



# Façonnage d'impulsions dans l'UV Contrôle cohérent







### **Sébastien Weber**

#### Introduction

### Le contrôle cohérent





Proposé dans les années 80 pour contrôler les produits d'une réaction chimique en utilisant les propriétés de cohérence de la lumière.

### ➢2 possibilités :

Modifier les surfaces de potentiel : Stolow *et al.* Science **314**, 278 (2006)
 Modifier les paramètres de l'impulsion : énergie, longueur d'onde, phase spectrale....

#### Introduction

### Le contrôle cohérent





Proposé dans les années 80 pour contrôler les produits d'une réaction chimique en utilisant les propriétés de cohérence de la lumière.

### ➤2 possibilités :

Modifier les surfaces de potentiel : Stolow *et al.* Science 314, 278 (2006)
 Modifier les paramètres de l'impulsion : énergie, longueur d'onde, phase spectrale...





Introduction







#### Introduction





#### Introduction





### Plan de l'exposé

≻Blabla blabla:
D
D
≻Reblabla
D
D
_



### Etat de l'art



### Ligne 4f

### Masque acousto-optique

M. Roth *et al.* Appl. Phys. B **80**, 441-444 (2005)
 B. J. Pearson *et al.* Optics Express **15**, 4385 (2007)

MEMs (matrice de micromiroirs) Hacker et al. Appl. Phys. B 76, 711 (2003)

### Cristaux liquides

J. Zhu et al. Applied Optics 49 350 (2010)

. Z. Kozma *et al.* Opt. Express **11**, 3110 - 3115 (200

 $E_{S}(t)$ 

M(X)

 $E_{E}(t)$ 

### Etat de l'art







Femto groupe - LCAR - Toulouse



Femto groupe - LCAR - Toulouse

## Interaction acousto-optique





## Interaction acousto-optique





### Acoustique et déformation

Onde acoustique  $\boldsymbol{u} = u_0 \boldsymbol{e}_y \cos(\Omega t - K_x x - K_z z)$ 

Déformation S selon xy et yz

$$S = \begin{pmatrix} S_{xx} & S_{yx} & S_{zx} \\ S_{xy} & S_{yy} & S_{zy} \\ S_{xz} & S_{yz} & S_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & S_6 & 0 \\ S_6 & 0 & S_4 \\ 0 & S_4 & 0 \end{pmatrix}$$

Déformation et optique



Variation de la permittivité  $\Delta \epsilon$ 

Déformation S

$$\left(\frac{1}{\varepsilon}\right)_{ij} = p_{ijkl}S_{kl} \quad \bigstar \quad \Delta \varepsilon = \varepsilon(p:S)\varepsilon$$

## Interaction acousto-optique





### Acoustique et déformation

Onde acoustique  $\boldsymbol{u} = u_0 \boldsymbol{e}_y \cos(\Omega t - K_x x - K_z z)$ 

Déformation S selon xy et yz

$$S = \begin{pmatrix} S_{xx} & S_{yx} & S_{zx} \\ S_{xy} & S_{yy} & S_{zy} \\ S_{xz} & S_{yz} & S_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & S_6 & 0 \\ S_6 & 0 & S_4 \\ 0 & S_4 & 0 \end{pmatrix}$$

### Déformation et optique



## **Polarisation du terme source**



Terme source
$$\nabla^2 \tilde{E}(r, \omega) + \mu_0 \omega^2 \varepsilon(r, \omega) \tilde{E}(r, \omega) = -\mu_0 \omega^2 \Delta \varepsilon(r, \omega) \tilde{E}(r, \omega)$$
Terme source $\Delta \varepsilon \tilde{E} \propto \varepsilon(p; S) \varepsilon \cdot e_i$  $\mathcal{E} = \begin{pmatrix} n_o^2 & 0 & 0 \\ 0 & n_o^2 & 0 \\ 0 & 0 & n_e^2 \end{pmatrix}$  $p_{\text{KDP}} : S = \begin{pmatrix} 0 & p_{66}S_6 & 0 \\ p_{66}S_6 & 0 & p_{44}S_4 \\ 0 & p_{44}S_4 & 0 \end{pmatrix}$  $\mathbf{E} = \begin{pmatrix} n_o^4 p_{66}S_6 \\ 0 \\ n_e^2 n_e^2 p_{44}S_4 \end{pmatrix}$  $\mathbf{E} = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$  $\Delta \varepsilon \tilde{E} \propto \begin{pmatrix} n_o^4 p_{66}S_6 \\ 0 \\ n_e^2 n_e^2 p_{44}S_4 \end{pmatrix} \perp e_i$ La polarisation du champ diffracté est modifiée par le choix de la polarisation et de la propagation de l'onde acoustique

## **Dispositif expérimental**



### AOPDF commercial : Dazzler (Fastlite) T-UV-260-410/T2 (cristal de KDP L=78mm)

**3 sources UV** 

SHG @ 404 nm
BBO 200 μm, FWHM=7 nm, E=10 μJ

SFG @ 300-360 nm BBO 200 μm NOPA+IR FWHM=3 nm, E=4 μJ

THG @270 nm BBO 200μm+ BBO150μm FWHM=2 nm, E=25 μJ

### **Techniques de caractérisation**

- >XFROG par somme ou différence de fréquence
- Cross-corrélation

Caractérisation Spatio-temporelle dans la continuité de cette thèse



## Exemple de façonnage à 270 nm





➤Augmentation progressive du nombre d'impulsions.

Les impulsions externes sont en bord de cristal.

Avec 17 impulsions, le contrôle en amplitude est plus complexe.



#### Femto groupe - LCAR - Toulouse

## Exemple de façonnage à 270 nm





➤Augmentation progressive du nombre d'impulsions.

Les impulsions externes sont en bord de cristal.

Avec 17 impulsions, le contrôle en amplitude est plus complexe.



Temps (fs)

#### Spectrogramme théorique



#### Femto groupe - LCAR - Toulouse

## Efficacité de diffraction à 270 nm



L'efficacité dépend du façonnage

Façonnage





>Accordabilité du dispositif sur une large fenêtre spectrale [250nm- 410nm].

Fenêtre temporelle estimée expérimentalement de 5 à 6 ps selon la longueur d'onde.

L'efficacité de diffraction est comprise entre 20% et 40% selon la longueur d'onde et l'énergie à l'entrée (absorption à deux photons à 270 nm)

► Résolution spectrale typique de 0.02 nm à 270 nm

# Femto groupe - LCAR - Toulouse

Perspectives

Construction d'un NOPA UV accordable et façonnable

Caractérisation des couplages spatio-temporels
 Interférométrie spatio-spectrale
 Mesures SPIDER UV
 Collaboration avec Oxford

Expérience pompe-sonde sur des molécules organiques
 Transitions dans l'UV
 Contrôle par des impulsions UV façonnées

M. Kotur *et al.* J. Chem. Phys. **130**, 134311 (2009)







### Plan de l'exposé



V. Conclusion

## **Expérience Pompe-Sonde**





### Signal détecté

- >On mesure la fluorescence de l'état f proportionnelle à  $|f(\tau)|^2 = |f(t \to \infty, \tau)|^2$
- ➤En régime perturbatif :

$$f(\tau) = -\frac{\mu_{ge}\mu_{ef}}{4\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} dt' E_s(t'-\tau) e^{i\omega_{fe}(t'-\tau)} \int_{-\infty}^{t'} dt'' E_p(t'') e^{i\omega_{eg}t''}$$

➢ Dans le domaine spectral :  $f(\tau) \propto \pi \tilde{E}_{p}(\omega_{eg}) \tilde{E}_{s}(\omega_{fe}) + iP \int d\omega \frac{\tilde{E}_{p}(\omega + \omega_{eg}) \tilde{E}_{s}(\omega_{fe} - \omega)}{\sqrt{2}} e^{-i\omega\tau}$ Terme résonnant
Terme non-résonnant

## **Excitation par une impulsion chirpée**



**Transitoires** 



Mise en évidence des transitoires cohérents avec une sonde ultracourte (thèse S. Zamith)

 Contrôle des transitoires par une pompe façonnée. Nombreux résultats : lentille de Fresnel temporelle, holographie quantique ...
 J. Degert et al. PRL 89, 203003 (2002)

- A. Monmayrant et al PRL 96, 103002 (2006)
- A. Monmayrant et al Opt. Com. 264, 256-263 (2006)

### **Motivations**

Transitoires



Le rôle de la sonde dans les expériences de contrôle

➤ Influence de :

sa longueur d'onde Katsuki *et al.* Science 2006
 sa polarisation Sokell *et al.* JPB 2000

Pompe et sonde façonnées pour contrôler l'évolution et l'état final de Li<sub>2</sub>
 Dai et Leone JCP 2007

Intérêt dans les expériences CARS pour améliorer la résolution spectrale et temporelle
 Dudovitch *et al.* Nature 2002
 Polli *et al.* CLEO 2009

### **Premier résultat : sonde chirpée**

#### Transitoires





## **Dispositif expérimental**

Transitoires



27

05/07/2010

Femto groupe - LCAR - Toulouse

## **Evolution avec la phase de la pompe**



Les oscillations disparaissent progressivement

Reste un pic de cross-corrélation dû aux désaccord aux résonances

Dynamique similaire à celle obtenue avec des impulsions limitées TF

Forte influence de la sonde sur la dynamique mesurée.

Cas extrême :

- $\Box$  Sonde fortement chirpée (-1.4 10<sup>5</sup> fs<sup>2</sup>)  $\Delta$ t=14 ps
- $\Box$  Pompe fortement chirpée (1.4.10<sup>5</sup> fs<sup>2</sup>)  $\Delta$ t=12 ps

Evolution rapide de la population de l'état final : le temps de montée est inférieur à 100 fs!!



## Phase globale du système

Transitoires



$$f(\tau) \propto \pi \tilde{E}_{p}(\omega_{eg}) \tilde{E}_{s}(\omega_{fe}) + iP \int d\omega \frac{A_{p}(\omega + \omega_{eg})e^{i\phi_{p}(\omega + \omega_{eg})}A_{s}(\omega_{fe} - \omega)e^{i\phi_{s}(\omega_{fe} - \omega)}}{\omega}e^{-i\omega\tau}$$

$$\phi_{p}(\omega + \omega_{eg}) + \phi_{s}(\omega_{fe} - \omega) = 0$$

$$\Leftrightarrow \frac{\phi_{p}^{(2)}}{2} (\omega - \delta_{p})^{2} + \frac{\phi_{s}^{(2)}}{2} (-\omega - \delta_{s})^{2} = 0$$

$$\delta_{p} = \omega_{0p} - \omega_{0s} - \omega_{0s$$

 $\mathcal{D}_{eg}$  $D_{fe}$ 

Resonance a 2 photons



## Phase globale du système

**Transitoires** 



$$f(\tau) \propto \pi \tilde{E}_{p}(\omega_{eg}) \tilde{E}_{s}(\omega_{fe}) + iP \int d\omega \frac{A_{p}(\omega + \omega_{eg})e^{i\phi_{p}(\omega + \omega_{eg})}A_{s}(\omega_{fe} - \omega)e^{i\phi_{s}(\omega_{fe} - \omega)}}{\omega}e^{-i\omega\tau}$$

$$\phi_{p}(\omega + \omega_{eg}) + \phi_{s}(\omega_{fe} - \omega) = 0$$

$$\Leftrightarrow \frac{\phi_{p}^{(2)}}{2} (\omega - \delta_{p})^{2} + \frac{\phi_{s}^{(2)}}{2} (-\omega - \delta_{s})^{2} = 0$$

$$\delta_{p} = \omega_{0p} - \omega_{p}$$

$$\delta_{s} = \omega_{0s} - \omega_{p}$$

$$\Rightarrow \phi_{p}^{(2)} = -\phi_{s}^{(2)} \text{ et } \delta_{p} = -\delta_{s}$$
Bésonance à 2 phot

 $\mathcal{O}_{eg}$  $\omega_{fe}$ 

Resonance a 2 photons



## Phase globale du système

**Transitoires** 



$$f(\tau) \propto \pi \tilde{E}_{p}(\omega_{eg}) \tilde{E}_{s}(\omega_{fe}) + iP \int d\omega \frac{A_{p}(\omega + \omega_{eg})e^{i\phi_{p}(\omega + \omega_{eg})}A_{s}(\omega_{fe} - \omega)e^{i\phi_{s}(\omega_{fe} - \omega)}}{\omega}e^{-i\omega\tau}$$

 $\mathcal{O}_{eg}$ 

$$\phi_{p}(\omega + \omega_{eg}) + \phi_{s}(\omega_{fe} - \omega) = 0$$

$$\Leftrightarrow \frac{\phi_{p}^{(2)}}{2} (\omega - \delta_{p})^{2} + \frac{\phi_{s}^{(2)}}{2} (-\omega - \delta_{s})^{2} = 0$$

$$\delta_{p} = \omega_{0p} - \omega_{eg}$$

$$\delta_{s} = \omega_{0s} - \omega_{fe}$$

$$\Rightarrow \phi_{p}^{(2)} = -\phi_{s}^{(2)} \text{ et } \delta_{p} = -\delta_{s}$$
Résonance à 2 photons

>Les phases spectrales s'annulent mutuellement.

Accès à une dynamique courte avec pompe et sonde fortement façonnées!

> Peut être utilisé pour mesurer la phase d'une impulsion inconnue



# Perspectives : transitions vers un continuum

Transitoires







### Plan de l'exposé

>Blabla blabla: □\_\_\_\_\_ >Reblabla □\_\_\_\_\_

I. Introduction

- II. Façonnage dans l'ultraviolet
- III. Expérience Pompe-Sonde

### **IV.** Factorisation de grands nombres

- 1. Factorisation et somme de Gauss
- 2. Expériences et résultats
- 3. Proposition théorique
- 4. Conclusion
- V. Conclusion

## Factorisation de grands nombres

Proposition théorique de W. Schleich sur l'utilisation de somme de Gauss pour la factorisation, alternative au calcul quantique.

>Les similarités de ces sommes avec nos travaux sur les phases quadratiques ont donné

lieu à une forte collaboration théorique et expérimentale:

- □ W. Merkel *et al.* Fortschr. Phys. 2006
- UW. Merkel et al. PRA 2007
- □ Bigourd et al. PRL 2008



Amélioration de la technique par des phases aléatoires Weber et al. Europhys. Lett. 2008



**Factorisation** 

#### 05/07/2010

35

Femto groupe - LCAR - Toulouse

# Les expériences de factorisation

### Théorie :

- □ W. Merkel *et al.* Fortschr. Phys. (2006)
- □ M. Stefanak *et al.* New Journal of Physics (2007)

### ► RMN :

- □ M. Mehring *et al.* Phys. Rev. Lett. (2007)
- □ T. S. Mahesh *et al.* Phys. Rev. A (2007)
- □ X. Peng et al. Europhysics Letters (2008)
- Atomes froids: M. Gilowski et al. Phys. Rev. Lett. (2008)
- BEC : M. Sadgrove et al. Phys. Rev. Lett. (2008)
- Train d'impulsions femtosecondes
  - D. Bigourd *et al.* Phys. Rev. Lett. (2008)
  - S. Weber *et al.* Europhysics Letters (2008)





### La somme de Gauss






## La somme de Gauss







$$A_{N}^{(l)}(l) = \sum_{m=0}^{l-1} \rho_{m} \exp\left\{2i\pi m^{2} \frac{N}{l}\right\}$$



## Particularités : troncation et pré-calcul



$$A_{N}^{(M)}(l) = \frac{1}{M+1} \sum_{m=0}^{M} \exp\left\{2i\pi m^{2} \frac{N}{l}\right\}$$

➢ En pratique, seuls les premiers termes de la somme sont suffisant pour discriminer facteurs et non-facteurs. : M. Stefanak et al. New Journal of Physics 9, 370 (2007)

### ➤La troncation M est ajustable

Mais : apparition de « fantômes » (non-facteurs difficilement discriminables)

> Dans toutes les expériences, les termes de phases de la somme sont pré-calculés.

Nécessite un système physique dans lequel la somme de Gauss est calculée automatiquement pour l variant entre 2 et  $\sqrt{N}$ 

# **Expérience de principe**





## **Premiers résultats**





## **Troncation => fantômes**

Factorisation





## **Comment tuer les « fantômes »?**







## Nouvelle approche aléatoire





## **Résultats expérimentaux**



## **Estimation de la troncation**





**Densité de probabilité**  
$$P_n(\mathbf{r}) \approx \frac{1}{\pi na^2} \exp\left\{-\frac{r^2}{na^2}\right\}$$



### **Troncation**

Factorisation





**Troncation** 

$$M + 1 = \frac{1}{2S} \ln N - \frac{1}{S} \ln \varepsilon = \frac{1}{2S} \ln \left(\frac{N}{\varepsilon^2}\right)$$

Exemple  

$$\varepsilon = 0.01$$
  
 $S = 0.5$   
 $N = 2 \ 499 \ 200 \ 063$   $M \approx 31$ 

≻Loi d'échelle améliorée pour la troncation : logarithmique
>Nombres de 10 et 13 chiffres factorisés ≈33 et 43 bits
>La phase est pré-calculée
>Nécessite  $\sqrt{N}$  expériences

# **Proposition théorique**





$$\begin{array}{ccc} 1 & \frac{N}{l} = \frac{\tau^2}{\pi \left| \phi^{(2)} \right|} & 3 & \left( \frac{N}{l} \right)_{\min} = \sqrt{N} \\ 2 & \left| \phi^{(2)} \right| \ge \frac{4}{3} \Delta t_0 M \tau & 4 & \left( \frac{N}{l} \right)_{\max} = N \end{array}$$

# **Proposition théorique**







# **Proposition théorique**







# Chirp constant – délai variable





$$(1) |\phi^{(2)}| = \frac{19\pi}{9} \Delta t_0^2 M^2 N$$
 (2)  $\tau_{\min} = \frac{4\pi}{3} \Delta t_0 M N^{3/4}$  (3)  $\tau_{\max} = \frac{4\pi}{3} \Delta t_0 M N$   $\Delta t_0 = 50 \text{ fs}$ 



# Chirp constant – délai variable





$$(1) |\phi^{(2)}| = \frac{19\pi}{9} \Delta t_0^2 M^2 N$$
 (2)  $\tau_{\min} = \frac{4\pi}{3} \Delta t_0 M N^{3/4}$  (3)  $\tau_{\max} = \frac{4\pi}{3} \Delta t_0 M N$   $\Delta t_0 = 50 \text{ fs}$ 



## Simulation de factorisation



Factorisation

## Conclusion



Factorisation de grands nombres de l'ordre de 13 chiffres

>Amélioration de la loi d'échelle des « fantômes » (en log) par choix aléatoire des phases

Proposition théorique d'un système calculant directement la somme de Gauss

➢ Mise en œuvre expérimentale prochainement

> Mais nécessite encore la répétition de  $\sqrt{N}$  expériences

### **Considérations générales**

Contrôle cohérent en boucle ouverte

### Façonnage et caractérisation d'impulsions

Systèmes variés



### Système pompe-sonde

Rôle de la sonde dans un système à 3 niveaux

Influence et compensation de la phase quadratique

Dynamique courte avec des impulsions longues



### Façonnage dans l'UV

Façonnage par interaction acousto-optique
 Diverses mises en forme (train d'impulsions, phases...)
 Fenêtre temporelle de l'ordre de 6 ps
 Efficacité de l'ordre de 20 à 40 %

### Factorisation par somme de Gauss

 Rôle de la somme de Gauss
 Mise en œuvre expérimentale et proposition théorique
 Méthode dite « aléatoire »
 Factorisation de nombre à 10 et 13 chiffres

#### >Blabla blabla: □ \_\_\_\_\_ >Reblabla □ \_\_\_\_\_

### **Considérations générales**

Contrôle cohérent en boucle ouverte

### Façonnage et caractérisation d'impulsions

≻Systèmes variés



### Systemes varies

### Système pompe-sonde

Rôle de la sonde dans un système à 3 niveaux

Influence et compensation de la phase quadratique

Dynamique courte avec des impulsions longues

# Prope

### Façonnage dans l'UV

 Façonnage par interaction acousto-optique
 Diverses mises en forme (train d'impulsions, phases...)
 Fenêtre temporelle de l'ordre de 6 ps
 Efficacité de l'ordre de 20 à 40 %

### actorisation par somme de Gauss

 Rôle de la somme de Gauss
 Mise en œuvre expérimentale et proposition théorique
 Méthode dite « aléatoire »
 Factorisation de nombre à 10 et 13 chiffres

#### >Blabla blabla: □ \_\_\_\_\_ >Reblabla □ \_\_\_\_\_

### **Considérations générales**

- Contrôle cohérent en boucle ouverte
- Façonnage et caractérisation d'impulsions

≻Systèmes variés



- Rôle de la sonde dans un système à 3 niveaux
- Influence et compensation de la phase quadratique

Dynamique courte avec des impulsions longues



### Façonnage dans l'UV

 Façonnage par interaction acousto-optique
 Diverses mises en forme (train d'impulsions, phases...)
 Fenêtre temporelle de l'ordre de 6 ps
 Efficacité de l'ordre de 20 à 40 %

### actorisation par somme de Gauss

 Rôle de la somme de Gauss
 Mise en œuvre expérimentale et proposition théorique
 Méthode dite « aléatoire »
 Factorisation de nombre à 10 et 13 chiffres

#### >Blabla blabla: □ \_\_\_\_\_ >Reblabla □ \_\_\_\_\_

### **Considérations générales**

- Contrôle cohérent en boucle ouverte
- Façonnage et caractérisation d'impulsions

≻Systèmes variés



- Rôle de la sonde dans un système à 3 niveaux
- Influence et compensation de la phase quadratique

Dynamique courte avec des impulsions longues



### Façonnage dans l'UV

 Façonnage par interaction acousto-optique
 Diverses mises en forme (train d'impulsions, phases...)
 Fenêtre temporelle de l'ordre de 6 ps
 Efficacité de l'ordre de 20 à 40 %

### Factorisation par somme de Gauss

Rôle de la somme de Gauss
Mise en œuvre expérimentale et proposition théorique
Méthode dite « aléatoire »
Factorisation de nombre à 10 et 13 chiffres

## Merci à vous



## Merci de votre attention !

>Blabla blabla: □ \_\_\_\_\_ >Reblabla □ \_\_\_\_\_ □ \_\_\_\_



# **Différents schémas**

Introduction





Expérience : Gerber et al. Science 98 ; Wöste et al. CP 2001



62

#### Introduction

## **Outils et techniques**

### Mise en forme d'impulsions

➢ Façonneur infrarouge haute résolution:

### ► AOPDF UV

Façonnage et accordabilité . . . . . . . . . . . . Weber et al. APB 98 323 (2010)
 Caractérisation dans le diamant . . . . . . . . . . . . . . . . Weber et al. UVX 15 (2009)

### Caractérisation

Cross-corrélations
 XFROG
 SPIDER







## **Domaine femtoseconde**



Introduction





# **Représentation du champ**

Enveloppe et phase spectrale  $A(\omega)$  et  $\phi(\omega)$ 

Intensité temporelle
$$A^{2}(t)$$

### Spectrogramme

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

#### Tutorial façonnage et caractérisation

A. Monmayrant, S. Weber et B. Chatel Journal of Physics B **43** 103001 (2010)









## **Résultats**





Résultats @270 nm





## Efficacité de diffraction à 270 nm



Variation non linéaire de l'efficacité synonyme d'une absorption à deux photons

Façonnage

## **Excitation par une impulsion chirpée**



**Transitoires** 



Intégrale d'une phase quadratique équivalente à la diffraction de Fresnel

Femto groupe - LCAR - Toulouse

05/07/2010 69

## Influence of the pulse number



# **Proposition théorique**







# **Proposition théorique**



➢ Fabry-Perot : la phase varie linéairement avec le délai mτ.
 ➢ Pour obtenir la factorisation il faut des délais multiple de la période T:

$$\tau = pT = p\frac{2\pi}{\omega_c}$$

➢ Nécessite une stabilité interférométrique du Fabry-Pérot et une très bonne précision sur le délai.