, D. Ricard et C. Flytzanis

Expérimentalement, nous avons montré que la susceptibilité Kerr des petites sphères d'or ne dépend pas de leur taille (entre 3 et 30 nm de diamètre) ni de la température (entre l'hélium et l'ambiante). Nous avons mesuré l'anisotropie et la phase de cette susceptibilité et étudié la saturation de l'absorption et de la conjugaison de phase.

Cette nonlinéarité peut être due à 3 mécanismes : la contribution des électrons de conduction qui est due au confinement et dépend fortement de la taille, la saturation des transitions entre bandes d et bande de conduction et enfin la création d'électrons chauds qui modifient la statistique de Fermi-Dirac et donc les transitions entre bandes d et bandes de conduction. Le calcul montre que ces deux dernières contributions sont dominantes.

Les résultats expérimentaux s'interprètent parfaitement dans ce cadre, la contribution majeure étant celle des électrons chauds et la saturation des transitions interbandes étant un peu plus faible. La première contribution est, quant à elle, négligeable.

2. Les verres de semiconducteurs

P. Roussignol, D. Ricard et C. Flytzanis

Lors des études antérieures sur les verres contenant des particules semiconducteurs de grosse taille ($d \approx 10$ nm) nous avons mis en évidence certains effets nouveaux et proposé une description du comportement des charges photoinduites qui rend bien compte des nonlinéarités optiques observées. En 1988, nous avons entrepris l'étude de verres contenant de petites particules ($d = 3$ nm à 7 nm) fournies par SCHOTT Glaswerke.

En contraste avec les précédentes de plus grosse taille, ces particules présentent un effet de taille quantique très marquée ; il se traduit par un déplacement du seuil d'absorption vers le bleu et par l'apparition de structures dans le spectre d'absorption du verre. Par ailleurs, on s'attend à des modifications importantes de la dynamique des charges photoinduites.

L'intérêt de verres contenant de très petites particules est le suivant : au voisinage de la transition de plus basse énergie (transition 1s-1s), chaque particule se comporte comme un système à deux niveaux dont la saturation crée la nonlinéarité. Cette dernière devrait être très importante, la force d'oscillateur d'une bande entière se trouvant concentrée dans des transitions discrètes. La détermination de la largeur spectrale de la transition 1s-1s est donc très importante. Deux facteurs peuvent provoquer l'élargissement de la transition : un élargissement intrinsèque dû au couplage avec les phonons et un élargissement inhomogène dû à la distribution de taille des particules (les niveaux d'énergie dépendent de la taille) Nous avons étudié la modification du spectre d'absorption de tels verres après une excitation picoseconde dans la structure 1s-1s. A température ambiante

l'élargissement intrinsèque est dominant. A basse température un trou peut être creusé dans le spectre d'absorption mettant en évidence l'élargissement inhomogène.

Nous avons aussi étudié la dépendance en fréquence de la nonlinéarité optique quand on se déplace sur cette structure. Une résonance est observée au sommet de la structure et plus la particule est petite, plus la résonance est importante. Ces observations correspondent qualitativement à nos prévisions. Une analyse quantitative est en cours.

3. Perspectives

Notre étude des agrégats métalliques est achevée. Par contre, celle des verres de semiconducteurs sera poursuivie avec par exemple l'étude de l'action d'un champ électrique statique.

III - DYNAMIQUE MOLECULAIRE ULTRARAPIDE ETUDIEE PAR FLUORESCENCE RESOLUE EN TEMPS

A. Mokhari, A. Chebira, A. Laubereau, J. Chesnoy

La fluorescence électronique des grosses molécules dépend du milieu environnant ainsi que de la dynamique interne de la molécule. Intensité, position et largeur spectrale de la bande de fluorescence constituent autant de sondes possibles de la dynamique du mouvement intramoléculaire et intermoléculaire.

Nous avons développé une technique d'analyse transitoire de la fluorescence avec résolution spectrale et temporelle basée sur l'utilisation d'un laser femtoseconde qui détermine la résolution temporelle de l'expérience.

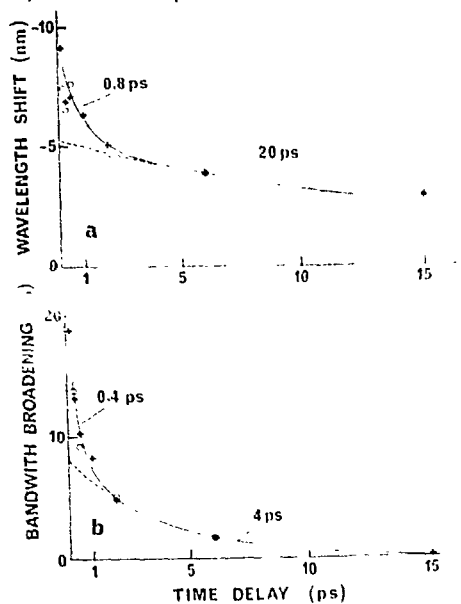


Fig.1 : Variation temporelle du déplacement de la bande de fluorescence (en haut) et de sa largeur (en bas) pour une molécule de colorant, le nil bleu en solution.

La figure 1 donne le type d'informations obtenues sur une molécule de colorant (le nil bleu) en solution. Le déplacement spectral de la bande de fluorescence (en haut) implique une décroissance subpicosecond associée à la désexcitation vibrationnelle suivie de la relaxation bien connue associée à la solvatochromie. L'observation de la largeur spectrale de la bande de fluorescence (en bas)

permet d'obtenir une image de la thermalisation de la molécule, d'abord rapide (intramoléculaire) puis plus lente (régime diffusif).

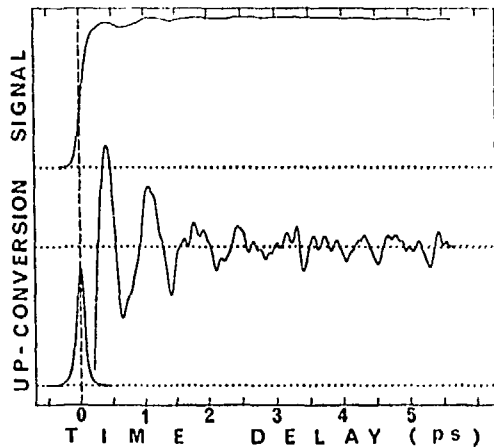


Fig.2 : Battements quantiques de fluorescence d'un colorant (l'oxazine). En bas est indiquée la fonction d'appareil de l'expérience

La figure 2 illustre un comportement d'une autre molécule de colorant en solution : des battements quantiques de faible amplitude et de période subpicoseconde sont observés. Nous soulignons l'originalité d'une telle observation vu la grande densité d'état des niveaux quantiques, leur élargissement et leur préparation non sélective. Ces battements décrivent une vibration moléculaire observée en temps réel.

Nous examinons actuellement la dynamique électronique de microstructures à semiconducteurs par les mêmes techniques.

IV - INTERACTIONS NONLINEAIRES INTRACAVITE D'ONDES LUMINEUSES

L'intérêt des sources délivrant des impulsions brèves et intenses accordables en fréquence dans l'infrarouge est manifeste dans plusieurs domaines de l'optique nonlinéaire et électronique quantique. L'exploitation d'interactions nonlinéaires intracavité permet d'atteindre plus facilement certains objectifs ici par rapport aux techniques plus conventionnelles. Cette année nous avons pu étendre vers l'infrarouge proche la plage d'accord d'un laser à Alexandrite par diffusion Raman rotationnelle intracavité. Par ailleurs, nous avons démontré l'opération d'un laser à alexandrite à modes couplés continu.

1. Extension vers l'infrarouge proche de la plage d'accord d'un laser à Alexandrite par diffusion Raman rotationnelle intracavité

F. de Rougemont, J. Frey et R. Frey

Nous avons démontré qu'avec un laser à Alexandrite de faible puissance crête, il était possible, par diffusion Raman stimulée vibrationnelle intracavité, de déplacer la plage d'accord de l'Alexandrite vers l'infrarouge. Toutefois, il était impossible par cette technique d'atteindre les longueurs d'onde comprises entre 1,2 et 1,8 μm qui présentent un intérêt manifeste pour l'étude des puits quantiques multiples.

En effectuant une ou plusieurs diffusions Raman rotationnelles dans le même milieu Raman (ici l'hydrogène), il est possible d'atteindre cette gamme de fréquence. Une modélisation simple a

démontré que cette technique de diffusions multiples était possible seulement si la cavité était pratiquement sans pertes pour toutes les fréquences intermédiaires nécessaires à la génération de la même composante Stokes rotationnelle. Pour satisfaire à ce critère, l'expérience est réalisée en plaçant la cavité Raman directement à l'intérieur de la cuve contenant l'hydrogène. Ainsi avec un laser à Alexandrite de très faible puissance (Energie : 20-30 mJ, Durée 200-300 ns) nous avons obtenu des impulsions d'énergie 0,3 - 1 mJ d'une durée de 50 ns et de longueur d'onde accordable entre 1,22 et 1,30 μm . L'utilisation d'autres miroirs permettra l'obtention de longueurs d'onde jusqu'à 1,8 μm .

Une étude du comportement de puits quantiques multiples InGaAs/InP sous excitation lumineuse très intense a déjà commencé grâce à l'utilisation de cette source.

2. Laser à Alexandrite à modes couplés continu

C.H. Lee et R. Frey

Les lasers à modes couplés délivrant des impulsions de durée picoseconde sont maintenant très développés. Les principaux lasers utilisant le néodyme-YAG pour matériau amplificateur ne sont pas accordables en fréquence ; il est alors nécessaire d'avoir recours aux lasers à colorants pour obtenir la possibilité d'accord. Au laboratoire, nous avons étudié un laser à modes couplés continûment accordable autour de 0,75 μm utilisant l'Alexandrite comme matériau amplificateur. Le milieu amplificateur est pompé par un laser à Argon de 3 Watts focalisé au "waist" d'une cavité à trois miroirs. Sur le bras où le faisceau est pratiquement parallèle, on a placé un prisme de dispersion pour assurer l'accord de fréquence et un modulateur acousto-optique pour réaliser le couplage de modes. Avec un dispositif où le coupleur de sortie n'était pas optimisé, on obtient à une fréquence de répétition de 50 MHz un train d'impulsions de 50-60 ps de durée pour une puissance moyenne de 15 mW et une possibilité d'accord d'environ 300 Å.

Plusieurs améliorations et extensions sont possibles :

- Optimisation du coupleur de sortie pour améliorer le rendement du laser.
- Utilisation d'un laser à krypton pour pomper l'Alexandrite afin de réduire l'influence des problèmes thermiques rencontrés au cours de notre expérience.
- Utilisation du saphir dopé titane pompé par laser à Argon afin d'augmenter la possibilité d'accord.
- Enfin, passage des impulsions délivrées par ce laser dans une fibre optique, amplification régénérative dans un laser à Alexandrite pompé par flashes et compression par paires de réseaux pour obtenir des impulsions de durée subpicoseconde avec de très fortes puissances crêtes. L'utilisation de techniques nonlinéaires telles que le mélange de fréquences pourrait alors permettre la réalisation d'une source délivrant des impulsions subpicosecondes de forte énergie et ayant une fréquence accordable dans l'infrarouge, domaine où cette possibilité n'a pas encore été explorée.

V. INTERACTION MOLECULE-SURFACE. TRANSFERT ET REPARTITION D'ENERGIE SUR LA SURFACE

Les échanges d'énergie entre molécules et surface lors d'une interaction de contact ou d'une collision jouent un rôle primordial dans de nombreux phénomènes de physique, de chimie et de biologie. La compréhension des phénomènes élémentaires régissant cette interaction apportera des progrès importants dans des domaines d'applications de technologies d'avenir tels que la microélectronique, la catalyse hétérogène ou l'espace. A ce but, nous sommes en train de mettre en place une expérience de diffusion des jets moléculaires sur des surfaces. Par ailleurs en collaboration avec

l'équipe de l'Institut Max Planck de Quantenoptik de Garching b.München nous avons étudié la diffusion des molécules NO par la surface <111> du diamant.

1. Réalisation d'un montage de diffusion de jet moléculaire sur une surface et de diagnostic par laser.

M. Chatelet, A. de Martino, S. Ljungström, F. Pradère, H. Vach

Afin de mieux comprendre la redistribution de l'énergie entre les degrés de liberté des molécules lors de l'interaction avec la surface, nous sommes en train de réaliser un appareillage rassemblant les techniques de jet moléculaire supersonique, d'ultravide (10^{-10} mbar), de diagnostic de surface (Auger, LEED), de diagnostic laser des molécules diffusées (fluorescence induite par laser, l'ionisation multiphotonique). Cette année a été consacrée à la maîtrise du pompage ultravide par cryopompage (25000 l/s) et à l'automatisation des remplissages par ordinateur, au montage et test du jet supersonique de molécule pouvant chauffer le gaz en tuyère à 1200°C et à la mise au point du laser accordable. Ce dernier est un laser à colorant pompé par l'harmonique d'un laser à YAG. Il est ensuite doublé en fréquence et enfin sommé avec l'infrarouge du laser à YAG et délivre ainsi des impulsions de 2 mJ à 226nm avec une largeur de 0.2 cm^{-1} . La qualité transverse du faisceau, primordiale pour obtenir un bon rendement des deux effets nonlinéaires successifs (doublement puis somme de fréquences), a été obtenue grâce au pompage longitudinal des deux derniers amplificateurs du laser à colorant qui en comporte trois.

2. Interaction molécule de NO-surface de diamant (III)

M. Chatelet, C. Flytzanis, H. Vach

Les expériences de diffusion de molécules de NO sur une surface de diamant entreprise en 1987 au laboratoire d'Optique Quantique de l'Institut Max Planck à Garching (RFA) avec J. Häger et H. Walther avaient fourni des données nouvelles caractérisées par deux classes de molécules diffusées l'une rapide et l'autre lente aux propriétés énergétiques différentes. Nous nous sommes penchés sur l'interprétation de ces nouveaux phénomènes. La distribution spatiale des deux classes de molécules dans le lobe de diffusion s'explique classiquement par la structure assymétrique régulière de la surface (111) du diamant (effet de corrugation à l'échelle des atomes). La redistribution de l'énergie entre la rotation et la translation se fait différemment suivant la composante rapide et la composante lente, et elle ne dépend pas de la température de la surface (entre 120 K et 400 K) ni pour l'une, ni pour l'autre. Un effet tunnel permet de reproduire les figures de temps de vol en fonction de l'angle de diffusion. La partie lente correspond à un piégeage de la molécule dans l'héxagone de la première couche de la structure du diamant et le défaut d'énergie s'explique alors par le principe d'incertitude.

VI. ETUDE DES NIVEAUX VIBROROTATIONNELS EXCITÉS DE MOLECULES CONTENANT PLUSIEURS LIAISONS EQUIVALENTES

M. Chevalier, A. De Martino

Au cours de l'année 1988 nous avons complété l'interprétation théorique, dans le cadre du modèle des modes locaux, des spectres des niveaux vibrorotationnels excités du silane enregistrés précédemment par la technique de double résonance infrarouge-infrarouge, au moyen de la source très largement accordable développée au Laboratoire (voir rapport 87).

Nous avons très bien reproduit (à quelques dixièmes de cm^{-1} près) la position des niveaux vibrationnels comportant au plus trois quanta d'élongation, ainsi que les intensités vibrationnelles observées, par le modèle théorique maintenant bien décrit par de nombreux travaux.

L'interprétation des structures rotationnelles de ces niveaux a en revanche nécessité le développement d'un formalisme adoptant le schéma général de couplage vibrorotationnel en présence de symétrie tétraédrique au cas d'un hamiltonien vibrationnel de type "local". Ce formalisme permet en principe de prendre en compte toutes les interactions vibrorotationnelles possibles et représente donc un progrès important par rapport aux quelques études publiées précédemment sur le sujet. Nous avons ainsi très bien rendu compte des structures rotationnelles des niveaux excités du silane, en dégagant les "bons" paramètres pour l'analyse.

Dans le cas du méthane nous avons confirmé l'existence de fortes perturbations dues à des résonances de Fermi élongations-pliages. Actuellement on ne peut donc définir pour cette molécule que des paramètres vibrorotationnels effectifs, sensiblement différentes d'une polyade à l'autre. En revanche dans le cas du silane l'absence de telles perturbations a permis de tester de façon beaucoup plus significative la validité du modèle théorique, et d'interpréter les spectres des polyades jusqu'à $v = 3$ avec un seul jeu de paramètres vibrorotationnels. Nous pouvons donc envisager maintenant pour cette molécule des calculs réalistes de sections efficaces d'absorption multiphotonique, ce qui était la motivation initiale essentielle de cette série d'études.

Ce travail conclut la série d'études expérimentales et théoriques menées au Laboratoire sur les niveaux vibrorotationnels excités de molécules tétraédriques, et plus particulièrement du méthane et du silane. De nombreux niveaux inaccessibles à la spectroscopie d'absorption classique ont été caractérisés pour la première fois par la technique particulièrement puissante de la double résonance IR-IR, dont l'emploi se généralisera certainement dès que des sources adaptées à ce genre d'études deviendront facilement disponibles.

PUBLICATIONS

REVUES SCIENTIFIQUES

G.M. GALE, P. SCHANNE ET P. RANSON
 Coherent Time and Frequency Domain Spectroscopy with a Picosecond Distributed-Feedback Dye Laser
 in *Ultrafast Phenomena VI*, 363 (1988)

G.M. GALE, P. SCHANNE ET P. RANSON
 Vibrational Dephasing of Biphonon Satellites in Solid CO₂
Chem.Phys. 132, 384 (1989)

P. RANSON, R. OUILLON et G.M. GALE
 Incoherent and Coherent High-Resolution Raman Spectroscopy : Complementary Tools to Study Bound States in Molecular Crystals
 Proceedings of the Celebration of C.V. Raman Birth Centenary World Scientific Publishing Co., Singapore (1989)

J. CHESNOY et G.M. GALE
 Vibrational Relaxation in Condensed Phases
Advan.Chem.Phys. 70, 297 (1988)

F. VALLEE, G.M. GALE ET C. FLYTZANIS
 Biphonon Dynamics in Ordered Ammonium Chloride
Chem.Phys.Lett. 149, 572 (1988)

F. VALLEE, G.M. GALE ET C. FLYTZANIS
 Time and Space-Resolved Study of a Dressed Polariton : the Polariton Fermi-Resonance in Ammonium Chloride
Phys.Rev.Lett. 61, 2102 (1988)

F. HACHE, D. RICARD AND C. GIRARD
 Optical nonlinear response of small metal particles : a self-consistent calculation
Phys.Rev.B 38, 7990 (1988)

F. HACHE, D. RICARD, C. FLYTZANIS AND U. KREIBIG
 The optical Kerr effect in small metal particules and metal colloids : the case of gold.
Appl.Phys.A, 47, 347 (1988)

D. RICARD, F. HACHE, P. ROUSSIGNOL AND C. FLYTZANIS
 Nonlinear optical properties of small semiconductor particles
J. de Physique France 49, C2-221 (1988)

P. ROUSSIGNOL, D. RICARD, C. FLYTZANIS AND N. NEUROTH
 Phonon broadening and spectral hole burning in very small semiconductor particles
Phys.Rev.Lett. 62, 312 (1989)

P. ROUSSIGNOL, D. RICARD, C. FLYTZANIS and N. NEUROTH
 Carrier recombination and quantum size effects in the nonlinear optical properties of semiconductor microcrystallites

à paraître dans Proceedings SPIE

D. RICARD

Nonlinear optics in composites and in heterogeneous media

à paraître dans Physica A

D. RICARD, P. ROUSSIGNOL, C. FLYTZANIS AND N. NEUROTH

Nonlinear optical properties of commercial and experimental semiconductor-doped glasses

à paraître dans Physica A

C. FLYTZANIS

Impact of dimensionality in the optical nonlinearities

dans Nonlinear Optical effects in Organic Polymers, Eds. J. Messier et al. (Kluwer, Pays-Bas) 1989

C. FLYTZANIS, D. RICARD ET P. ROUSSIGNOL

Quantum size effects and photocarrier dynamics in the optical nonlinearities of semiconductor microcrystallites

dans Optical Switching in Low dimensional Systems, Ed. H. Haug (Plenum Press) Pays-Bas, 1989

B. THEDREZ AND R. FREY

Interpretation of relaxation oscillations of semiconductor lasers in terms of dynamical Stark effect

Opt.Lett. 13, 105 (1988)

F. de ROUGEMONT AND R. FREY

Two-level approach to saturation properties in semiconductor materials

Phys.Rev.B 37, 1237 (1988)

R. FREY AND B. THEDREZ

Two-level description of instabilities in nonlinear Fabry-Perot cavities

J.Opt.Soc.Am B. 5, 1176 (1988)

B. THEDREZ, A. JONES AND R. FREY

Two-level description of gain and mixing susceptibilities in amplifying semiconductor materials

IEEE J.Quant.Electron. QE-24, 1499 (1988)

F. de ROUGEMONT AND R. FREY

Nonlinear optical balance quenching through intracavity nonlinear interactions

Phy.Rev.Lett. 60, 2010 (1988)

R. FREY AND B. THEDREZ

Interpretation of intracavity instabilities in terms of dynamical Stark effect

Journal de Physique, 49, C2-393 (1988)

N. KOTHARI AND W. CARLOTTI

Transient second harmonic generation influence of effective group velocity dispersion

J.Opt.Soc.Am.B. 5, 756 (1988)

N. KOTHARI

Nonlinear light propagation in a two-component heterogeneous medium

J.Opt.Soc.Am.B. 5, 2348 (1988)

B. KHALIL-YAHYAVI, M. CHATELET ET B.OKSENGORN

Vibrational energy relaxation of highly compressed N₂-D₂ mixtures

J.Chem.Phys. 89, 3573 (1988)

C. FLYTZANIS, H. KUZE, M. CHATELET, J. HÄGER and H. WALTHER
Impact of topography on molecular-beam scattering on surfaces : the NO-diamond case
Phys.Rev.Lett. 61, 730 (1988)

M. CHEVALIER, A. DE MARTINO ET F. MICHELOT
Vibration-rotation interactions and local modes in tétrahédral molecules
J. Mol.Spectros. 131, 382 (1988)

M. CHEVALIER ET A. DE MARTINO
Double resonance investigation of the $v=2$ and $v=3$ stretching manifolds of silane
J.Chem.Phys., accepté pour publication

F. MICHELOT, J. MORET-BAILLY ET A. DE MARTINO
Dominant rovibrational interactions in the local mode limit
Chem.Phys.Lett. 148, 52 (1988)

F. MICHELOT et A. DE MARTINO
Rovibrational interactions in stretching states of spherical tops
J. Chem.Soc.Faraday Transaction II, 84, (1988)

A. DE MARTINO
Dynamique réactionnelle
dans "Interactions plasmas froids matériaux"
Les Editions de Physique, (1988) p.211

A. MOKHTARI AND J. CHESNOY
Resonant impulsive stimulated Raman scattering
Europhysics Letters 5, 523 (1988)

J. CHESNOY AND A. MOKHTARI
Resonant Impulsive-stimulated Raman scattering
Physical Review A 38, 3566 (1988)

A. MOKHTARI, J. CHESNOY AND A. LAUBEREAU
Femtosecond time- and frequency - resolved fluorescence spectroscopy of a dye molecule
Accepté par Chem.Phys.Letters

COMMUNICATIONS A DES CONGRES

C. FLYTZANIS
Optical Computing and Nonlinear Materials
Janvier 1988, Los Angeles (E.U.)

F. VALLEE, G. GALE ET C. FLYTZANIS
European C.A.R.S. Workshop 1988
Mars 1988, Pise (Italie)

R. FREY, B. THEDREZ
4th International Topical Meeting on Optical Bistability
Mars 1988, Aussois (France)

D. RICARD, F. HACHE, P. ROUSSIGNOL AND C. FLYTZANIS
4th International Topical Meeting on Optical Bistability
Mars 1988, Aussois (France)

C. FLYTZANIS
Nonlinear Optical Effects in Organic Polymers, (NATO-ARW)
Juin 1988, Sophia-Antipolis (France)

J. CHESNOY, A. MOKHTARI
Ultrafast Phenomena VI
Juillet 1988, Kyoto (Japon)

J. CHESNOY, A. LAUBEREAU ET A. MOKHTARI
Ultrafast Phenomena VI
Juillet 1988, Kyoto (Japon)

G.M. GALE, F. VALLEE ET C. FLYTZANIS
XVI International Conference on Quantum Electronics (IQEC'88)
Juillet 1988, Tokyo (Japon)

D. RICARD, P. ROUSSIGNOL, C. FLYTZANIS AND N. NEUROTH
XVI International Conference on Quantum Electronics (IQEC'88)
Juillet 1988, Tokyo (Japon)

H. KUZE, H. HÄGER, H. VACH, M. CHATELET, C. FLYTZANIS AND H. WALTHER
XVI International Conference on Quantum Electronics (IQEC'88)
Juillet 1988, Tokyo (Japon)

C. FLYTZANIS, D. RICARD, P. ROUSSIGNOL and F. HACHE
Nonlinear Optics of Organics and Semiconductors
Juillet 1988, Tokyo (Japon)

C. FLYTZANIS, D. RICARD, P. ROUSSIGNOL and F. HACHE
Laser Materials and Laser Spectroscopy
Juillet 1988, Shanghai (Chine)

D. RICARD, F. HACHE, P. ROUSSIGNOL ET C. FLYTZANIS
Nonlinear Optical Properties of Materials
Août 1988, Troy (E.U.)

D. RICARD
Electrical, Transport and Optical Properties of Inhomogeneous Media
Août-Septembre 1988, Paris (France)

P. ROUSSIGNOL, D. RICARD, C. FLYTZANIS AND N. NEUROTH
International Congress on Optical Science and Engineering
Septembre 1988, Hambourg (R.F.A.)

C. FLYTZANIS
Ecole Nationale d'Electronique Quantique Matériaux Nonlinéaires et Applications
Septembre 1988, Brallo (Italie)

C. FLYTZANIS, D. RICARD AND P. ROUSSIGNOL

Optical Switching in Low Dimensional Systems (NATO:ARW)
Octobre 1988, Marbella (Espagne)

G.M. GALE, P. SCHANNE AND P. RANSON
Nonlinear Processes in Molecules CECAM Workshop
Octobre 1988, Palaiseau (France)

F. VALLEE
Nonlinear Processes in Molecules CECAM Workshop
Octobre 1988, Palaiseau (France)

J. CHESNOY AND A. MOKHTARI
Nonlinear Processes in Molecules CECAM Workshop
Octobre 1988, Palaiseau (France)

THESES

V. MICHAU
Conversion de fréquence et compression d'impulsion d'un laser alexandrite par diffusion Raman
stimulée intracavité
Thèse de Docteur en Sciences Physiques
7 mars 1988

F. HACHE
Effet Kerr optique dans les petites sphères et les colloïdes métalliques : étude théorique et
expérimentale dans le cas de l'or
Thèse de Docteur en Sciences Physiques
23 juin 1988

M. CHEVALIER
Etude théorique et expérimentale des spectres de vibration-rotation des molécules tétraédriques de
silane et méthane
Thèse de Docteur en Sciences Physiques
13 décembre 1988

ORGANISATION DE COLLOQUES

J. CHESNOY
Nonlinear Processes in Molecules CECAM Workshop Octobre 1988, Palaiseau (France)

LABORATOIRES DE RECHERCHE

DIRECTION DES LABORATOIRES

BIOLOGIE

Biochimie (BIOC)

CHIMIE

Chimie Fine (DCFI)

Phosphore & Métaux Transition (DCPH)

Calculs Scientifiques (DCCS)

Synthèse Organique (DCSO)

Mécanismes Réactionnels (DCMR)

MECANIQUE

Mécanique des Solides (LMS)

Météorologie Dynamique (LMD)

PHYSIQUE

Solides Irradiés (SESI)

Optique Appliquée (LOA)

Optique Quantique (OPTQ)

Interfaces et Couches Minces (PICM)

Matière Condensée (PMC)

Biophysique (BIOP)

Milieux Ionisés (PMI)

Physique Théorique (CPHT)

Physique Nucléaire Hautes Energies (PNHE)

Utilisation des Lasers Intenses (LULI)

MATHEMATIQUES

Mathématiques (MAT)

Mathématiques Appliquées (MAP)

SCIENCES HUMAINES

Econométrie (CECO)

Epistémologie (CREA)

Recherche en Gestion (CRG)

INFORMATIQUE

Informatique (LIX)

OPTO - 91128 Palaiseau Cedex
Tél. (33)(1) 60 19 41 26 - Telex 601.596 F - Télécopieur 69.41.33.92