



HAL
open science

**Façonnage d'impulsions femtosecondes dans l'ultraviolet.
Factorisation de grands nombres. Contrôle cohérent de
systèmes atomiques et moléculaires.**

Sébastien J. Weber

► **To cite this version:**

Sébastien J. Weber. Façonnage d'impulsions femtosecondes dans l'ultraviolet. Factorisation de grands nombres. Contrôle cohérent de systèmes atomiques et moléculaires.. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de Toulouse, 2010. Français. NNT: . tel-00511903

HAL Id: tel-00511903

<https://theses.hal.science/tel-00511903>

Submitted on 26 Aug 2010

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

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par *l'Université Toulouse III - Paul Sabatier*

Discipline ou spécialité : *Physique*

Présentée et soutenue par *Sébastien Weber*

Le *05 juillet 2010*

Titre : *Façonnage d'impulsions femtosecondes dans l'ultraviolet. Factorisation de grands nombres. Contrôle cohérent de systèmes atomiques et moléculaires.*

JURY

Philippe Balcou (rapporteur)

Sophie Brasselet

Daniel Braun

Béatrice Chatel (directrice de thèse)

Patrick Georges

Manuel Joffre

Nicolas Treps (rapporteur)

Ecole doctorale : *Ecole doctorale des Sciences de la matière*

Unité de recherche : *Laboratoire Collisions Agrégats Réactivité UMR 5589*

Directeur(s) de Thèse : *Béatrice Chatel*

Remerciements

Il est assez étrange de commencer une thèse par un « chapitre » que l'on écrit alors que tout (ou presque) est fini. C'est un exercice de retour sur soi et sur le passé qui conclut trois années à travailler avec des personnes formidables. Je les ai rencontrées tout au long d'un chemin, parfois tortueux, mais dont les détours m'ont toujours apportés plus qu'ils ne m'ont coûté (surtout en repensant aux détours par les Houches en hiver et Cargèse en Août). Ces rencontres resteront les meilleurs souvenirs de mes années thésards. Laissez moi donc vous conter brièvement ce chemin...

Il y a de cela trois années, un homme du nord (c'est moi) a fait naufrage dans les terres du sud. Fort heureusement, le capitaine de vaisseau Béatrice, a pris les choses en mains et a déterminé un itinéraire évitant les écueils et autres dangers. Merci chef!

Merci aussi à tout l'équipage :

- Les rameurs (comme moi) : Nico le breton, Ayhan l'iranien bien sapé, Peyo le faux basque de la vallée d'Osso, Steven le voisin de bureau, Claire-Marie, les doctoriants (Émeline, Séverine, Bénédicte, Julien...) et bien d'autres !
- Charlotte, Jonathan et Charles, les mousses stagiaires plein d'enthousiasmes qu'il a été très agréable de former.
- Marie et Raluca les maîtres d'équipages qui maintiennent l'ordre et la cohésion du groupe ainsi que David fils de Cabe, le bosco qui m'a appris la pluie.
- Les charpentiers du navire : Stéphane labview Master, Elsa laser Master, Thierry élec Master, Marie-France admin master ainsi qu'Agnès, Pépé, Gilles, Daniel et Michel sans qui le navire se serait échoué.
- Merci aussi à tous les officiers, hauts gradés de la recherche, riches de conseils en tout genre. Particulièrement Valérie, Bertrand et Chris mais également tout les membres du labo.
- Merci à l'université, cette mer immense où il est toujours très dur de s'orienter mais qui finalement nous rend plus apte à naviguer sur des terres et mers étrangères...
- Merci aux étudiants qui m'ont supporté durant ces 192 heures de monitort. Cela restera une très bonne expérience !
- Merci à tous les autres, gens de passage ou rencontrés lors de mes diverses escales sur les mers du monde !
- Merci à la pala, digne sport du sud auquel j'ai été initié par la joyeuse bande du labo !

Merci enfin à ma petite femme Aurore qui m'a soutenu sans faille malgré sa thèse à elle et notre petit Léon, matelot arrivé en cours de route... pour notre plus grand bonheur !!!

Table des matières

INTRODUCTION	9
1 Dispositifs expérimentaux	13
1.1 Présentation générale	13
1.2 NOPA	14
1.2.1 L'amplification paramétrique	15
1.2.2 La géométrie non-colinéaire	15
1.3 Façonnage	18
1.3.1 Complexité et représentation du champ électrique	19
1.3.2 Façonneur à cristaux liquides	20
1.3.2.1 Ligne 4f	21
1.3.2.2 Masque à cristaux liquides	23
1.3.2.3 Résultats	24
1.4 Caractérisation	25
1.4.1 Autocorrélation	25
1.4.2 Cross-corrélation	26
1.4.3 Cross-corrélation résolue spectralement : XFROG	27
1.4.4 SPIDER	28
2 Façonnage dans l'Ultraviolet.	31
2.1 État de l'art	31
2.1.1 Le transfert de phase et d'amplitude	32
2.1.1.1 Génération de seconde harmonique	32
2.1.1.2 Application numérique	34
2.1.1.3 Transfert de phase et d'amplitude	35
2.1.2 La mise en forme directe	37
2.2 Filtre acousto-optique dispersif programmable dans l'UV AOPDF	39
2.2.1 Mise en forme	40
2.2.2 Nature de l'interaction	41
2.2.2.1 L'effet photo-élastique	41
2.2.2.2 Diffraction de Bragg	42
2.2.2.3 Couplage acousto-optique	44
2.2.3 Caractéristiques de notre AOPDF	46
2.2.3.1 Géométrie de l'interaction	46
2.2.3.2 Grandeurs caractéristiques	47

2.2.3.3	Réglages	48
2.2.3.4	Limitations	50
2.2.4	Résultats expérimentaux	51
2.2.4.1	Dispositif expérimental	51
2.2.4.2	Mise en forme	53
2.2.4.3	Efficacité	57
2.3	Ouverture et conclusion	58
2.3.1	Source UV accordable et façonnable	58
2.3.2	Caractérisation d'impulsions UV dans le diamant	60
2.3.2.1	Absorption à deux photons dans le diamant	60
2.3.2.2	Résultats expérimentaux	61
2.3.3	Caractérisation spatio-temporelle	63
2.3.4	Conclusion	65
3	Somme de Gauss, interférences et factorisation	67
3.1	La somme de Gauss	68
3.2	Proposition théorique « idéale »	72
3.2.1	Calcul du champ somme de fréquence	72
3.2.2	Possibilités expérimentales	74
3.2.3	Chirp constant - délai variable	76
3.2.4	Chirp variable - délai constant	78
3.2.5	Bilan	79
3.3	Expériences de démonstration	80
3.3.1	Ce qui a été fait !	80
3.3.2	Champ électrique, effet Talbot et somme de Gauss	82
3.3.2.1	Présentation de notre expérience	82
3.3.2.2	Difficulté expérimentale	83
3.3.3	Première mise en œuvre	87
3.3.4	Factorisation de grand nombres	90
3.3.5	L'approche aléatoire	91
3.3.6	Marche aléatoire	94
3.3.6.1	Densité de probabilité et statistique	95
3.3.6.2	Estimation de la troncature	96
3.4	Perspectives et conclusion	97
3.4.1	Améliorations possibles	97
3.4.2	Conclusion	99
4	Mise en forme pour le contrôle cohérent	101
4.1	Formalisme de l'interaction entre une impulsion laser et un atome	101
4.1.1	Notations et définitions	102
4.1.2	Équation de Schrödinger	103
4.1.2.1	Représentation d'interaction - référentiel tournant	103
4.1.2.2	Expression des amplitudes	104
4.1.2.3	Calcul perturbatif	105
4.1.2.4	Amplitude et champ spectral	106

4.2	Systèmes Pompe-Sonde	108
4.2.1	Schéma Pompe-Sonde classique	109
4.2.2	Contrôle du régime transitoire	109
4.2.3	Transitoires cohérents	111
4.2.4	Influence de la sonde	113
4.2.4.1	Pompe courte-Sonde chirpée	113
4.2.4.2	Cas général	118
4.2.4.3	Principe de l'expérience	124
4.2.4.4	Résultats	127
4.2.5	Transitions vers un continuum et Harmoniques d'ordres élevés	129
4.2.5.1	Transition vers un continuum	129
4.2.5.2	Les harmoniques comme Sonde chirpée	130
4.2.5.3	La phase des harmoniques	132
4.2.6	Conclusion	133
4.3	Absorption à deux photons	134
4.3.1	TPA sans état intermédiaire	135
4.3.1.1	Analogie avec la somme de fréquence dans les cristaux	136
4.3.1.2	Phase anti-symétrique	137
4.3.1.3	Phase symétrique	138
4.3.1.4	Autres phases	140
4.3.1.5	Transition Raman	142
4.3.1.6	Conclusion	143
4.3.2	TPA avec un état intermédiaire	143
4.3.2.1	Impulsions noires	144
4.3.2.2	Maximisation de la TPA	144
4.3.3	Mesure et contrôle de la précession de Spin-Orbite	147
4.3.3.1	Théorie	148
4.3.3.2	Expérience	153
4.3.3.3	Ouverture	154
4.3.4	Conclusion	155
4.4	Contrôle du refroidissement vibrationnel de molécules froides	157
4.4.1	La photo-association	158
4.4.2	La détection	158
4.4.3	Le pompage optique	159
4.4.4	Résultats expérimentaux	159
4.4.4.1	Dispositif expérimental	159
4.4.4.2	Résultats	160
4.4.5	Conclusion	161

Annexe	168
A Formalisme et notations	169
A.1 Champ électrique	169
A.1.1 Définitions - Notations	169
A.1.2 Durée - largeur spectrale	169
A.1.3 Fréquence instantanée-Temps de groupe	171
A.2 Transformée de Fourier	171
A.2.1 Définitions	171
A.2.2 Propriétés et transformées de Fourier usuelles...ou non	171
A.2.3 TF d'une impulsion limitée par transformée de Fourier	172
A.2.4 TF d'une impulsion avec une phase quadratique	173
B Marche aléatoire	175
B.1 Expression exacte	175
B.2 Calcul approché	177

INTRODUCTION

Depuis ses origines, l'être humain a cherché à comprendre puis à contrôler son environnement. Quand les observations directes ne sont pas possibles, nous développons des outils dont l'utilisation est notre trait caractéristique. Le monde de la physique quantique ne fait pas exception, et le rayonnement électromagnétique en est l'outil d'étude privilégié. En particulier, le laser présente les meilleures caractéristiques de cohérence, de durée ou de monochromaticité, de polarisation... pour étudier les atomes et les molécules.

Le laser fête cette année ses 50 ans et depuis sa création, cette source de lumière cohérente a grandement évolué. C'est maintenant un outil courant, voire même un accessoire très prisé des conférenciers, dont l'utilisation est très diverse. Une de ses évolutions a trouvé une utilité très importante dans l'étude de dynamique atomique et moléculaire, le régime impulsional. Depuis 30 ans, la durée des impulsions a diminué progressivement, passant en revue les différents ordres de grandeurs de « l'infiniment petit ». Jusqu'à récemment, elle était limitée au domaine femtoseconde par sa longueur d'onde dans le proche infrarouge (IR) ou le visible, mais la génération d'harmoniques d'ordres élevés a donné naissance aux impulsions VUV, « Vacuum UltraViolet », attosecondes [Krausz 09].

La spectroscopie ultra-rapide utilise, depuis presque 20 ans, la durée extrêmement brève des impulsions lasers femtosecondes pour mesurer les dynamiques électroniques et moléculaires [Zewail 94]. De plus, l'utilisation d'une ou de plusieurs impulsions en permettent aussi le contrôle [Tannor 86]. L'origine de ce contrôle réside dans les interférences quantiques entre les différents chemins d'excitation de la matière.

Une avancée majeure dans le domaine a été faite avec l'apparition du façonnage d'impulsions dans les années 90 [Weiner 88] alliée à la technique de contrôle optimal dite en boucle fermée introduite par H. Rabitz [Warren 93]. Le système converge vers une forme d'impulsion optimale pour un objectif fixé d'avance. Pour cela, une rétroaction est appliquée sur le façonneur selon la pertinence des résultats. De nombreuses dynamiques réactionnelles ont ainsi été contrôlées et la première en date a été effectuée par le groupe de G. Gerber [Assion 98]. L'impulsion finale est optimale au sens de la convergence de l'algorithme utilisé mais rien ne dit qu'elle est effectivement la solution optimale du problème. En outre, il est difficile d'obtenir des informations sur le système et de savoir comment se déroule la dynamique en analysant le profil très complexe des impulsions utilisées.

Dans le cas de systèmes plus simples, par exemple des atomes, il est possible de prévoir par le calcul le comportement du système excité par différentes mises en forme. L'intérêt réside alors dans l'apprentissage de techniques de contrôle, dit cohérent, et de leur application à des systèmes plus complexes. On parle alors de contrôle en boucle ouverte. Les façonneurs de plus en plus performants ont rendu possible l'étude systématique de la dynamique de systèmes atomiques initiée par des mises en formes diverses. L'équipe de L. Noordam en a posé une des premières pierres [Broers 92a] suivie principalement par l'équipe de Y. Silberberg [Meshulach 98, Dudovich 01, Dudovich 02a] avec un façonnage par des sauts de phase, le groupe de S. Leone [Amitay 01, Dai 07] et le nôtre

[Zamith 01b, Degert 02b, Monmayrant 06a] avec des impulsions à dérives de fréquence. Les résultats généraux obtenus ont alors été mis en pratique pour l'étude de molécules plus complexes [Walowicz 02] ainsi que pour les techniques d'imagerie [Ogilvie 06]. La tendance actuelle est l'utilisation de boucle fermée avec une analyse du façonnage se servant des informations obtenues par le contrôle en boucle ouverte [Daniel 03, Zamith 04].

Tous les schémas de contrôle actuels nécessitent une forte mise en forme. Les premiers façonneurs ont d'abord été développés pour fonctionner dans le visible et le proche infrarouge, plage de fréquence du rayonnement fondamental des chaînes lasers femtosecondes. Ils sont basés pour la plupart sur des systèmes dispersifs où les différentes fréquences sont séparées spatialement. Elles passent alors par différents chemins optiques. L'insertion sur ces chemins d'un modulateur spatial de lumière donne, au final, une impulsion façonnée [Froehly 83]. Cependant, de nombreuses études se situent dans des domaines de longueur d'onde où il n'existe pas (ou peu) de moyen simple de contrôle de la lumière. C'est le cas du moyen infrarouge [Strasfeld 07], pour le contrôle vibrationnel de molécules, voir même du rayonnement Terahertz [Vidal 10] ainsi que de l'UV lointain pour des transitions à un photon dans des molécules organiques [Kotur 09]. Un effort technologique et de recherche a donc été nécessaire pour transférer ces techniques à ces gammes de longueur d'onde. La première étape est souvent un transfert de phase depuis le proche IR vers l'UV [Schriever 06] ou le moyen IR [Kaindl 00, Belabas 01]. Un façonnage direct à ces longueurs d'onde non-conventionnelles est ensuite rendu possible par les avancées techniques [Roth 05, Shim 06, Coudreau 06].

Le développement de l'AOPDF [Tournois 97a] « Filtre Dispersif Acousto-Optique Programmable » a ces différentes longueurs d'onde en fait aujourd'hui un outil intéressant pour le contrôle cohérent. Il est basé sur l'interaction colinéaire entre une onde acoustique programmable et une onde optique à mettre en forme. La diffraction de la seconde sur le réseau de phase créé génère une onde optique façonnée. La phase et l'amplitude sont transférées du domaine acoustique au domaine optique. Nous nous sommes dotés, dans l'équipe, d'un AOPDF fonctionnant dans l'UV, et avons étudié ces caractéristiques et ses possibilités de façonnage [Weber 10a]. Plusieurs applications utilisant des impulsions UV façonnées ont alors été envisagées dont la cross-corrélation par absorption à deux photons dans le diamant [Weber 09] ainsi que des perspectives pour des mesures de couplage spatio-temporel.

Les compétences acquises dans le domaine du façonnage et de la caractérisation m'ont alors amené à la co-rédaction d'un tutoriel sur les bases du façonnages et de la caractérisation d'impulsions ultracourtes. Le travail important de bibliographie nécessaire à sa rédaction m'a donné l'opportunité d'étendre mes connaissances aux techniques diverses du domaine mais a nécessité une part non-négligeable de ma thèse. Un certain nombre de figures présentes dans cette thèse en sont tirées et j'invite le lecteur néophyte et/ou intéressé à le parcourir [Monmayrant 10].

Parallèlement à cela, j'ai continué à étudier, dans la lancée des travaux précédents

du groupe [Zamith 01a, Degert 02a, Monmayrant 05a], le façonnage d'impulsions pour le contrôle de différents systèmes atomiques et moléculaires. De ces études ont émergé des expériences « classiques » de contrôle cohérent [Chatel 08, Weber 10b], mais aussi des applications plus originales comme par exemple le refroidissement vibrationnel de molécules froides [Sofkitis 09] en collaboration avec l'équipe de Pierre Pillet du laboratoire Aimé Cotton (Orsay). Le façonnage de trains d'impulsions pour la factorisation de grands nombres est une autre application [Weber 08]. La factorisation est basée sur l'utilisation d'une somme de Gauss, outil d'analyse en mathématiques que l'on retrouve étrangement dans de nombreux phénomènes physiques [Merkel 06a].

Ce manuscrit est organisé en quatre chapitres :

- Le chapitre I présente les différents outils et éléments expérimentaux nécessaires aux expériences de contrôle cohérent et à la manipulation d'impulsions femtosecondes.
- Le chapitre II présente l'étude détaillée d'un AOPDF UV commercialisé par la société Fastlite. Une première partie explique le fonctionnement de ce dispositif et donne des éléments de compréhension sur la nature anisotrope de l'interaction acousto-optique. La deuxième partie porte sur ses caractéristiques expérimentales telles que son efficacité et son accordabilité. Une étude à trois longueurs d'ondes différentes dans l'UV en est faite.
- Le chapitre III s'intéresse à la théorie et aux expériences effectuées sur la factorisation de grands nombres par la somme de Gauss. La factorisation est dans ce cas effectuée par l'évolution d'un paquet d'onde dans différents systèmes physiques. Après une revue des différentes expériences, plusieurs résultats expérimentaux sont présentés dont l'utilisation de sommes aléatoires. Enfin une proposition théorique qui devrait améliorer la technique de factorisation est proposée.
- Le chapitre IV s'intéresse en détail aux transitions à deux photons. La première partie présente le formalisme mathématique de l'interaction entre deux impulsions femtosecondes et un système atomique. Nous dérivons les expressions théoriques utiles à la compréhension de la suite. La deuxième partie s'intéresse particulièrement aux transitions 1+1 photons via un état intermédiaire. Ce type de système, aussi appelé Pompe-Sonde donne accès à la dynamique ultra-rapide d'un état excité par l'impulsion pompe. Généralement cette dynamique est contrôlée par le façonnage de cette impulsion et détectée par une impulsion sonde ultra-courte. Nous envisageons ici le rôle d'un façonnage sur la sonde et l'illustrons sur des *transitoires cohérents*. Ce sont des oscillations, dans le régime transitoire, produites par une impulsion pompe à dérive de fréquence (chirpée). La troisième partie est une étude générale du contrôle de l'absorption directe à deux photons. Nous nous intéressons au cas sans état intermédiaire puis avec un état voire plusieurs. Cette étude permet de mettre en avant différentes techniques

de contrôle cohérent. Elle donne aussi une bonne introduction à l'expérience du contrôle des oscillations de Spin-Orbite dans le Rubidium.

Enfin le contrôle du refroidissement vibrationnel de molécules froides est présenté.

Ce travail en collaboration avec le groupe de Pierre Pillet m'a donné l'occasion de me familiariser avec ces systèmes.

Chapitre 1

Dispositifs expérimentaux

Ce chapitre introduit les divers techniques et outils expérimentaux utilisés couramment au laboratoire et durant ma thèse. Ils ont pour la plupart fait l'objet d'études par le passé et nous ne donnerons ici que les détails nécessaires à la compréhension des autres chapitres. Ces outils ont majoritairement été développés pour le façonnage d'impulsions et leur caractérisation. A ce titre, j'invite le lecteur intéressé à consulter le tutoriel co-écrit avec Béatrice Chatel et Antoine Monmayrant, sur les bases du façonnage et de la caractérisation [Monmayrant 10], dont certains points sont repris ici. Cette revue a nécessité un travail de bibliographie et de synthèse important durant ma thèse.

1.1 Présentation générale

La chaîne laser utilisée au sein de l'équipe FEMTO est une chaîne classique basée sur la technique CPA [Le Blanc 93] pour l'acronyme anglais « Chirp Pulse Amplification », elle a été développée par Amplitude Technologies et baptisée « Pulsar ». Nous présenterons ces caractéristiques de manière succincte en insistant sur les paramètres importants et nécessaires à nos expériences. La figure 1.1 est une vue schématique des divers éléments de cette chaîne.

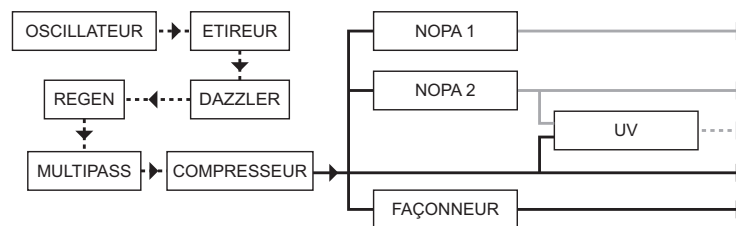


Figure 1.1 – Présentation schématique de la chaîne laser CPA de l'équipe.

L'oscillateur fournit des trains d'impulsions infrarouges, centrées à 800 nm et de largeur spectrale 80 nm, à haute cadence (76 MHz) et de basse intensité crête (5,2 nJ). Celles-ci sont d'abord étirées, par ajout de phase quadratique positive puis légèrement mises en forme par un filtre acousto-optique dispersif programmable. Il s'agit d'un AOPDF de type DazzlerTM[Tournois 97b] produit par la société Fastlite. Il permet de corriger la phase

résiduelle de la chaîne et de modifier l’amplitude spectrale des impulsions. Elles sont ensuite amplifiées, d’abord par un amplificateur à cavité qui abaisse la cadence à 1 kHz, mais produit des impulsions avec des intensités crêtes élevées ($520 \mu\text{J}$) puis par un amplificateur multi-passage qui donne une énergie de 5 mJ par impulsion. Le compresseur applique la phase opposée de l’étireur pour donner en fin de chaîne des impulsions d’environ 50 fs et 3 mJ. Le faisceau est ensuite séparé sur plusieurs voies. La première ($\simeq 1,5 \text{ mJ}$) sert aux expériences de dynamique moléculaire et le reste est dédié aux expériences de contrôle. Une partie de l’énergie sert à alimenter des amplificateurs paramétriques optiques non-colinéaires (section 1.2) ou NOPA. Ceux-ci fournissent des impulsions très courtes (25 fs) et accordables dans le visible (de 500 à 700 nm). Les autres lignes peuvent être utilisées telles quelles ou dirigées vers un façonneur infrarouge [Monmayrant 04, Monmayrant 05a] (section 1.3.2) ou ultraviolet qui sera décrit en détail dans le chapitre 2. De plus, par somme de fréquence entre les impulsions visibles et infrarouges (faisceau fondamental) ou par doublement ou triplage de fréquence du fondamental, des impulsions UV accordables peuvent être générées. Enfin, différents dispositifs sont utilisés pour caractériser (section 1.3) les différentes impulsions générées.

Le tableau 1.1 résume les principales caractéristiques de la chaîne laser.

Propriété	Oscillateur	Régénératif	Multi-passage	Sortie
Puissance moyenne	400 mW	520 mW	5 W	3 W
Taux de répétition	76 MHz	1 kHz	1 kHz	1 kHz
Énergie par impulsion	5,2 nJ	$520 \mu\text{J}$	5 mJ	3 mJ
Longueur d’onde centrale	800 nm	$800 \pm 10 \text{ nm}$	$800 \pm 10 \text{ nm}$	$800 \pm 10 \text{ nm}$
Largeur spectrale	70 nm	30 nm	30 nm	30 nm

Table 1.1 – Principales caractéristiques de notre chaîne laser.

1.2 NOPA

Nous disposons, en sortie de chaîne, d’impulsions intenses dans le proche infrarouge (entre 810 et 790 nm). Pour avoir accès à une plus grande variété de systèmes atomiques ou moléculaires, il nous faut des impulsions femtosecondes accordables. Nous disposons pour cela de deux amplificateurs paramétriques optiques non colinéaires ou NOPA qui ont été utilisés pour les expériences de contrôle cohérent, afin d’exciter une transition électronique dans le rubidium (voir chapitre 4).

Ces amplificateurs sont un type particulier d’oscillateurs paramétriques optiques ou OPA [Cerullo 03], permettant d’obtenir des impulsions de quelques dizaines de femtosecondes, accordables sur l’ensemble du spectre visible. L’étude du fonctionnement des NOPA dépasse le cadre de cette thèse [Wilhelm 97, Shirakawa 98], nous nous bornerons ici à rappeler brièvement le principe de l’amplification paramétrique optique et la spécificité de la géométrie non-colinéaire.

1.2.1 L'amplification paramétrique

L'amplification paramétrique repose sur le processus de différence de fréquences dans un cristal non-linéaire d'ordre deux et l'amplification d'un signal très faible (pulsation ω_s) par un faisceau pompe intense (pulsation ω_p). Par différence de fréquences une partie des photons de la pompe est convertie en une paire de photons de pulsation ω_s et ω_i respectivement appelés signal et idler (ou complémentaire). Ces deux pulsations vérifient la conservation de l'énergie :

$$\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_i \quad (1.1)$$

L'interaction dans le cristal entre la pompe et le signal se traduit par une amplification du signal et l'apparition du champ complémentaire de pulsation $\omega_i = \omega_p - \omega_s$.

Dans le cas d'impulsions courtes, plusieurs processus limitent cette amplification :

- Les impulsions pompe et signal se propagent à des vitesses différentes dans le cristal (désaccord de vitesse de groupe ou GDM pour « Group Delay Mismatch ») ce qui réduit leur zone d'interaction.
- Les impulsions sont étirées lors de leur propagation (dispersion de la vitesse de groupe ou GDD pour « Group Delay Dispersion ») et sont donc moins intenses, ce qui diminue l'amplification.
- En plus de la condition de conservation de l'énergie, les trois champs présents dans le cristal doivent vérifier la conservation de l'impulsion ou accord de phase : $\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_i$. Cet accord de phase est en général très sélectif en fréquence et ne permet pas d'amplifier toute la large bande spectrale des impulsions très courtes.

C'est dans ce but que la géométrie non-colinéaire a été développée, car elle permet de lever en partie ces limitations.

1.2.2 La géométrie non-colinéaire

L'idée est donc d'introduire un angle α entre les faisceaux pompe et signal. Pour un angle bien choisi (qui dépend notamment du type de cristal), on arrive à satisfaire l'accord de phase sur une grande plage spectrale à un angle de coupe θ du cristal donné. Cette géométrie est présentée sur la figure 1.2.

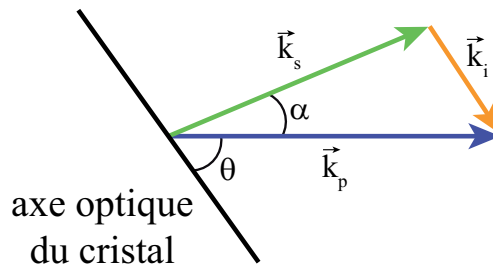


Figure 1.2 – Géométrie de l'accord de phase non-colinéaire.

On peut calculer l'angle α optimal pour un cristal donné en utilisant les équations de Sellmeier et en jouant sur les indices ordinaires et extraordinaires du cristal. Dans le

triangle formé par les vecteurs d'ondes de la pompe du signal et du complémentaire, on a la relation

$$|k_i|^2 = |k_p|^2 + |k_s|^2 - 2|k_p||k_s| \cos \alpha \quad (1.2a)$$

$$(n_i \omega_i)^2 = (n_p \omega_p)^2 + (n_s \omega_s)^2 - 2\omega_p n_p \omega_s n_s \cos \alpha \quad (1.2b)$$

avec $|k_l| = n_l \frac{\omega_l}{c}$, $l = i, p, c$ la norme des vecteurs d'onde où n_l est l'indice du cristal à la pulsation correspondante et c la vitesse de la lumière dans le vide. Ce qui nous permet d'avoir une équation du second ordre en n_p :

$$n_p^2 - 2n_p n_s \frac{\omega_s}{\omega_p} \cos \alpha + \frac{(n_s \omega_s)^2 - (n_i \omega_i)^2}{\omega_p^2} = 0 \quad (1.3)$$

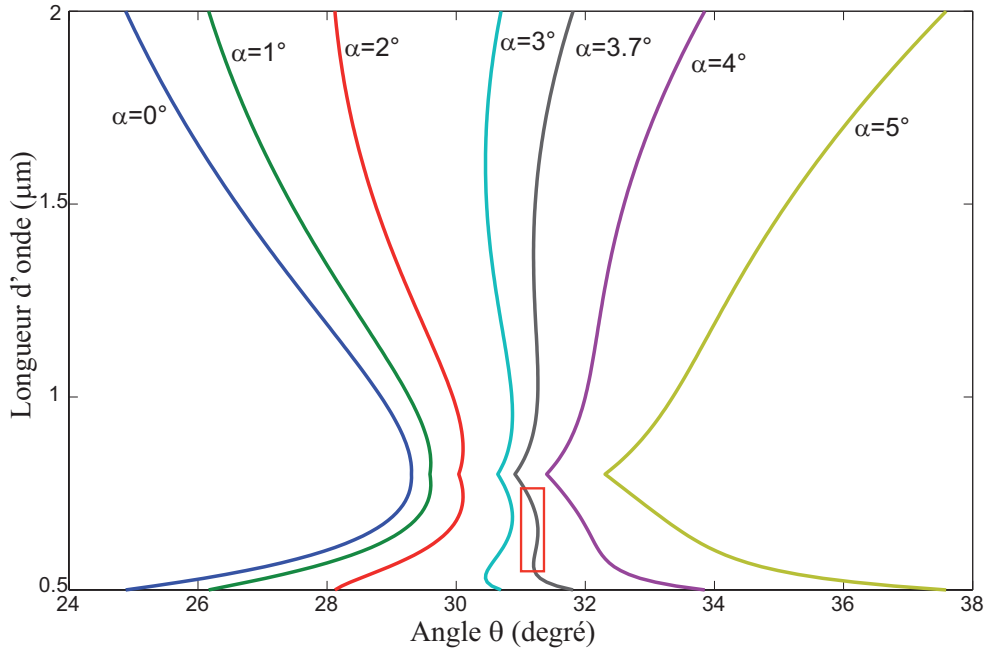


Figure 1.3 – Courbes représentant les conditions géométrique d'accord de phase pour différents angles α entre les vecteurs d'ondes signal et pompe. Elles sont tracées en fonction de la longueur d'onde centrale du signal et en fonction de l'angle θ entre l'axe optique du cristal et le vecteur d'onde de la pompe.

On choisi la solution comprise entre les valeurs extrêmes n_{po} et n_{pe} , indices ordinaire et extraordinaire du cristal, donnés par la formule de l'ellipsoïde des indices, et qui dépend de l'angle de coupe du cristal :

$$\frac{1}{n_p(\theta)} = \frac{\sin^2 \theta}{n_{pe}^2} + \frac{\cos^2 \theta}{n_{po}^2} \quad (1.4a)$$

$$\sin^2 \theta = \frac{\left(\frac{1}{n_{pe}(\theta)} - \frac{1}{n_{po}^2} \right)}{\left(\frac{1}{n_{pe}^2} - \frac{1}{n_{po}^2} \right)}. \quad (1.4b)$$

Les indices ordinaire et extraordinaire sont donnés par les équations de Sellmeier. Finalement, on obtient la valeur de θ (et donc la coupe du cristal) suivant un angle α donné et une pulsation ω_s du signal donnée. La figure 1.3 représente les courbes d'accord de phase en fonction de longueur d'onde du signal (ou de l'idler) et de l'angle θ pour différents angles α . Cette figure est tracée pour un cristal de BBO (Béta-Borate de Barium) et une impulsion pompe centrée à 400 nm.

Cette figure montre que l'angle de coupe du cristal $\theta \simeq 31,5^\circ$ est quasi-constant pour $\alpha \simeq 3,7^\circ$ (angle entre la pompe à 400 nm et le signal) sur une plage allant de 500 à 700 nm (rectangle sur la figure 1.3). Pour cette géométrie, l'amplification du signal peut se faire sur toute cette plage spectrale, ce qui donne alors des impulsions très courtes dans le visible.

La figure 1.4 présente les NOPAs tels qu'ils ont été développés dans notre laboratoire. Environ $350 \mu\text{J}$ à 800 nm alimente le NOPA. Une très faible partie est prélevée et focalisée

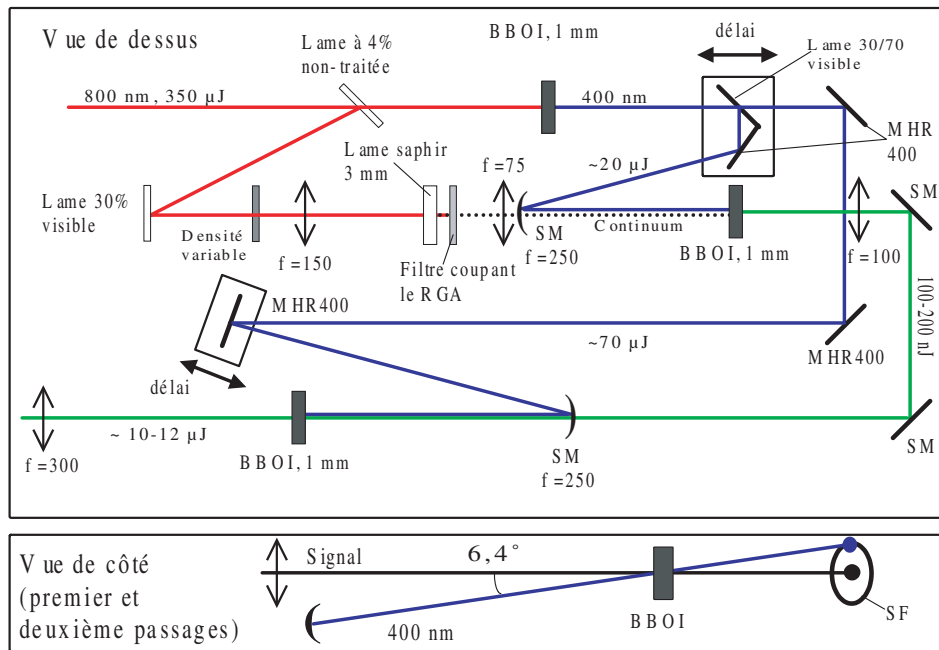


Figure 1.4 – Figure extraite de la référence [Degert 02a]. Schéma de l'amplificateur paramétrique optique.

dans une lame de saphir (2 mm d'épaisseur) ce qui génère un continuum de lumière blanche [Alfano 05] à forte dérive de fréquence (300 fs de durée) par auto-modulation de phase. Le reste du faisceau infrarouge est envoyé dans un cristal de BBO type I (1 mm d'épaisseur) afin d'obtenir une impulsion de pompe à 400 nm. Une part de cette pompe (20 μJ) et le continuum sont focalisés dans un cristal de BBO type I (1 mm d'épaisseur). L'amplification paramétrique au sein de ce cristal permet d'obtenir un champ signal de quelques centaines de nano-joules. La longueur d'onde centrale de ce signal est accordée en changeant le délai entre la pompe et le continuum. En effet, la pompe est plus courte que le continuum et elle n'amplifie qu'une « tranche » temporelle du continuum. Compte tenu de la dérive

de fréquence du continuum, cette « tranche » a une longueur d'onde qui dépend du délai. Afin d'obtenir une dizaine de μJ de signal, un deuxième étage est utilisé. Sa géométrie est identique au premier excepté la pompe qui est plus intense ($70 \mu\text{J}$). Enfin, la sortie est comprimée par un compresseur à prismes non représenté. La figure 1.5 représente les différents spectres mesurés à la sortie du NOPA pour différents délais entre le continuum et la pompe.

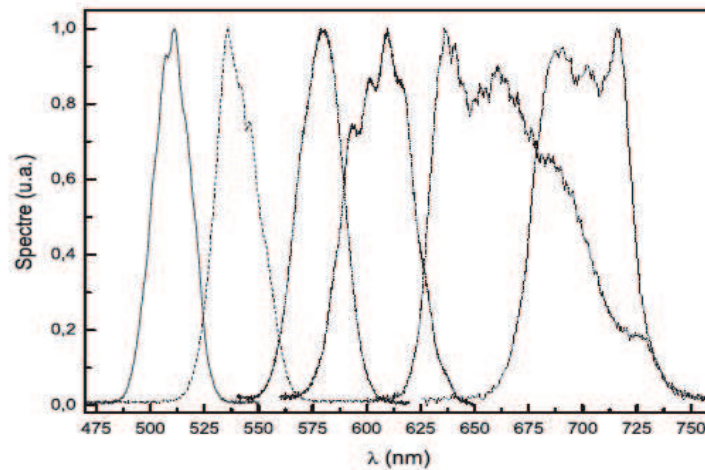


Figure 1.5 – Figure extraite de la référence [Degert 02a]. Différents spectres obtenus en sortie du NOPA selon le délai entre la pompe et le continuum.

1.3 Façonnage

Le façonnage d'impulsions femtosecondes nécessite la combinaison de techniques expérimentales diverses [Weiner 00] telle l'utilisation de masques à cristaux liquides ou de cristaux acousto-optiques. De plus, la mise en forme doit être validée par des techniques de caractérisation originales, qui répondent à la question suivante :

« Comment mesurer l'événement le plus court que l'on sache produire ? »

En effet, les méthodes de mesure habituelles reposent sur l'utilisation d'une référence de temps plus courte que l'événement à mesurer. Dans le cas des impulsions femtosecondes, une telle référence n'existe pas (à moins bien sûr de disposer d'une impulsion attoseconde [Goulielmakis 04]). Il existe cependant de nombreuses techniques qui permettent une mesure partielle ou complète d'une impulsion femtoseconde.

Après avoir rappelé brièvement les caractéristiques de notre façonneur infrarouge [Monmayrant 04], nous présentons ici trois techniques que nous utilisons couramment pour caractériser les impulsions à 800 nm dans le visible et dans l'ultraviolet ^a. Mais tout d'abord, nous allons définir un paramètre important pour le façonnage et la caractérisation puis donnerons les différents types de représentation d'un champ électrique.

a. Nous ne présenterons ici qu'un aperçu de ces techniques. En particulier le façonnage et la caractérisation dans l'UV font l'objet du chapitre 2

1.3.1 Complexité et représentation du champ électrique

Une impulsion laser est entièrement caractérisée par son champ électrique $\mathcal{E}(t)$ et sa polarisation^b. Pour une impulsion laser femtoseconde, le champ temporel n'est pas facilement accessible et le domaine spectral est souvent utilisé pour le façonnage et la représentation. On note $\tilde{\mathcal{E}}(\omega) = 1/2[\tilde{E}(\omega) + \tilde{E}^*(-\omega)]$ sa transformée de Fourier (TF) avec $\tilde{E}(\omega)$ le champ électrique complexe défini pour les fréquences positives. Il contient toute l'information sur le champ et sa TF inverse est liée à $\mathcal{E}(t)$ par $\mathcal{E}(t) = \text{Re}[E(t)]$. Par commodité, nous utiliserons le plus souvent le champ complexe. On notera (voir l'annexe A.1) ces champs :

$$E(t) = A(t)e^{-i\varphi(t)} \quad (1.5a)$$

$$\tilde{E}(\omega) = A(\omega)e^{i\phi(\omega)} \quad (1.5b)$$

avec $A(t)$ une enveloppe lentement variable et $\varphi(t) = \omega_0 t + \varphi_f(t)$ la phase temporelle où ω_0 est la pulsation centrale du champ et $\varphi_f(t)$ une phase supplémentaire due au façonnage. $A(\omega)$ est l'amplitude spectrale et $\phi(\omega)$ la phase spectrale.

On définit alors la complexité [Weiner 00] d'une impulsion par le rapport entre les caractéristiques les plus larges et les plus courtes de l'impulsion dans le domaine temporel ou spectral

$$\eta = \frac{\Delta t}{\delta t} = \frac{\Delta \omega}{\delta \omega} \quad (1.6)$$

avec Δt , δt , $\Delta \omega$ et $\delta \omega$ représentés sur la figure 1.6 La complexité permet d'estimer si l'im-

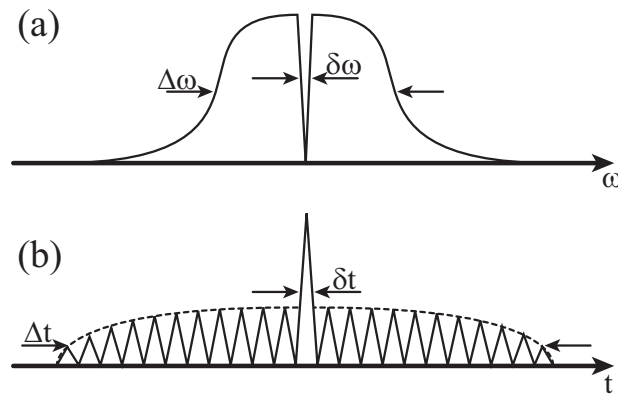


Figure 1.6 – La complexité est égale au rapport entre les caractéristiques les plus grandes ($\Delta \omega$ et Δt) et les plus courtes ($\delta \omega$ et δt) de l'impulsion dans le domaine spectral (a) ou temporel (b).

pulsion est « loin » de l'impulsion limitée par TF correspondante. En d'autres termes, il faut choisir son dispositif de façonnage et de caractérisation avec circonspection en fonction

b. Nous supposons que la polarisation est constante et linéaire. Ce qui n'est plus vrai pour les façonneurs en polarisation [Brixner 01].

de la valeur de la complexité recherchée [Monmayrant 10].

Il existe différentes façons de représenter une impulsion. Elles sont liées aux différents dispositifs de caractérisation. On peut alors tracer l'amplitude spectrale et la phase spectrale comme représenté dans la première colonne de la figure 1.7 pour une phase plate (a), une phase quadratique^c (b), cubique (c), un saut de phase de π (d) et une séquence de deux impulsions (e). Le champ peut aussi être représenté par son intensité temporelle^d, $|E(t)|^2$ deuxième colonne. Il existe de plus des représentations 3D, dites temps-fréquence, telle que la distribution de Wigner [Paye 92]. Elles représentent les couplages entre le temps et les fréquences. La fonction de Wigner se calcule à partir du champ électrique par :

$$W(t, \omega) = \int dt' E(t + t'/2)E(t - t'/2)e^{i\omega t'} = \frac{1}{2\pi} \int d\omega' \tilde{E}(\omega + \omega'/2)\tilde{E}(\omega - \omega'/2)e^{i\omega' t}. \quad (1.7)$$

C'est une quantité réelle qui est représentée sur la troisième colonne de la figure 1.7. Les couplages sont immédiatement identifiés, comme par exemple la variation linéaire avec le temps de la fréquence pour une phase quadratique (b), appelée l'homothétie temps-fréquence. De plus, l'intégration de cette fonction sur le temps (respectivement sur la fréquence) représente l'intensité temporelle (respectivement spectrale). Le spectrogramme est une deuxième représentation temps-fréquence. Il est défini par :

$$S(t, \omega) = \left| \int dt' E(t')g(t' - t)e^{i\omega t'} \right|^2. \quad (1.8)$$

C'est un produit de convolution entre le champ et une porte $g(t)$ qui va l'échantillonner. Différentes portes peuvent être utilisées et donnent alors différentes représentations. A titre d'exemple, la dernière colonne de la figure 1.7 représente le spectrogramme du champ $E(t)$ avec une porte qui est une impulsion limitée par TF de durée 10 fs et centrée à 800 nm. Les techniques de caractérisation dérivée de la technique FROG [Trebino 00] pour « Frequency Resolved Optical Gating » permettent l'obtention de différents spectrogrammes.

1.3.2 Façonneur à cristaux liquides

Nous allons décrire dans cette section le fonctionnement, les caractéristiques et les principales limitations de notre façonneur infrarouge haute résolution [Monmayrant 04]. Les explications seront volontairement succinctes et nous invitons le lecteur intéressé à lire la thèse d'Antoine Monmayrant [Monmayrant 05a] qui a développé ce façonneur ainsi que notre tutoriel. Cet outil a été utilisé dans la plupart des expériences présentées dans ce manuscrit, en particulier pour les expériences de contrôle et de refroidissement vibrationnel de molécules (voir section 4.4).

c. La phase spectrale est souvent décomposée en son développement de Taylor à la fréquence centrale, on obtient alors les ordres notés $\phi^{(0)}$, $\phi^{(1)}$, $\phi^{(2)}$...

d. Dans ce cas, toute l'information n'est pas présente mais permet une estimation de la durée de l'impulsion.

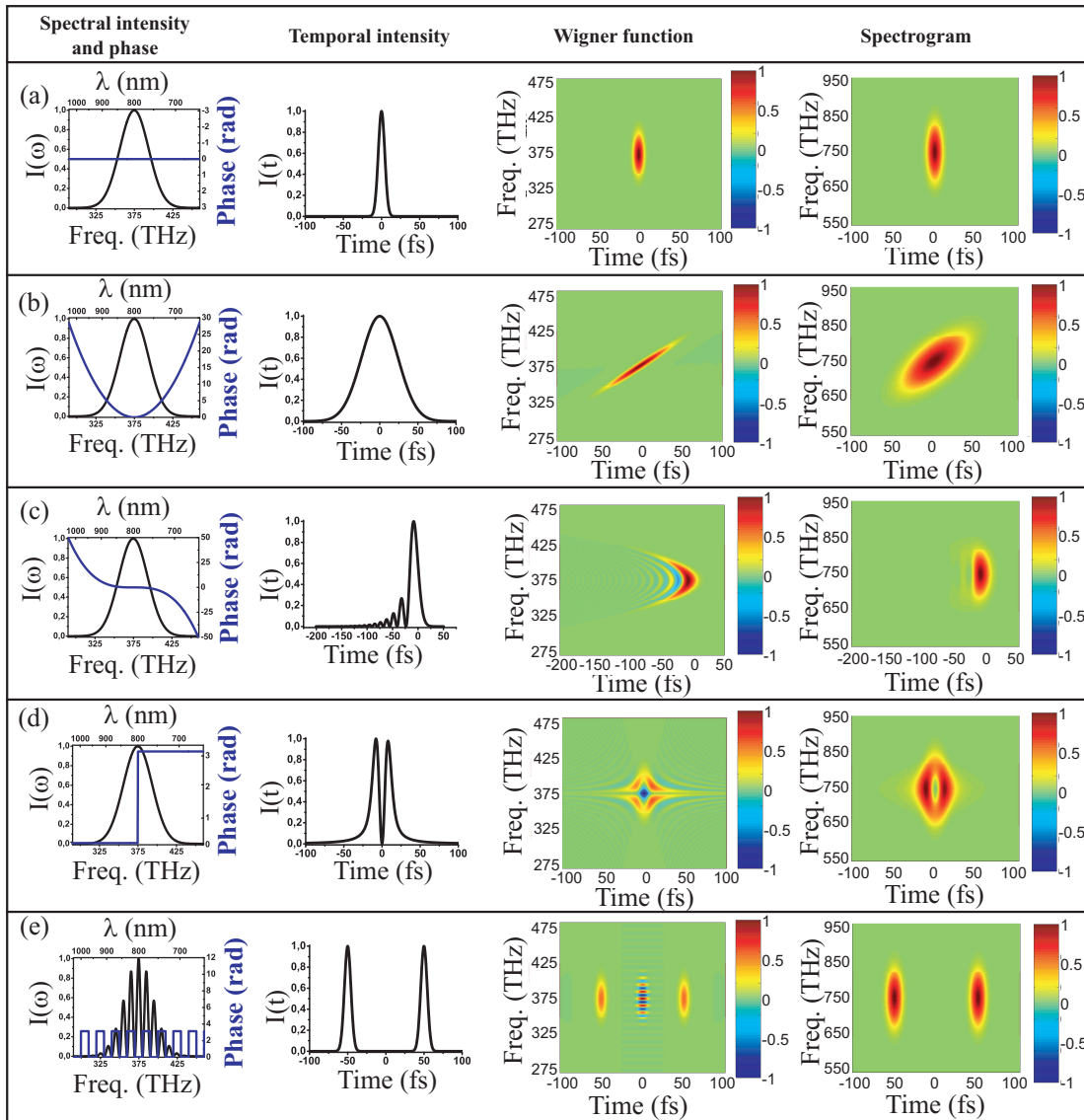


Figure 1.7 – Galerie d'impulsions femtosecondes mises en forme et leurs représentations. (a) impulsion limitée par TF, (b) phase quadratique, (c) phase cubique, (d) saut de phase de π et (e) une séquence de deux impulsions. La première colonne représente la phase et l'amplitude spectrale, la seconde, l'intensité temporelle, la troisième la fonction de Wigner et la dernière, le spectrogramme tracé avec une porte de 10 fs centrée à 800 nm.

Notre façonneur est constitué d'un système optique formant une ligne à dispersion nulle, dans laquelle sont insérés deux masques pixellisés à cristaux liquides. Nous allons décrire ces deux systèmes séparément.

1.3.2.1 Ligne 4f

La ligne à dispersion nulle ou ligne 4f a été premièrement introduite par Froehly et al. [Froehly 83]. C'est un système optique composé de deux réseaux et deux lentilles

(souvent remplacées par des miroirs cylindriques pour éviter la dispersion et les aberrations chromatiques) arrangés dans un dispositif 4f, avec f la distance focale des lentilles comme schématisé sur la figure 1.8. Chaque composante spectrale est dispersée spatialement par le premier réseau puis le faisceau est collimaté par la première lentille, ainsi, chaque composante spectrale est focalisée dans le plan de Fourier (PF). Elles y sont imagées spatialement. Une deuxième combinaison lentille/réseau permet la recombinaison des différentes fréquences en un faisceau collimaté.

Si rien n'est appliqué dans le plan de Fourier alors le dispositif est à dispersion nulle et l'impulsion à la sortie est identique à celle à l'entrée. En plaçant un masque dans le plan de Fourier, le chemin optique et la transmission peuvent être modifiés pour chaque composante spectrale, l'impulsion est mise en forme. Selon les masques, ce type de façonneur permet le contrôle de la phase [Weiner 00], de la phase et de l'amplitude [Weiner 88] ou de la polarisation [Brixner 01].

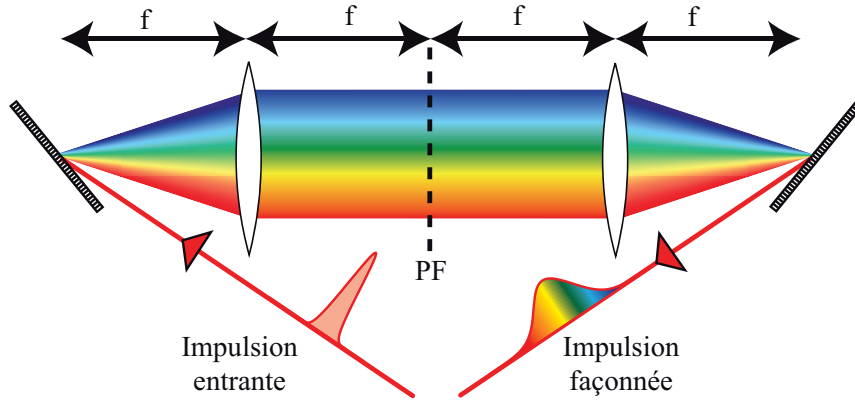


Figure 1.8 – Schéma d'une ligne 4f. f est la distance focale des lentilles et PF est le plan de Fourier.

Comme les composantes spectrales sont séparées spatialement et que le masque applique une phase différente sur ces composantes, il existe un couplage spatio-temporel entre elles. La fréquence ω et la position dans le plan de Fourier X sont liées par la dispersion $X = \alpha\omega$ (relation linéaire en première approximation) avec

$$\alpha = \frac{\lambda_0^2 f}{2\pi c d \cos \theta_d} \quad (1.9)$$

où λ_0 est la longueur d'onde centrale, c la vitesse de la lumière, d la distance entre les traits du réseau et θ_d l'angle de diffraction de la longueur d'onde λ_0 (θ_i étant l'angle d'incidence). La fonction de transfert du façonneur est alors donnée par le produit de convolution du masque $M(\omega)$ et du profil spatial des composantes spectrales au plan de Fourier $g(X)$:

$$H(\omega) = \int d\omega' M(\omega') g(\omega' - \omega). \quad (1.10)$$

L'extension spatiale d'une composante spectrale est donnée par

$$g(X) = e^{-2 \ln 2 \left(\frac{X}{\Delta x_0} \right)^2} \quad (1.11)$$

avec Δx_0 la largeur à mi-hauteur en intensité (FWHM) du faisceau dans le plan de Fourier, liée à la largeur à l'entrée Δx_{in} par

$$\Delta x_0 = 2 \ln 2 \frac{\cos \theta_i}{\cos \theta_d} \frac{f \lambda_0}{\pi \Delta x_{\text{in}}}. \quad (1.12)$$

Le principal effet du couplage spatio-temporel est l'existence d'une fenêtre temporelle de durée T liée à la résolution finie du dispositif au plan de Fourier. Elle est donnée par

$$T = 4 \ln 2 \frac{|\alpha|}{\Delta x_0} = \frac{\Delta x_{\text{in}} \lambda_0}{cd |\cos \theta_i|} \quad (1.13)$$

Dans le cas de notre façonneur, $f=600$ mm, $1/d=2000$ traits/mm, $\Delta x_{\text{in}} = 2$ mm, $\theta_i = 64^\circ$ et $\lambda_0 = 800$ nm, ce qui donne une fenêtre temporelle $T \simeq 24$ ps. L'effet de cette fenêtre est visible sur la figure 1.9, qui montre l'intensité temporelle d'une impulsion retardée par le façonneur. Le maximum de chaque impulsion décrit une enveloppe gaussienne de largeur 24 ps.

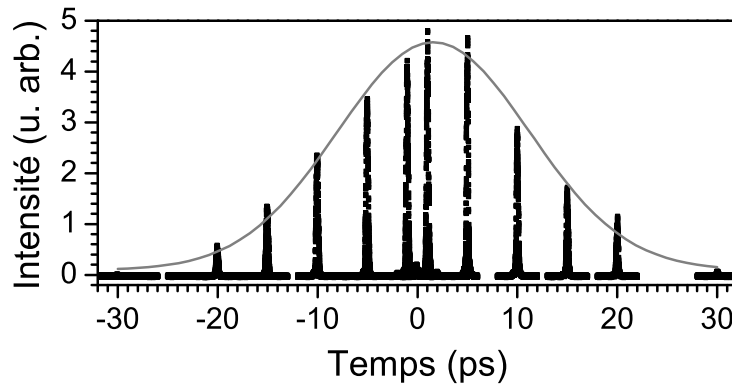


Figure 1.9 – Mesure par cross-corrélation de l'intensité temporelle d'impulsions retardées par notre façonneur.

1.3.2.2 Masque à cristaux liquides

Les masques utilisés dans les lignes 4f peuvent être de différentes natures : des réseaux de cristaux liquides [Wefers 93], un cristal acousto-optique [Hillegas 94], une matrice de micro-miroirs [Hacker 03] ou encore un miroir déformable [Zeek 99]. Nous utilisons deux masques à cristaux liquides mis l'un derrière l'autre dont nous allons décrire les propriétés et les limitations. Chaque pixel d'un masque est une lame d'onde programmable, contrôlée par une tension. Chaque couche de cristaux liquides est placée entre deux substrats en verre dont un est couvert d'une électrode transparente (ITO Indium Tin Oxide) qui permet un adressage indépendant des pixels. La direction des molécules du cristal au repos est fixée par le broissage en usine des électrodes. Quand un champ électrique est appliqué, elles tendent à s'aligner sur le champ, changeant alors la biréfringence du matériau.

Pour obtenir une mise en forme en phase et en amplitude, deux masques sont nécessaires ; leurs molécules au repos sont alignées à $+45^\circ$ et -45° par rapport à la polarisation du faisceau incident et ils sont placés entre deux polariseurs parallèles. Les pixels ont une largeur typique de $97 \mu\text{m}$ avec un espacement de $3 \mu\text{m}$ où la phase n'est pas contrôlée. La figure 1.10 représente en (a) un masque à cristaux liquides et en (b) la géométrie de notre ligne avec ici la particularité d'avoir un miroir derrière le plan de Fourier, ce qui donne une ligne repliée^e. Un léger angle vertical est alors nécessaire pour récupérer le faisceau à la sortie. Les défauts de ce type de désalignement ont été traités dans la thèse d'Antoine Monmayrant.

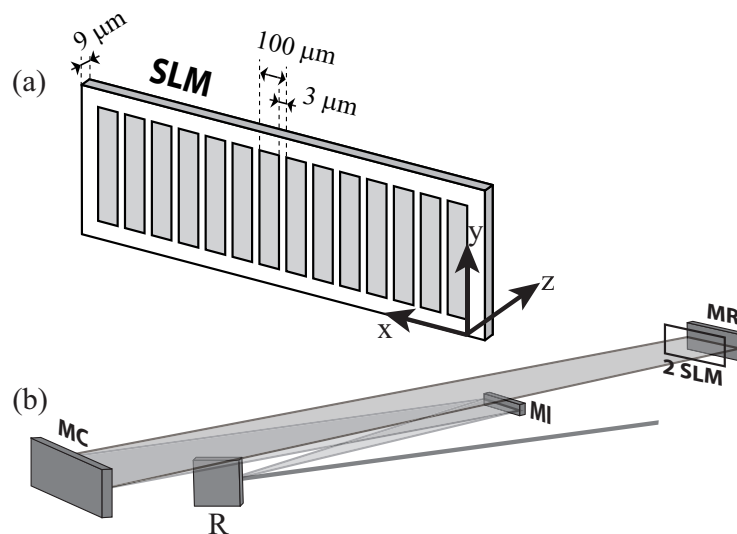


Figure 1.10 – (a) Vue schématique d'un masque à cristaux liquide SLM pour « Spatial Light Modulator ». (b) Ligne 4f repliée. R : réseau, MI : miroir intermédiaire, MC : miroir cylindrique et MR : miroir de repli.

1.3.2.3 Résultats

L'utilisation de ce façonneur pour la mise en forme d'impulsions nécessite au préalable plusieurs réglages. Le premier étant l'alignement des optiques puis la calibration de la phase des masques en fonction de la tension et enfin la calibration de la dispersion c'est à dire la relation entre la fréquence et le numéro de pixel.

La figure 1.11 représente différents types de mises en formes possibles une fois ces réglages effectués. En (a) trois paires d'impulsions avec des intensités relatives $1/2$, 1 , $1/3$ (de gauche à droite) ont été programmées (ligne grise théorique) et mesurée (points noirs). Ont aussi été obtenus : en (b) une impulsion carrée de 700 fs de durée et en (c) trois impulsions avec à gauche une phase cubique, au centre une impulsion limitée par TF et à droite une phase quadratique. Ces différentes impulsions ont été obtenues avec notre façonneur

^e. L'avantage de la ligne repliée réside dans l'absence de second réseau à aligner parfaitement par rapport au premier.

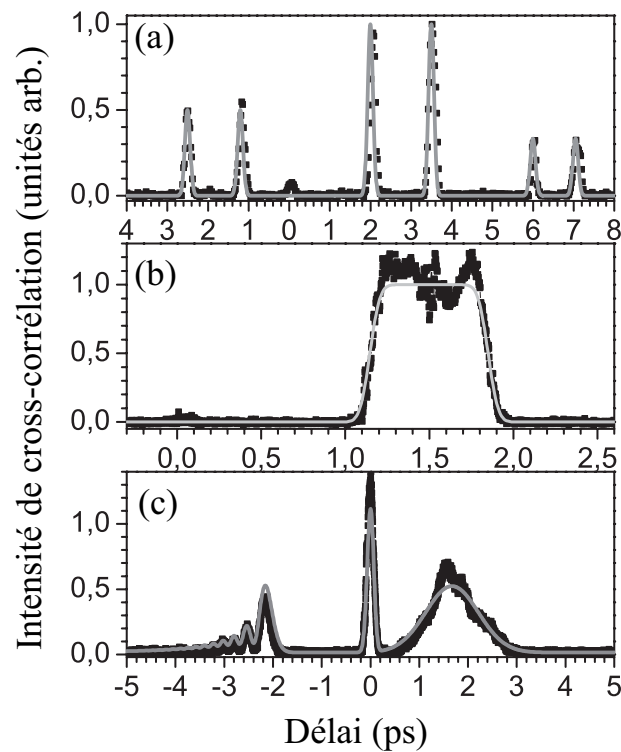


Figure 1.11 – Mises en forme d’impulsions femtosecondes. En (a) trois paires d’impulsions avec des intensités relatives 1/2, 1, 1/3 (de gauche à droite) sont représentées (ligne grise théorique et points noirs expérimentaux). En (b) une impulsion carrée de 700 fs de durée et en (c) trois impulsions avec à gauche une phase cubique, au centre une impulsion limitée par TF et à droite une phase quadratique.

comprenant deux masques de 640 pixels et une résolution de 0,06 nm/pxl.

Pour ce qui est des limitations, nous avons déjà parlé des interstices entre pixels où la phase n’est pas programmable. Ceci donne alors une réplique de l’impulsion d’entrée centrée à $t = 0$, d’amplitude réduite mais qui peut devenir comparable à celle d’une impulsion fortement mise en forme. L’autre limitation majeure est la pixellisation des masques. Par transformée de Fourier, elle donne une périodicité temporelle confirmée par l’existence de répliques de l’impulsion mise en forme, à des délais multiples de l’inverse de la largeur spectrale des espaces soit environ 35 ps pour notre façonneur [Monmayrant 10]. Heureusement l’enveloppe gaussienne du couplage spatio-temporel limite fortement l’amplitude de ces répliques. Ainsi toute mise en forme à l’intérieur de la fenêtre de 24 ps ne donnera pas de réplique parasite majeure.

1.4 Caractérisation

1.4.1 Autocorrélation

Une première technique de caractérisation, l'autocorrélation intensimétrique, est utilisée en routine, pour une mesure journalière. A l'aide d'un interféromètre de Michelson, l'impulsion à caractériser $E(t)$ est séparée en deux parties identiques, décalées temporellement d'un délai τ , comme schématisé sur la figure 1.12. Ces deux répliques sont superposées

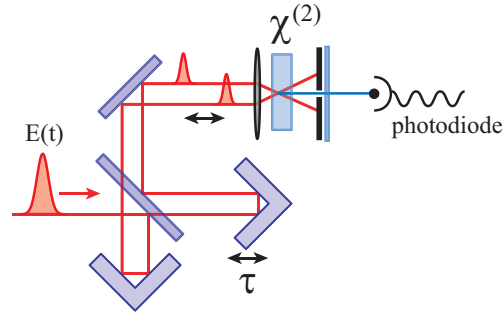


Figure 1.12 – Schéma de principe de l'autocorrélation intensimétrique.

dans un cristal fin de BBO type I, avec un léger angle. Dans cette configuration, l'intensité de la deuxième harmonique générée $I_2(t)$ s'écrit en fonction du délai τ :

$$I_2(t, \tau) \propto I(t)I(t - \tau) \quad (1.14)$$

où $I(t) = |E(t)|^2$ est l'intensité de l'impulsion à caractériser. Cette intensité $I_2(t, \tau)$ est détectée par une photodiode. Cette dernière ayant un temps de réponse très grand devant la durée de $I_2(t, \tau)$, elle donne un signal $S_{AC}(\tau)$ proportionnel à l'intégrale de cette intensité :

$$S_{AC}(\tau) \propto \int I_2(t, \tau) dt \propto \int I(t)I(t - \tau) dt \quad (1.15)$$

Ce signal n'est autre que la fonction d'autocorrélation de l'intensité $I(t)$. Il est clair que ce signal ne contient pas toute l'information sur $E(t)$: cette mesure n'est pas une mesure complète. En particulier, elle ne donne aucune information sur la phase temporelle et n'apporte qu'une information incomplète sur l'amplitude. Elle permet cependant d'avoir une estimation rapide de la durée d'une impulsion ayant un profil simple. En supposant que $E(t)$ a un profil gaussien, le lien entre la durée de $S_{AC}(\tau)$, notée $\Delta\tau_{AC}$ et la durée de $E(t)$, notée Δt est donnée par

$$\Delta\tau_{AC} = \Delta t\sqrt{2} \quad (1.16)$$

L'autocorrélateur dont nous disposons permet de mesurer les impulsions à 800 nm issues de l'amplificateur ou les impulsions visibles issues des NOPAs. Pour passer d'une longueur d'onde à une autre, on change de cristal. Bien que partielle, cette mesure est très utile, pour la compression des impulsions issues du NOPA ou pour le réglage hebdomadaire du compresseur de la chaîne laser.

1.4.2 Cross-corrélation

La cross-corrélation intensimétrique est une autre technique de mesure incomplète. Le principe est très similaire à celui de l'autocorrélation mis à part la superposition dans le cristal non-linéaire de deux impulsions différentes $E(t)$ et $E_{ref}(t)$, comme cela est schématisé sur la figure 1.13. En fonction du délai τ entre les deux impulsions, la photodiode

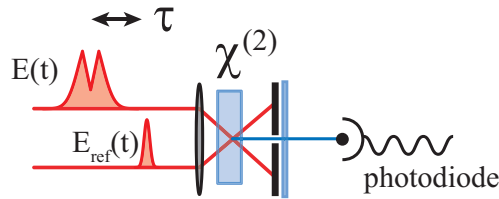


Figure 1.13 – Schéma de principe de la cross-corrélation intensimétrique.

fournit un signal $S_{XC}(\tau)$:

$$S_{XC}(\tau) \propto \int I_{ref}(t)I(t - \tau)dt \quad (1.17)$$

où $I(t) = |E(t)|^2$ et $I_{ref}(t) = |E_{ref}(t)|^2$. Les deux impulsions peuvent être dans des domaines spectraux différents. Si les deux impulsions ont un profil temporel gaussien de largeurs respectives Δt et Δt_{ref} , le signal de cross-corrélation sera aussi gaussien, de largeur $\Delta\tau_{XC}$:

$$\Delta\tau_{XC} = \sqrt{\Delta t^2 + \Delta t_{ref}^2} \quad (1.18)$$

En particulier, si l'impulsion de référence $E_{ref}(t)$ est très courte devant $E(t)$, la cross-corrélation donne une bonne estimation du profil d'intensité $I(t) = |E(t)|^2$.

Elle est ainsi tout à fait adaptée pour visualiser rapidement le profil temporel d'une impulsion mise en forme. Par exemple, la caractérisation partielle d'impulsions fortement mises en forme est visible sur la figure 1.11. Ainsi l'information telle que le nombre d'impulsions d'un train et leur espacement est obtenue facilement. De plus, la possibilité de mélange non-linéaire par différence de fréquence permet la caractérisation dans l'UV.

1.4.3 Cross-corrélation résolue spectralement : XFROG

Afin d'obtenir une caractérisation complète des impulsions femtosecondes, nous avons réalisé un dispositif de cross-corrélation résolue spectralement ou XFROG [Linden 99]. Ce dispositif est une variante du « Frequency Resolved Optical Gating » ou FROG [Trebino 00, Tsang 96]. L'idée est de remplacer la photodiode par un spectromètre afin d'obtenir la répartition spectrale de l'intensité pour chaque délai τ , le schéma de principe est donc identique à celui de la figure 1.13 en remplaçant la photodiode par un spectromètre. On obtient ainsi une carte en deux dimensions, le spectrogramme $S_{XF}(\tau, \omega)$. Celui-ci contient suffisamment d'informations pour pouvoir reconstruire $E_{ref}(t)$ et $E(t)$, en phase et en amplitude.

Cette reconstruction fait appel à une procédure itérative. La plus performante à l'heure actuelle repose sur la décomposition de cette trace en composants principaux [Kane 99] : « Principal Component Generalized Projects Algorithm » ou PCGPA. $S_{XF}(\tau, \omega)$ contient en fait beaucoup plus d'informations que le strict minimum. Cette redondance assure une certaine robustesse au bruit.

Cette méthode de caractérisation est relativement bien adaptée aux impulsions mises en forme. En effet, elle permet la caractérisation d'impulsions complexes, composées de plusieurs parties distinctes étalées dans le temps. La définition de la complexité permet de cerner la principale limitation du XFROG concernant les impulsions mises en forme : pour caractériser convenablement une impulsion de complexité η , il faut disposer d'une reconstruction sur un nombre de points de l'ordre de η . Dans le cas du XFROG, cela nécessite une trace $S_{XF}(\tau, \omega)$ contenant η^2 points de mesure [Trebino 00]. La quantité de données à traiter croît donc de façon quadratique avec la complexité des impulsions et on peut facilement atteindre des temps de calculs rédhibitoires pour des impulsions couramment utilisées durant cette thèse. Malgré ce défaut, cette technique apparaît comme une des plus adaptée pour la caractérisation des impulsions mises en forme car elle permet une visualisation directe du profil temporel de l'impulsion ainsi que son contenu spectral. Cette technique sera utilisée pour décrire les mises en forme dans l'UV par notre AOPDF (chapitre 2).

1.4.4 SPIDER

Le deuxième appareil de caractérisation complète dont nous disposons repose sur la technique SPIDER [Iaconis 98] : « Spectral Phase Interferometry for Direct Electric Field Reconstruction ». Cette technique reprend le principe de l'interférométrie spatiale à décalage [Françon 66], mais transposée au domaine spectral. A partir de l'impulsion à caractériser E , on génère deux copies E_{d1} et E_{d2} décalées temporellement de τ et spectralement de $\delta\omega$. Les franges d'interférences spectrales entre ces deux impulsions sont mesurées par un spectromètre. Un traitement adapté de ces franges permet de reconstruire la phase $\theta(\omega)$ définie par

$$\theta(\omega) = \phi(\omega + \delta\omega) - \phi(\omega) + \omega\tau \quad (1.19)$$

où $\phi(\omega)$ est la phase spectrale du champ inconnu $\tilde{E}(\omega)$. A partir de cette quantité, connaissant τ et pour $\delta\omega$ suffisamment petit, on peut reconstruire $\phi(\omega)$. L'amplitude spectrale $|\tilde{E}(\omega)|$ peut être déduite du même signal spectral ou mesurée indépendamment par un spectromètre. La connaissance de la phase $\phi(\omega)$ et de l'amplitude spectrale $\tilde{E}(\omega)$ assure une caractérisation complète du champ E .

La mise en œuvre pratique de cette technique se heurte au problème du décalage spectral. La réalisation de ce décalage est hors de portée des modulateurs temporels actuels. On doit donc utiliser un moyen détourné pour réaliser ce décalage. Pour cela, on utilise le dispositif présenté sur la figure 1.14. L'impulsion à caractériser $E(t)$ traverse une lame de microscope de 200 μm . Par réflexion sur chacune des faces de la lame, deux copies de $E(t)$

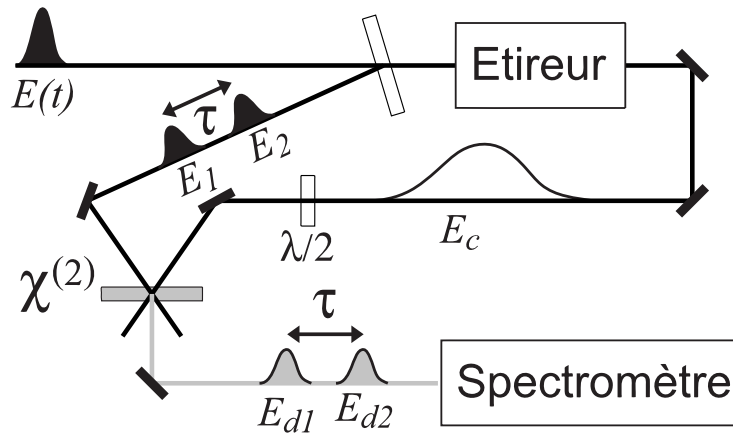


Figure 1.14 – Schéma de principe du SPIDER.

séparées de $\tau \simeq 1,5$ ps sont générées. Nous les notons $E_1(t)$ et $E_2(t)$. La partie transmise par la lame est envoyée dans un étireur à réseaux en double passage, qui introduit une forte phase quadratique $\phi^{(2)} = 8,5 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$. On obtient ainsi une impulsion à forte dérive de fréquence $E_c(t)$. Les deux copies de l'impulsion à caractériser $E_1(t)$ et $E_2(t)$ et l'impulsion à dérive de fréquence sont recombinées dans un cristal de KDP de type II de $200 \mu\text{m}$, dans une géométrie non colinéaire. Lors de son interaction dans le cristal avec $E_1(t)$ et $E_2(t)$, $E_c(t)$ se comporte comme une impulsion monochromatique. On appelle ω_1 sa pulsation au moment de son interaction avec E_1 . Par somme de fréquence l'interaction entre E_1 et E_c produit une impulsion notée E_{d1} qui est une copie de E_1 , mais décalée spectralement de ω_1 . A cause de la dérive de fréquence, la pulsation apparente de $E_c(t)$ n'est pas la même au moment de son interaction avec $E_2(t)$: elle vaut $\omega_1 + \delta\omega$. Comme précédemment, l'interaction entre E_2 et E_c produit une impulsion notée E_{d2} qui est une copie de E_2 , décalée spectralement de $\omega_1 + \delta\omega$.

On obtient bien deux copies de $E(t)$ (E_{d1} et E_{d2}) qui sont décalées temporellement et spectralement. Ces deux impulsions sont envoyées dans un spectromètre et l'analyse de l'interférogramme obtenu permet la reconstruction de la phase spectrale associée à $\tilde{E}(\omega)$. Une mesure indépendante du spectre $|\tilde{E}(\omega)|^2$ de l'impulsion inconnue permet la caractérisation complète.

Cette technique de mesure complète présente l'avantage d'être rapide car elle ne repose sur aucun algorithme itératif. Elle est toute indiquée pour l'optimisation en temps réel de la durée des impulsions issues de l'amplificateur à 800 nm, en particulier pour la correction de phase résiduelle par itération avec le Dazzler de la chaîne. Cependant, elle est très limitée pour la caractérisation d'impulsions fortement mises en forme. En effet, la validité de la reconstruction repose sur un choix judicieux des deux paramètres que sont le délai τ et la dérive de fréquence $\phi^{(2)}$. Pour des impulsions fortement étirées ou des séquences d'impulsions, il est parfois impossible de trouver des paramètres convenables tout en assurant une quantité de signal suffisante.

Il existe toutefois différentes variantes du SPIDER qui permettent d'obtenir un signal plus important ou de disposer de plus de marge de manœuvre dans le choix des paramètres.

Notre tutoriel sur le façonnage et le contrôle [[Monmayrant 10](#)] résume les différents types de Spider existants ainsi que leurs caractéristiques.

Chapitre 2

Façonnage dans l’Ultraviolet.

Ce chapitre présente les différents résultats obtenus durant ma thèse sur la mise en forme d’impulsions femtosecondes dans l’ultraviolet (UV). Bien que le façonnage programmable existe depuis presque 20 ans [Wefers 93], il était jusqu’à peu limité dans le proche infrarouge et le visible. Or de nombreux schémas d’excitation en spectroscopie et dynamique moléculaire nécessitent des impulsions UV, en particulier les molécules organiques qui ont leur spectre d’excitation à un photon dans l’UV. Le développement de nouvelles idées et technologies a récemment permis l’élaboration d’outils de mises en forme d’abord indirecte [Hacker 01a, Hacker 01b, Schriever 06, Nuernberger 07] puis directe dans l’UV [Hacker 03, Roth 05, Coudreau 06] permettant l’excitation et le contrôle de systèmes moléculaires complexes [Vogt 05, Kotur 09].

Nous décrivons tout d’abord l’état de l’art dans ce domaine puis nous nous focaliserons plus spécialement sur notre façonneur, un AOPDF « Acousto Optical Programmable Dispersive Filter » commercial développé par Fastlite et nommé DazzlerTM. Outre la description de son fonctionnement et de ses limitations nous montrerons ses capacités en termes de mise en forme et d’efficacité. Comme un façonneur ne peut pas fonctionner sans connaître exactement le profil des impulsions produites, il faut parallèlement à ces développements créer de nouvelles méthodes de caractérisation. Nous montrerons ainsi les différentes techniques que nous avons et prévoyons d’utiliser.

2.1 État de l’art

L’obtention d’impulsions façonnées dans l’UV se classe en deux grandes catégories :

- La première consiste à utiliser les façonneurs existants dans l’infrarouge (IR) ou le visible, et de transférer la phase spectrale et/ou l’amplitude spectrale dans le domaine UV par des techniques d’optique non-linéaire.
- La seconde est la mise en forme directe, dans l’UV, des impulsions produites par différents mélanges non-linéaire.

Nous allons présenter ces différentes techniques avec leurs avantages et leurs limitations.

2.1.1 Le transfert de phase et d'amplitude

La génération d'harmoniques est le moyen le plus facile pour obtenir des impulsions dans l'UV. Partant d'un fondamental à 800 nm, il est aisé d'obtenir une impulsion à 400 nm et avec un peu d'effort une impulsion à 266 nm. Les mélanges de fréquence avec des OPA permettent alors de couvrir l'intervalle entre ces valeurs. On peut alors naïvement espérer transférer aussi bien la phase que l'amplitude lors de ces différents mélanges non-linéaires. Plusieurs études [Sidick 95] ont montré que cette approche est beaucoup trop simpliste et souvent fautive si on ne prend pas de précautions. Nous allons d'abord calculer l'expression du champ spectral de seconde harmonique (SH) en fonction du champ fondamental. Les différentes expressions obtenues nous permettront de discuter la validité du transfert.

2.1.1.1 Génération de seconde harmonique

L'équation régissant la propagation et les mélanges non-linéaires dans un cristal transparent est donnée par [Sidick 95] :

$$\frac{d^2\mathcal{E}}{dz^2} - \mu_0\varepsilon_0\frac{d^2\mathcal{E}}{dt^2} - \mu_0\frac{d^2\mathcal{P}_L}{dt^2} = \mu_0\frac{d^2\mathcal{P}_{NL}}{dt^2} \quad (2.1)$$

où \mathcal{E} est le champ électrique réel, \mathcal{P}_L la polarisation linéaire et \mathcal{P}_{NL} la polarisation non-linéaire. Ces dernières s'expriment en fonction du champ électrique :

$$\mathcal{P}_L = \varepsilon_0\chi\mathcal{E} \quad (2.2a)$$

$$\mathcal{P}_{NL} = \varepsilon_0d_{\text{eff}}\mathcal{E}^2 \quad (2.2b)$$

où l'on ne tient compte que des effets non-linéaires d'ordre 2. Le caractère tensoriel est compris dans le coefficient non-linéaire effectif d_{eff} . χ est la susceptibilité électrique du cristal^a. On fait ainsi apparaître l'excitation électrique $\mathcal{D} = \varepsilon_0\mathcal{E} + \mathcal{P}_L = \varepsilon_0\varepsilon\mathcal{E}$ avec $\varepsilon = n^2$ la permittivité qui dépend de la fréquence. L'équation 2.1 devient :

$$\frac{d^2\mathcal{E}}{dz^2} - \mu_0\frac{d^2\mathcal{D}}{dt^2} = \mu_0\frac{d^2\mathcal{P}_{NL}}{dt^2}. \quad (2.3)$$

Le champ électrique s'exprime comme la somme du champ fondamental \mathcal{E}_1 et de la seconde harmonique \mathcal{E}_2 . Leur champ complexe associé s'écrit dans le domaine spectral :

$$\tilde{E}_m(\omega, z) = \tilde{A}_m(\omega, z)e^{ik_m(\omega)z} \quad (2.4)$$

avec $m = 1, 2$ et où l'on a mis à part la phase due à la propagation dans le cristal, \tilde{A} est « l'enveloppe » spectrale^b. Il est préférable de traiter le problème dans le domaine spectral où l'équation 2.1 se simplifie :

$$\frac{d^2\tilde{E}}{dz^2} + \omega^2\mu_0\varepsilon_0\varepsilon\tilde{E} + cc = -\omega^2\mu_0\varepsilon_0d_{\text{eff}}\tilde{E}^2 + cc \quad (2.5)$$

a. C'est un tenseur d'ordre 2 dans le cas général d'un solide anisotrope.

b. Cette enveloppe contient aussi la phase de l'impulsion à l'entrée du cristal.

Dans le cas d'une onde fondamentale non-déplétée, seul le champ E_2 varie et oscille à la fréquence $2\omega_0$, double de celle du fondamental. On ne prend alors en compte que l'auto-produit du champ E_1 dans le terme non-linéaire soit l'équation relative au champ E_2 :

$$\frac{d^2 \tilde{E}_2}{dz^2} + \omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon \tilde{E}_2 = -\omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 d_{\text{eff}} \tilde{E}_1^2. \quad (2.6)$$

En faisant apparaître « l'enveloppe » spectrale on a :

$$\frac{d^2 \tilde{A}_2}{dz^2} - 2ik_2 \frac{d\tilde{A}_2}{dz} - k_2^2 \tilde{A}_2 + \omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon \tilde{A}_2 = -\omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 d_{\text{eff}} e^{-ik_2(\omega)z} \tilde{E}_1^2. \quad (2.7)$$

L'approximation de l'enveloppe lentement variable^c permet de simplifier le premier terme et en notant que $\omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 \varepsilon = \frac{\omega^2 n_2^2}{c^2} = k_2^2(\omega)$ on obtient au final :

$$\boxed{\frac{d\tilde{A}_2}{dz} = -i \frac{\omega^2}{2c^2 k_2(\omega)} d_{\text{eff}} e^{-ik_2(\omega)z} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega' \tilde{A}_1(\omega - \omega') e^{ik_1(\omega - \omega')z} \tilde{A}_1(\omega') e^{ik_1(\omega')z}}. \quad (2.8)$$

Cette expression met en évidence l'auto-produit de convolution du champ 1 comme terme source du champ 2. On peut maintenant considérer que le vecteur d'onde $k_m(\omega_m)$ varie peu sur la largeur spectrale des impulsions. On peut donc en faire un développement de Taylor autour de la fréquence centrale ω_m ($\omega_1 = \omega_0$ et $\omega_2 = 2\omega_0$). L'ordre du développement permet de prendre en compte plus ou moins d'effets dus à la propagation. Nous allons nous limiter à l'ordre 1 qui fait apparaître le désaccord de vitesse de groupe^d

$$k_1(\omega - \omega') \simeq k_1 + \left. \frac{dk_1}{d\omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega' - \omega_0) \quad (2.9a)$$

$$k_1(\omega') \simeq k_1 + \left. \frac{dk_1}{d\omega} \right|_{\omega_0} (\omega' - \omega_0) \quad (2.9b)$$

$$k_2(\omega) \simeq k_2 + \left. \frac{dk_2}{d\omega} \right|_{2\omega_0} (\omega - 2\omega_0) \quad (2.9c)$$

où l'on fait apparaître la vitesse de groupe $\frac{1}{v_{gm}} = \left. \frac{dk_m}{d\omega} \right|_{\omega_m}$. L'équation 2.8 se simplifie alors et l'on peut sortir les termes dépendant de z du produit de convolution

$$\frac{d\tilde{A}_2}{dz} = -i \frac{\omega_0}{2cn_2} d_{\text{eff}} e^{-i\Delta k z} e^{-i\alpha z(\omega - 2\omega_0)} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega' \tilde{A}_1(\omega - \omega') \tilde{A}_1(\omega') \quad (2.10)$$

avec $\Delta k = k_2 - 2k_1$ le désaccord de phase et $\alpha = \frac{1}{v_{g2}} - \frac{1}{v_{g1}}$ le désaccord de vitesse de groupe portant l'acronyme GVM pour « Group Velocity Mismatch ». Cette équation s'intègre facilement, et l'on obtient l'expression de l'enveloppe spectrale après la propagation sur une épaisseur L de cristal :

$$\boxed{\tilde{A}_2(\omega) = \frac{i\omega d_{\text{eff}} L}{cn_2} \frac{1}{2} \text{sinc} \left[\frac{L}{2} (\Delta k + \alpha(\omega - 2\omega_0)) \right] e^{-i\frac{L}{2} (\Delta k + \alpha(\omega - 2\omega_0))} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega' \tilde{A}_1(\omega - \omega') \tilde{A}_1(\omega')}. \quad (2.11)$$

c. On considère que $\frac{d^2 \tilde{A}_2}{dz^2} \ll 2ik_2 \frac{d\tilde{A}_2}{dz}$

d. La prise en compte de l'ordre 2 ferait apparaître la dispersion de vitesse de groupe

Cette expression met en évidence la relation entre le champ électrique spectral du fondamental et celui de la seconde harmonique, mais aussi le rôle non-négligeable de l'accord de phase Δk , et du désaccord de vitesse de groupe, α . L'utilisation de cristaux anisotropes comme le BBO ou autre permet d'obtenir un bon accord de phase mais uniquement sur une bande donnée, de même l'effet du GVM peut vite devenir très important quand l'épaisseur du cristal augmente.

Le spectre harmonique est proportionnel au produit de convolution du fondamental multiplié par un filtre spectral. Il s'agit d'un sinus cardinal dont la largeur spectrale^e, $\Delta\omega_f$, est fixée par α et l'épaisseur du cristal L , et centrée à ω_f :

$$\omega_f = 2\omega_0 - \frac{\Delta k}{\alpha} \quad (2.12a)$$

$$\Delta\omega_f = \frac{2\pi}{\alpha L}. \quad (2.12b)$$

L'effet du filtre est schématisé sur la figure 2.1 avec à gauche la valeur absolue du sinus cardinal (en gris) et le champ fondamental convolué (en noir et supposé gaussien). L'effet du désaccord décale le filtre par rapport à la fréquence $2\omega_0$ d'une quantité $-\frac{\Delta k}{\alpha}$ et la largeur du filtre module l'amplitude du champ doublé (à droite).

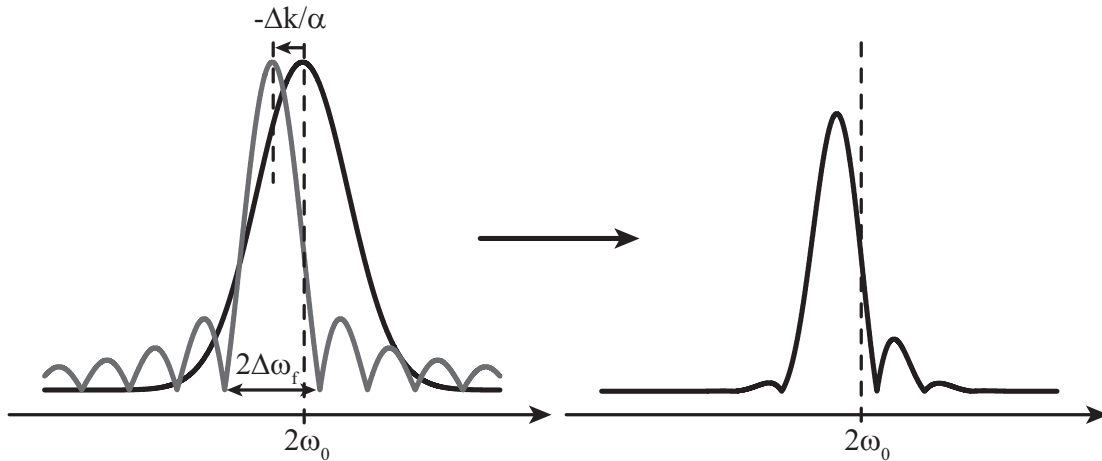


Figure 2.1 – Effet du désaccord des vitesses de groupe schématisé par le produit d'un filtre en sinus cardinal et du produit d'auto-convolution du champ fondamental supposé gaussien. Leur produit est obtenu à droite et est fortement modulé.

2.1.1.2 Application numérique

Dans le cas du BBO et de la génération de seconde harmonique : $800 \text{ nm} + 800 \text{ nm} \rightarrow 400 \text{ nm}$, les vitesses de groupes valent : $v_{g1} = c/1,684$ et $v_{g2} = c/1,742$ soit $\alpha = 0,029/c = 9,66 \cdot 10^{-5} \text{ fs/nm}$.

Le tableau 2.1 donne les largeurs spectrales FWHM à 400 nm en fonction de la durée limitée TF de l'impulsion à 800 nm. Elles sont comparées à la largeur du filtre en fonction de l'épaisseur L du cristal de BBO.

e. Définie comme la demi-largeur du pic central du sinus cardinal (voir figure 2.1).

@800 nm		@400 nm	Cristal	Filtre
Δt_0 (fs)	$\Delta\lambda$ (nm)	$\Delta\lambda$ (nm)	L (microns)	$\Delta\lambda$ (nm)
100	9,4	3,3	10	551
50	18,8	6,6	50	110,4
30	31,4	11,0	100	55,2
10	94,1	33,3	200	27,6
5	188,2	66,5	500	11,0

Table 2.1 – Tableau comparatif des largeurs spectrales maximales à 400 nm (colonne 3) en fonction de la durée limitée TF et de la largeur spectrale d’impulsion à 800 nm (colonne 1 et 2). Les largeurs spectrales du filtre en sinus cardinal en fonction de l’épaisseur L d’un cristal non-linéaire de BBO sont représentées à droite.

Il est maintenant clair que pour pouvoir transférer la phase par une génération de seconde harmonique, il faut d’abord s’assurer que le mélange non-linéaire génère suffisamment de bande spectrale. Cela peut être fait en utilisant des impulsions et des cristaux qui vérifient $L \ll \frac{\pi\Delta t_0}{\alpha}$ et $\frac{\Delta k}{\alpha} \ll \omega_0$ [Hacker 01b] mais implique une faible efficacité ou en utilisant des techniques plus subtiles. Par exemple, Szabo et al. [Szabó 90] ont introduit la technique d’accord de phase achromatique. Les composantes spectrales de l’impulsion sont dispersées angulairement, l’accord de phase est alors différent selon la fréquence ce qui génère des impulsions UV très courtes. Ce type de SHG a été utilisée pour le transfert de la phase [Baum 04].

2.1.1.3 Transfert de phase et d’amplitude

En se plaçant dans les conditions précisées dans le paragraphe précédent, on peut maintenant étudier le transfert de la phase et de l’amplitude du fondamental $E(t)$ vers la seconde harmonique $E_{\text{SHG}}(t)$. On considère donc que :

$$\tilde{E}_{\text{SHG}}(\omega) \propto \tilde{E} \otimes \tilde{E} = \int d\omega' \tilde{E}(\omega') \tilde{E}(\omega - \omega'). \quad (2.13)$$

soit dans le domaine temporel

$$E_{\text{SHG}}(t) \propto E^2(t) \quad (2.14)$$

De cette façon, une phase et une amplitude sont transférées mais de manière non-triviale, en particulier la phase spectrale et l’amplitude peuvent être très différentes de celles du fondamental. Différentes expériences en boucle fermée ont utilisé cette propriété pour le contrôle de réaction photo-chimique [Bergt 99, Vogt 05], la phase n’est pas définie a priori mais retrouvée a posteriori après le résultat d’optimisation des réactions. D’autres études ont mis en évidence :

- le transfert d’une phase quadratique et cubique pour optimiser la génération d’impulsions UV [Baum 04],
- l’accordabilité d’une source UV façonnée à partir de la SHG d’un OPA,

- la génération de troisième harmonique pour aller vers l'UV façonné plus lointain [Shimizu 05],
- le transfert d'une phase sinusoïdale de manière théorique et expérimentale [Hacker 01b].

Jusqu'à présent nous nous sommes restreint à la génération de seconde harmonique, cependant l'utilisation de la somme de fréquence (SFG) entre une impulsion de référence $E_r(t)$ et une impulsion mise en forme $E(t)$ permet un contrôle plus simple du transfert de phase.

$$\tilde{E}_{\text{SFG}}(\omega) \propto \tilde{E}_r \otimes \tilde{E} = \int d\omega' \tilde{E}_r(\omega') \tilde{E}(\omega - \omega'). \quad (2.15)$$

En particulier, si l'impulsion de référence est une impulsion monochromatique, on peut l'exprimer par un Dirac : $\tilde{E}_r(\omega) = \tilde{E}_{0r} \delta(\omega - \omega_{0r})$ et l'équation 2.15 se simplifie :

$$\tilde{E}_{\text{SHG}}(\omega) \propto \tilde{E}_{0r} \int d\omega' \delta(\omega' - \omega_{0r}) \tilde{E}(\omega - \omega') \propto \tilde{E}(\omega - \omega_{0r}) \quad (2.16)$$

Le champ somme est une réplique du champ façonné décalé de la fréquence ω_{0r} . Pour obtenir cet effet, on peut utiliser un laser nanoseconde synchronisé avec les impulsions femtosecondes [Nabekawa 03] ou utiliser une impulsion de référence très chirpée [Schriever 06, Nuernberger 07]. Ce dernier procédé est identique à celui utilisé dans le SPIDER (section 1.4.4) pour créer le décalage spectral. Nous allons montrer comment le transfert de la phase et de l'amplitude peut être fait avec ce schéma.

On considère donc une impulsion de référence qui s'exprime dans le domaine spectral et temporel par :

$$\tilde{E}_r(\omega) = \tilde{E}_{0r} \exp\left\{-\frac{(\omega - \omega_{0r})^2}{4\Delta\omega^2} + i\frac{\phi^{(2)}}{2}(\omega - \omega_{0r})^2\right\} \quad (2.17a)$$

$$E_r(t) = E_{0r} \exp\left\{-\frac{t^2}{4\Delta t_r^2} - i[\omega_{0r}t + \alpha t^2]\right\} \quad (2.17b)$$

avec Δt_r la durée de l'impulsion à dérive de fréquence (temps chirpé) et α le paramètre de chirp défini en annexe. L'impulsion façonnée est donnée par

$$E(t) = E_0 f(t) \exp\{-i[\omega_0 t + \varphi(t)]\}. \quad (2.18)$$

avec $f(t)$ l'enveloppe du champ façonné de durée Δt . Le champ somme de fréquence s'écrit alors :

$$E_{\text{SHG}}(t) \propto E_0 E_{0r} f(t) e^{-\frac{t^2}{4\Delta t_r^2}} e^{-i(\omega_{0r} + \omega_0)t} \exp\{-i\varphi(t) - i\alpha t^2\}. \quad (2.19)$$

Dans le cas d'un chirp grand devant la durée limitée TF, $\phi^{(2)} \gg \Delta t_{0r}^2$, on a $\alpha \simeq \frac{1}{2\phi^{(2)}}$ et $\Delta t_r \simeq \frac{\phi^{(2)}}{2\Delta t_{0r}}$ soit

$$E_{\text{SHG}}(t) \propto E_0 E_{0r} f(t) e^{-\frac{\Delta t_{0r}^2 t^2}{\phi^{(2)^2}} e^{-i\omega_{\text{SFG}} t} \exp\left\{-i\varphi(t) - i\frac{1}{2\phi^{(2)}} t^2\right\}, \quad (2.20)$$

avec $\omega_{\text{SFG}} = \omega_{0r} + \omega_0$. Si de plus $\phi^{(2)} \gg \Delta t^2$ alors l'enveloppe de l'impulsion chirpée est quasiment constante pendant cette durée et finalement

$$E_{\text{SHG}}(t) \propto E_0 E_{0r} f(t) e^{-i\omega_{\text{SFG}}t} \exp\{-i\varphi(t)\}. \quad (2.21)$$

Ainsi le champ SFG oscille à la fréquence somme avec une enveloppe $f(t)$ et une phase supplémentaire $\varphi(t)$.

Ce type de schéma a permis le transfert de la phase et de l'amplitude d'impulsions façonnées et accordable d'un NOPA à l'UV dans l'intervalle [295-370] nm [Schriever 06]. De même, des impulsions façonnées à 266 nm ont été obtenues [Nuernberger 07]. On peut aussi citer l'article de Wang et al. [Wang 04] qui, transfère la phase et l'amplitude d'une onde polarisée selon l'axe ordinaire à l'UV par génération de seconde harmonique de type II. Pour cela, ils utilisent une onde extraordinaire plus courte temporellement que l'onde ordinaire. Le résultat est la création d'une fenêtre temporelle de façonnage et la production d'une impulsion qui est l'homothétie du champ ordinaire.

A noter pour finir que l'utilisation de ce type de façonnage dans l'UV est difficile à utiliser dans une expérience en boucle fermée car l'efficacité de génération dépend du profil temporel des impulsions. Il est donc difficile de travailler à énergie d'impulsion UV constante, nécessaire à une bonne optimisation de la rétroaction.

2.1.2 La mise en forme directe

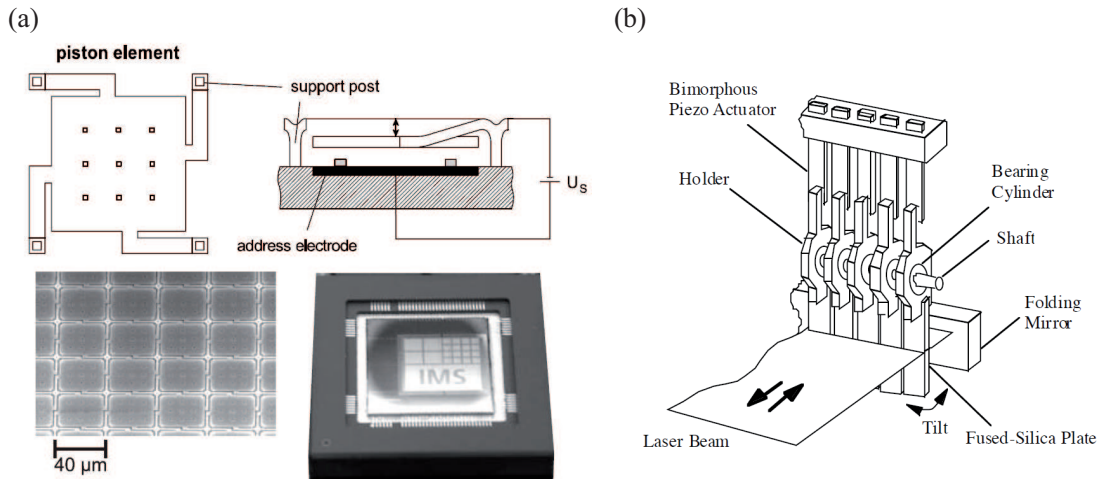


Figure 2.2 – Figures extraites des références [Hacker 03](a) et [Suda 01](b). (a) Vue schématique d'un piston de MEMS (en haut), photographie au microscope électronique de la matrice (en bas à gauche) et une photo du masque complet en bas à droite. (b) Vue schématique d'un masque composé de fines plaques de silice pouvant être inclinées par un piezo-électrique.

La mise en forme directe dans l'UV a vu le jour dès que des matériaux performants dans l'UV ont été trouvés afin de transférer des techniques déjà existantes. La ligne 4f,

très utilisée dans le proche infrarouge, est facilement transférable dans l'UV, moyennant une moindre efficacité, en utilisant des miroirs et des réseaux avec un revêtement en aluminium. Cependant, les masques utilisés dans ces lignes, cristaux liquides ou acousto-optique en TeO_2 , absorbent fortement le rayonnement UV. Le seul masque (utilisé pour l'infrarouge) utilisable dans l'UV est un miroir déformable [Zeek 99] mais qui ne permet pas une mise en forme importante.

Le développement des MEMS « Micro Electro Mechanical System » comme masque a permis d'élaborer un façonneur pour la gamme spectrale [200-900] nm [Hacker 03, Rondi 09, Möhring 09]. Il s'agit d'une matrice de micro-miroirs sur pistons adressables indépendamment (voir figure 2.2(a)). Un des miroirs est activé et déplacé en appliquant une tension à l'électrode correspondante. Ce masque ne permet qu'un façonnage en phase mais la compression ainsi qu'une mise en forme plus complexe ont été démontrées. Les principaux points négatifs sont l'apparition de fortes répliques dues à la pixellisation^f, une faible efficacité et un faible taux de rafraîchissement.

Parallèlement à ce développement, des optiques en silice fondue, transparente dans l'UV, ont été utilisées comme masques dans une ligne 4f. La première idée [Suda 01] consiste à utiliser une rangée de fines plaques de silice pouvant être inclinée indépendamment les unes des autres (voir figure 2.2(b)). La phase relative des différentes composantes est alors augmentée ou diminuée selon la longueur du chemin optique. Dans cette configuration, la phase peut être mise en forme de manière pixellisée avec 48 plaques indépendantes^g, cependant les degrés de liberté sont ici bien moindre que pour d'autres types de masque (640 pixels pour un masque à cristaux liquides [Monmayrant 04]).

La deuxième idée, et la plus utilisée actuellement, vient des propriétés acousto-optiques de la silice. En effet, il est possible de l'utiliser comme filtre acousto-optique dans la même configuration que les façonneurs basés sur le TeO_2 [Dugan 97]. Il a alors été démontré un façonnage direct, d'abord à 400 nm [Roth 05] puis à 266 nm [Pearson 07]. La figure 2.3, représente le dispositif expérimental utilisé dans la référence [Roth 05] (à gauche) ainsi qu'un résultat de mise en forme à 400 nm (à droite). Il s'agit en (a) d'une trace SD-FROG^h d'un train de trois impulsions et en (b) de l'intensité temporelle reconstruite (trait plein) et de l'autocorrélation (pointillés).

Tous ces masques sont utilisés en étant mis dans le plan focal d'une ligne 4f. D'un autre côté, le façonneur utilisé dans nos expériences, l'AOPDF Dazzler UV, propose une mise en forme basée sur le transfert de phase entre une onde acoustique et une onde optique. Nous allons maintenant l'étudier plus en détail.

f. La pixellisation et la distance entre pixels sont beaucoup plus importantes que pour les masques à cristaux liquides.

g. L'utilisation démontrée de ce masque a été faite dans l'infra-rouge, cependant la technique est facilement transposable puisque seul les masques sont limitants dans l'UV.

h. On se référera à la référence [Trebino 00] pour les caractérisations de type FROG « Frequency Resolved Optical Gating ».

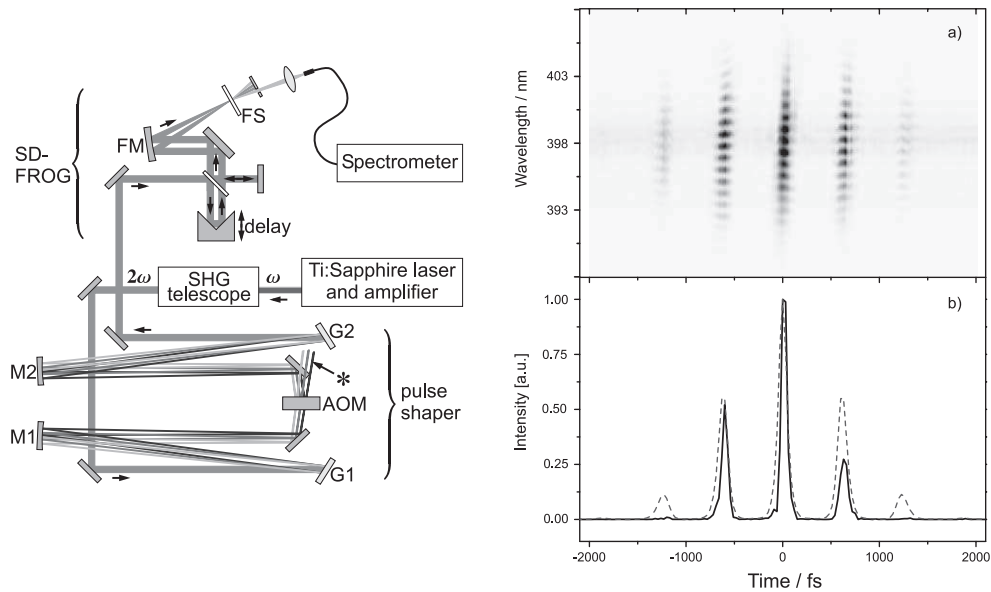


Figure 2.3 – Figure extraite de la référence [Roth 05]. Dispositif expérimental (à gauche) pour la mise en forme d’impulsions UV par un façonneur de type ligne 4f et masque acousto-optique (AOM) en silice fondue. Traces expérimentales d’un train de trois impulsions, en (a) une trace SD-FROG et en (b) une autocorrélation (pointillés) et la reconstruction du signal FROG (trait plein).

2.2 Filtre acousto-optique dispersif programmable dans l’UV AOPDF

L’AOPDF est un système qui est apparu dans les années 1990 suite aux travaux de Pierre Tournois [Tournois 97a]. Son fonctionnement est basé sur l’interaction acousto-optique entre une onde optique mise en forme et une impulsion femtoseconde. Son utilisation a été proposée à la base, pour compenser la phase résiduelle et la saturation par le gain dans les chaînes laser de type CPA [Seres 03].

L’interaction que nous décrivons plus en détail par la suite, est similaire à la réflexion sur un miroir à dérive de fréquence (chirpé). Dans ce dernier, le réseau longitudinal est permanent, fixé par les tranches de diélectriques alors que dans l’AOPDF, l’onde acoustique crée un réseau transitoire. Les premiers AOPDF en TeO_2 étaient et sont toujours principalement destinés aux chaînes CPA, mais sont aussi utilisés dans de nombreuses expériences. On peut citer, entre autres, son utilisation pour des lasers fibrés [Raybaut 05, Papadopoulos 08], pour des expériences de contrôle cohérent [Yamada 05, Ogilvie 06] ou pour l’optimisation de sources harmoniques [Boyko 07].

De plus, le développement de cet outil à d’autres gammes de longueur d’onde en fait aujourd’hui un façonneur à part entière. En effet, ces AOPDF façonnent maintenant le proche infrarouge [Verluisse 00a], le visible [Monmayrant 05b], l’UV [Coudreau 06, Weber 10a] voire le moyen IR [Tournois 08] dans le futur.

Nous expliquerons d’abord le fonctionnement de l’AOPDF « avec les mains », puis

nous décrirons la géométrie de l'interaction plus en détails ainsi que ses caractéristiques principales. Nous montrerons enfin les résultats de mises en forme obtenues dans notre groupe en utilisant différentes sources d'impulsions UV.

2.2.1 Mise en forme

La mise en forme fonctionne par le contrôle du temps de groupe $\tau(\omega)$ ^a de l'impulsion à mettre en forme. Pour cela un cristal anisotrope est nécessaire : les composantes spectrales du champ incident sont plus ou moins retardées selon que leur propagation a lieu sur l'axe ordinaire ou extraordinaire du cristal. Leur changement de polarisation est dû au mécanisme d'interaction anisotrope acousto-optique [Dixon 67] qui est différente de l'interaction isotrope classique des modulateurs acousto-optiques.

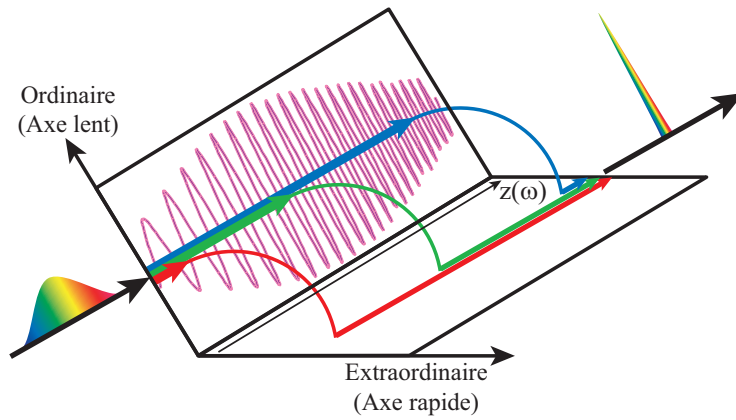


Figure 2.4 – Principe de l'AOPDF : par diffraction de l'onde incidente sur un réseau acoustique par l'interaction acousto-optique, les différentes composantes spectrales peuvent être basculées sur l'axe rapide à différentes positions dans le cristal. Elles sont alors plus ou moins retardées permettant la mise en forme d'impulsion en phase, comme la compression d'impulsions chirpées. L'efficacité de l'interaction permet aussi un façonnage en amplitude.

La figure 2.4 schématise son principe de fonctionnement. L'impulsion incidente se propage polarisée le long de l'axe lent. Les différentes composantes spectrales sont alors diffractées sur l'axe rapide quand les vecteurs d'ondes et les fréquences vérifient la condition d'accord de phase et la conservation de l'énergie :

$$\mathbf{k}_d(\omega_d) = \mathbf{K}(\Omega) + \mathbf{k}_i(\omega_i) \quad (2.22a)$$

$$\omega_d = \omega_i \pm \Omega \simeq \omega_i \quad (2.22b)$$

avec l'indice « d » pour le faisceau diffracté, « i » pour le faisceau incident et \mathbf{K} et Ω représentent respectivement le vecteur d'onde et la fréquence de l'onde acoustique $S_{ac}(t)$. De cette façon, les composantes spectrales peuvent être « basculées » sur l'axe rapide à différentes positions dans le cristal. La fréquence est légèrement décalée de $\pm\Omega$, négligeable devant les fréquences optiques. Comme la vitesse de groupe sur l'axe ordinaire, v_{go} , est différente de celle sur l'axe extraordinaire, v_{ge} , on obtient un temps d'arrivée à la fin du cristal

a. Le temps de groupe est défini par $\tau(\omega) = \frac{d\phi(\omega)}{d\omega}$, avec $\phi(\omega)$ la phase spectrale.

différent pour chaque fréquence. On note $z(\omega)$ la position de la diffraction correspondant à l'accord de phase de la fréquence ω . En supposant que l'interaction est localisée à cette position, le temps de groupe à l'arrivée vaut :

$$\tau(\omega) = \frac{z(\omega)}{v_{go}} + \frac{L - z(\omega)}{v_{ge}} \quad (2.23)$$

avec L l'épaisseur du cristal.

L'expression de $\tau(\omega)$ donne le résultat du façonnage par l'AOPDF. Ainsi pour une mise en forme en phase donnée, l'équation 2.23 permet de calculer $z(\omega)$ puis $K(\omega)$ [Verluise 00b]. Il est alors « facile » de générer l'onde acoustique correspondante. La mise en forme en amplitude est assurée par une modulation de l'amplitude de l'onde acoustique aux différentes positions $z(\omega)$.

Une expression simple permet de lier l'onde acoustique à l'onde optique [Tournois 97a] :

$$\tilde{E}_d(\omega) \propto \tilde{E}_i(\omega) \cdot \tilde{S}_{ac}(\gamma\omega) \quad (2.24a)$$

$$E_d(t) \propto E_i(t) \otimes S_{ac}(t/\gamma) \quad (2.24b)$$

avec $\gamma = \frac{\Omega}{\omega} \simeq \frac{|\Delta n|v_{ac}}{c}$ le facteur d'échelle entre les fréquences optiques et acoustiques. v_{ac} est la vitesse de l'onde acoustique et Δn la différence d'indice entre les axes ordinaire et extraordinaire. Dans le KDP, cristal utilisé dans l'UV, on a $\gamma \simeq 1,3 \cdot 10^{-7}$. Ces équations permettent le transfert direct de la phase et de l'amplitude spectrale de l'onde acoustique à l'onde optique. Dans le domaine temporel, l'impulsion mise en forme est le résultat du filtrage de l'impulsion incidente par l'onde acoustique. D'un point de vue pratique, la différence de polarisation et les angles de propagation différents permettent une bonne séparation des deux ondes optiques.

2.2.2 Nature de l'interaction

Nous allons, dans cette section, donner des éléments de compréhension sur l'effet acousto-optique tel qu'il se passe dans un AOPDF. Cette description, volontairement succincte, peut être étayée par la lecture de ces références [Yariv 84, Royer 99]. Nous décrirons d'abord la relation entre la déformation d'un milieu par une onde acoustique et la variation de son indice par l'effet photo-élastique. Puis la conservation des moments et de l'énergie dans un cristal anisotrope nous donnera les conditions de diffraction de Bragg. Enfin, l'incidence de l'effet photo-élastique sur les différents modes (incident et diffracté) se propageant dans le cristal sera décrite à travers un exemple.

2.2.2.1 L'effet photo-élastique

Une onde acoustique se propageant dans un milieu y crée une déformation qui dépend de la nature de l'onde et de sa propagation. Par exemple une onde de cisaillement, polarisée perpendiculairement (disons selon \mathbf{u}_y) à sa propagation (selon \mathbf{u}_z), crée une déformation de type yz alors qu'une onde longitudinale se propageant et étant polarisée selon \mathbf{u}_z , crée

une déformation uniquement selon z . Ces déformations sont décrites par un tenseur de déformation noté S_{ij} , avec (i, j) les coordonnées x, y ou z du système principal ^b [Royer 96]. Il induit une variation des indices du milieu selon la relation :

$$\Delta\eta_{ij} = \Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_{ij} = p_{ijkl} S_{kl} \quad (2.25)$$

où η est le tenseur d'imperméabilité, inverse du tenseur de permittivité ε , et p est un tenseur symétrique d'ordre 4 dit « photo-élastique ». La sommation sur les indices k et l est implicite selon la convention d'Einstein. La symétrie de ces tenseurs permet d'utiliser une notation contractée réduisant le nombre de coefficient de p de 81 à 36 et ceux de S de 9 à 6 avec la correspondance $l = (ij)$:

$$1 = (11) \qquad 2 = (22) \qquad 3 = (33) \quad (2.26)$$

$$4 = (23) = (32) \qquad 5 = (13) = (31) \qquad 6 = (12) = (21). \quad (2.27)$$

L'équation précédente s'écrit alors

$$\Delta\eta_i = \Delta \left(\frac{1}{n^2} \right)_i = p_{ij} S_j \quad (2.28)$$

Une autre simplification peut être effectuée par les symétries des cristaux utilisés, par exemple le tenseur photo-élastique du KDP, de structure tétragonale, se réduit à :

$$p_{\text{KDP}} = \begin{pmatrix} p_{11} & p_{12} & p_{13} & 0 & 0 & 0 \\ p_{21} & p_{22} & p_{23} & 0 & 0 & 0 \\ p_{31} & p_{32} & p_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & p_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & p_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & p_{66} \end{pmatrix} \quad (2.29)$$

A noter que l'effet photo-élastique change les proportions et les directions de l'ellipsoïde des indices selon l'amplitude de la variation de l'imperméabilité.

2.2.2.2 Diffraction de Bragg

La dualité onde-particule permet de considérer les ondes optiques et acoustiques comme des particules (des photons et des phonons) qui échangent de l'énergie $\hbar\omega$ et du moment $\hbar\vec{k}$ par la création d'un phonon ou de son annihilation. Les lois de conservation impliquent alors une variation d'énergie nulle et la condition d'accord de phase 2.22.

Cristal isotrope

Dans le cas d'un cristal isotrope, l'indice est constant quelque soit la direction de propagation des ondes. De plus la différence de fréquence entre l'optique et l'acoustique

b. Ce système de coordonnées est tel que la permittivité et l'imperméabilité sont diagonales au « repos ». Les axes correspondent alors aux axes cristallographiques $(x,y,z) = ([100],[010],[001])$.

implique $\omega_i \simeq \omega_d$ soit $|\mathbf{k}_i| \simeq |\mathbf{k}_d| = k$. Cette relation implique la condition de Bragg schématisée sur la figure 2.5(a) sur l'angle d'incidence :

$$\sin \theta_{\text{Bragg}} = \sin \theta_i = \sin \theta_d = \frac{K}{2k} \quad (2.30)$$

C'est cette configuration qui est utilisée dans les modulateurs acousto-optiques pour ligne 4f.

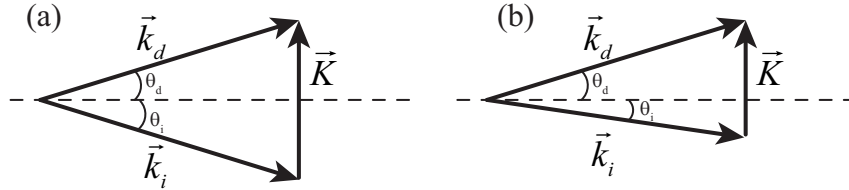


Figure 2.5 – Conservation des moments et géométrie de l'interaction impliquant la condition de Bragg : (a) pour un cristal isotrope, équation 2.30 et (b) pour un cristal anisotrope, équation 2.31.

Cristal anisotrope

Dans un cristal anisotrope, l'indice vu par une onde dépend de sa direction de propagation et de sa polarisation. Dans le cas général, la norme des vecteurs d'onde peut alors être très différente. La figure 2.5(b) représente la géométrie de l'interaction qui permet d'obtenir le nouvel angle de Bragg :

$$\sin \theta_{\text{Bragg}} = \sin \theta_i = \frac{K}{2k_i} \left(1 - \frac{k_d^2 - k_i^2}{2k_i K} \right) \quad (2.31)$$

Cet angle présente donc une dérive par rapport au cas classique.

Une solution pour obtenir l'accord de phase consiste, par analogie avec l'optique non-linéaire, à considérer une onde incidente polarisée ordinairement (respectivement extraordinairement) et une onde diffractée polarisée extraordinairement (respectivement ordinairement).

La figure 2.5 représente un exemple d'un tel accord de phase dans le KDP, cristal uniaxe (selon z) négatif ($n_e < n_o$) avec des ondes se propageant dans le plan (Oxz) formé par les axes $[100]$ et $[001]$. La section de la surface des indices avec ce plan est représentée avec les indices ordinaires n_o et extraordinaires n_e . L'intersection de la surface des lenteurs^c avec ce plan est aussi représentée et donne la valeur de la vitesse acoustique en fonction de sa direction de propagation, l'échelle est ici très exagérée par rapport à la réalité. Le changement de polarisation permet ainsi d'obtenir l'accord de phase nécessaire à une diffraction efficace. Nous allons maintenant montrer comment les deux ondes polarisées perpendiculairement peuvent être couplées.

c. La surface des lenteurs est l'équivalent acoustique de la surface des indices.

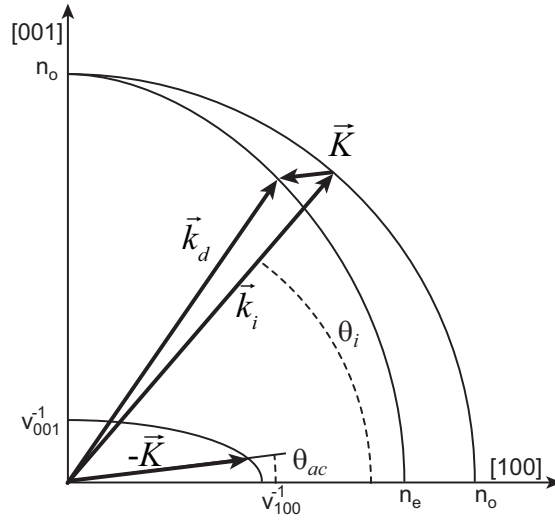


Figure 2.6 – Relation entre les vecteurs d'onde dans un cristal de KDP anisotrope négatif pour obtenir l'accord de phase. Les ondes se propagent dans le plan $(Oxz)=(O,[100],[001])$ avec une onde incidente polarisée ordinairement. L'intersection de ce plan avec la surface des indices est représentée ainsi que celle avec la surface des lenteurs acoustiques.

2.2.2.3 Couplage acousto-optique

Pour obtenir le détail du couplage, comme l'efficacité de diffraction ou l'état de polarisation des ondes, l'équation de propagation des ondes doit être résolue. Le formalisme des modes couplés a été utilisé dans ce but dans de nombreuses références [Yariv 84, Verluise 00b, Laude 03]. Nous ne le développerons pas ici, mais en utiliserons quelques résultats pour montrer le couplage des modes optiques.

Une onde plane acoustique se propageant dans le plan (Oxz) crée une variation de l'imperméabilité selon l'équation :

$$\Delta\eta_{ij} = p_{ijkl}S_{kl} \cos(\omega t - K_x x - K_z z) \quad (2.32)$$

avec S_{kl} l'amplitude associée à la déformation par le son. Cette perturbation crée de même une variation de la permittivité diélectrique du milieu selon

$$\Delta\varepsilon(x, z, t) = \Delta\varepsilon \cos(\omega t - K_x x - K_z z) \quad (2.33)$$

avec l'amplitude $\Delta\varepsilon$ donnée par [Royer 99]

$$\Delta\varepsilon = -\frac{\varepsilon(p : S)\varepsilon}{\varepsilon_0} = -\frac{1}{\varepsilon_0}\varepsilon \cdot [(p : S) \cdot \varepsilon]. \quad (2.34)$$

soit le double produit matriciel entre la matrice $p : S$ d'éléments $p_{ijkl}S_{kl}$ et ε d'une part, puis entre ε et le résultat précédent. Cette variation permet d'écrire le couplage entre les deux modes de propagation, incident et diffracté.

On considère un champ électrique total, $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ solution de l'équation de propagation :

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) - \mu_0 \frac{d^2 \mathbf{D}(\mathbf{r}, t)}{dt^2} = \mathbf{0} \quad (2.35)$$

que l'on peut exprimer plus simplement dans le domaine spectral

$$\nabla^2 \tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) + \mu_0 \omega^2 \varepsilon(\mathbf{r}, \omega) \tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) = -\mu_0 \omega^2 \Delta \varepsilon(\mathbf{r}, \omega) \tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) \quad (2.36)$$

avec ε le tenseur de permittivité non-perturbé et $\Delta \varepsilon$ sa perturbation qui fait apparaître un terme source dans l'équation. Nous n'allons pas résoudre cette équation, problème déjà traité mais simplement regarder la nature du terme source dans le cas particulier du Dazzler UV [Coudreau 06].

On considère que le champ optique incident est polarisé selon l'axe (Oy) et se propage dans le plan (Oxz), (O,[100],[001]) d'un cristal de KDP en présence d'une onde acoustique de cisaillement de même polarisation. Elle crée une déformation dans les directions (xy) et (zy), soit de type S_4 et S_6 dans le tenseur des déformations S . Le terme source dû au couplage de ces deux ondes est proportionnel à

$$\Delta \varepsilon \tilde{\mathbf{E}}_i \propto \varepsilon(p_{\text{KDP}} : S) \varepsilon \mathbf{e}_i \quad (2.37)$$

avec \mathbf{e}_i la polarisation du champ incident. On a alors

$$\mathbf{e}_i = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \varepsilon = \begin{pmatrix} n_o^2 & 0 & 0 \\ 0 & n_o^2 & 0 \\ 0 & 0 & n_e^2 \end{pmatrix} p_{\text{KDP}} = \begin{pmatrix} p_{11} & p_{12} & p_{13} & 0 & 0 & 0 \\ p_{21} & p_{22} & p_{23} & 0 & 0 & 0 \\ p_{31} & p_{32} & p_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & p_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & p_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & p_{66} \end{pmatrix} \quad S = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ S_4 \\ 0 \\ S_6 \end{pmatrix}. \quad (2.38)$$

Le produit tensoriel $p_{\text{KDP}} : S$ va coupler les différentes coordonnées spatiales :

$$p_{\text{KDP}} : S = \begin{pmatrix} 0 & p_{66} S_6 & 0 \\ p_{66} S_6 & 0 & p_{44} S_4 \\ 0 & p_{44} S_4 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.39)$$

soit au final un terme source proportionnel à

$$\Delta \varepsilon \tilde{\mathbf{E}}_i \propto \begin{pmatrix} n_o^4 p_{66} S_6 \\ 0 \\ n_o^2 n_e^2 p_{44} S_4 \end{pmatrix} \perp \mathbf{e}_i. \quad (2.40)$$

Ce terme fait donc apparaître un champ diffracté perpendiculaire au champ incident. Il est clair que par la structure tensorielle du terme source, tous les types d'interaction peuvent se rencontrer conservant ou non la polarisation.

Ainsi en utilisant cette configuration, on obtient l'accord de phase pour la diffraction de Bragg et le changement de polarisation. Le détail des relations entre les ondes dans notre AOPDF ainsi que ses différents paramètres de fenêtre temporelle, résolution et efficacité vont maintenant être détaillés.

2.2.3 Caractéristiques de notre AOPDF

2.2.3.1 Géométrie de l'interaction

Nous allons dans cette section détailler les relations entre les différentes grandeurs physiques du problème en fonction de la géométrie de l'interaction. Les ondes optiques et acoustiques se propagent dans le plan contenant les axes [100] et [001] du KDP [Coudreau 06]. Leurs vecteurs d'onde sont repérés par un angle θ_l ($l=i, d$ ou a) par rapport à l'axe [100] et vérifient la condition d'accord de phase (voir figure 2.6). De plus, pour maximiser l'interaction, le vecteur de Poynting acoustique^d est aligné sur le vecteur d'onde optique incident. On va donc pouvoir utiliser ces deux équations pour obtenir les relations entre les angles, les fréquences...

$$\mathbf{k}_d = \mathbf{K} + \mathbf{k}_i \quad (2.41a)$$

$$\omega_d = \omega_i \pm \Omega \simeq \omega_i \quad (2.41b)$$

$$\tan \theta_i = \tan \beta_a = \frac{V_{001}}{V_{100}} \tan \theta_a \quad (2.41c)$$

avec β_a l'angle du vecteur de Poynting.

L'onde ordinaire voit un indice n_o (ordinaire) constant. Cependant l'indice extraordinaire vu par l'onde diffractée, n_d , dépend de son angle de propagation^e. Il en est de même pour la vitesse de l'onde acoustique. La surface des indices et la surface des lenteurs permettent d'obtenir les valeurs correspondantes.

$$n_d(\theta_d) = \frac{n_o n_e}{\sqrt{n_o^2 \cos^2 \theta_d + n_e^2 \sin^2 \theta_d}} \quad (2.42a)$$

$$V(\theta_a) = \sqrt{V_{100} \cos^2 \theta_a + V_{001} \sin^2 \theta_a} \quad (2.42b)$$

La faible anisotropie du KDP, $\Delta n = n_o - n_e \ll n_o$ ($n_o > n_e$), simplifie l'expression de l'indice « diffracté »

$$\delta n = n_o - n_d \simeq \Delta n \cos^2 \theta_i. \quad (2.43)$$

On peut maintenant projeter l'équation 2.41b selon deux directions orthogonales. La première selon le vecteur \mathbf{K} et la deuxième orthogonalement ce qui nous donne la déviation entre les vecteurs d'onde optiques et la norme du vecteur d'onde acoustique.

$$\theta_d - \theta_i \simeq \frac{\Delta n}{n_o} \cos^2 \theta_i \tan(\theta_i - \theta_a) \quad (2.44a)$$

$$K \simeq k_i \frac{\Delta n}{n_o} \frac{\cos^2 \theta_i}{\cos(\theta_i - \theta_a)} \quad (2.44b)$$

d. Pour une direction donnée, le vecteur de Poynting optique (respectivement acoustique) est orthogonal à la surface des indices (respectivement la surface des lenteurs).

e. La notation n_d pour l'indice extraordinaire vu par l'onde sera reprise pour l'indice de groupe. Il diffère de l'indice n_e qui est ici la valeur minimale de l'indice extraordinaire.

soit un rapport entre les fréquences acoustiques et optiques :

$$\gamma = \frac{\Omega}{\omega} = \frac{\Delta n V(\theta_a)}{c} \frac{\cos^2 \theta_i}{\cos(\theta_i - \theta_a)} \quad (2.45)$$

Applications numériques

Les constantes de notre AOPDF en KDP sont [Coudreau 06, Dmitriev 99] : $V_{100} = 1650$ m/s, $V_{001} = 2340$ m/s, $n_o(300 \text{ nm}) = 1,5451$, $n_e(300 \text{ nm}) = 1,4977$ et $\theta_i = 48,5^\circ$. L'utilisation de ces valeurs nous donne alors :

$$\begin{aligned} \Delta n &= 0,0474 & \theta_a &= 29,34^\circ & \Delta\theta &= \theta_d - \theta_i = 0.269^\circ \\ n_d &= 1,5237 & V_a &= 1839 \text{ m/s} & \gamma &= \frac{\Omega}{\omega} = 1,35 \cdot 10^{-7} \end{aligned} \quad (2.46)$$

L'angle entre le faisceau incident et diffracté est faible et correspond à une séparation entre les faisceaux de 6 cm après 1 m de propagation^f.

2.2.3.2 Grandeurs caractéristiques

Les grandeurs importantes pour un façonneur sont sa fenêtre temporelle de façonnage, son efficacité de diffraction et sa résolution. Les deux dernières nécessitent de rentrer dans les détails de fonctionnement de l'appareil et de l'interaction acousto-optique. Elles sont données dans la référence [Kaplan 02] et nous les donnons ici sans démonstrations. Elle peuvent servir à la compréhension de la physique de l'interaction.

Efficacité

Le rapport entre les intensités à la sortie et à l'entrée à une fréquence ν est donné par :

$$\eta = \frac{I_d(\nu)}{I_0(\nu)} = \frac{P}{P_0} \frac{\pi^2}{4} \text{sinc}^2 \left[\frac{\pi}{2} \sqrt{\frac{P}{P_0} + \Delta\phi^2} \right] \quad (2.47)$$

avec P la puissance acoustique et $P_0 = \left(\frac{2M_2\nu^2 L^2 \cos^2(\theta_i - \theta_a)}{c^2} \right)^{-1}$ où M_2 est le facteur de mérite du KDP. M_2 dépend d'un coefficient photo-élastique effectif, de la densité et de la vitesse de l'onde acoustique. Enfin $\Delta\phi$ est un déphasage dû au désaccord de phase et vaut :

$$\Delta\phi = \frac{\Delta k L}{\pi} \cos(\theta_i - \theta_a). \quad (2.48)$$

L'expression de l'efficacité est donnée ici à une fréquence particulière. Les ondes utilisées sont larges bandes et la variation de l'efficacité avec le façonnage est difficilement prévisible.

f. Cet angle tient compte de la réfraction sur la face externe de l'AOPDF soit $\Delta\theta = 0,38^\circ$.

Résolution

Quand $\Delta\phi = \pm 0,8^g$ et $P = P_0$, l'efficacité de diffraction est alors égale à 0,5. Dans ce cas, la résolution du façonneur est donnée par :

$$\delta\lambda = \frac{0,8\lambda^2}{\Delta n L \cos^2 \theta_i} \quad (2.49)$$

soit de l'ordre de 0,036 nm à 270 nm.

Point de programmation

La bande spectrale acoustique, ramenée dans le domaine optique, est fixée en général à 3 fois la largeur spectrale de l'impulsion incidente : $\Delta\lambda_{ac} = 3\Delta\lambda_i$. Le nombre de points indépendant de programmation est donc égal au rapport :

$$N = \frac{3\Delta\lambda}{\delta\lambda} = \frac{3\Delta n L \Delta\lambda \cos^2 \theta_i}{0,8 \lambda^2}. \quad (2.50)$$

Cette équation nous donne de l'ordre de 200 points de façonnage pour notre AOPDF.

Fenêtre temporelle

La fenêtre temporelle est égale à la différence maximale de temps de groupe d'une composante spectrale se propageant sur l'axe ordinaire ou sur l'axe extraordinaire. La vitesse de groupe est donnée par :

$$\frac{1}{v_g} = \frac{dk}{d\omega} = \frac{n}{c} + \frac{\omega}{c} \frac{dn}{d\omega} = \frac{n_g}{c} \quad (2.51)$$

avec n_g l'indice de groupe. On obtient alors une fenêtre temporelle donnée par :

$$T = L \left(\frac{1}{v_{go}} - \frac{1}{v_{gd}} \right) = \frac{L}{c} (n_{go} - n_{gd}) \simeq \frac{\Delta n_g L}{c} \cos^2 \theta_i \quad (2.52)$$

avec $\Delta n_g = n_{go} - n_{ge}$. La figure 2.7 représente la variation de T en fonction de la longueur d'onde pour notre AOPDF. Elle varie entre 6 et 8 ps selon la longueur d'onde.

2.2.3.3 Réglages

L'onde acoustique utilisée est une onde progressive se déplaçant dans le cristal. Elle doit donc être synchronisée sur l'impulsion laser incidente. Elle est générée par un transducteur piezo-électrique collé sur le cristal de KDP et piloté par un générateur haute-fréquence (voir figure 2.8). Deux paramètres expérimentaux sont importants pour une bonne utilisation du dispositif :

- L'alignement du faisceau dans l'AOPDF doit être fait avec précision. Le faisceau y entre horizontalement, orthogonalement à la face d'entrée et en son centre. La

g. Valeur moyenne pour des impulsions larges bandes.

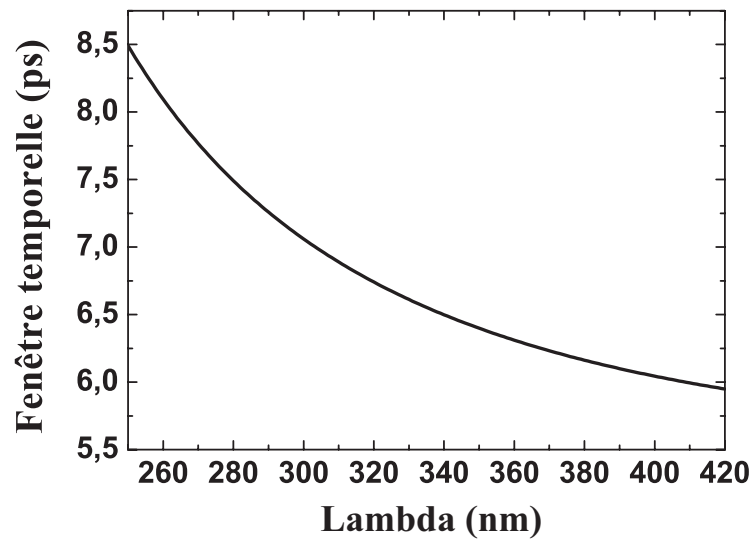


Figure 2.7 – Evolution théorique de la fenêtre temporelle de notre AOPDF en fonction de la longueur d'onde.

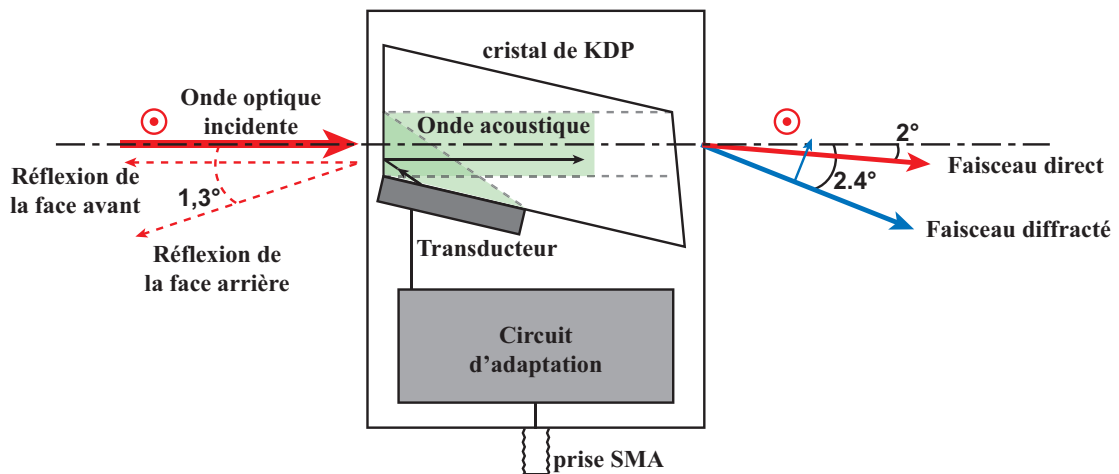


Figure 2.8 – Vue schématisée de notre AOPDF UV (avec l'aimable autorisation de N. Forget) : l'onde optique incidente se propage collinairement avec l'onde acoustique produite par le transducteur piezo-électrique collé sur le cristal de KDP. L'onde optique est alors partiellement diffractée par l'onde acoustique qui lui transfère son énergie et sa phase, l'impulsion mise en forme sort alors du cristal avec un angle différent. Le cristal de KDP mesure 78 mm ce qui donne la dimension de l'appareil.

bonne collimation du faisceau permet la meilleure résolution, et l'efficacité est maximisée quand le faisceau est au centre de la colonne acoustique. Un système de translation transverse permet ce réglage.

Le réglage fin de l'angle d'accord de phase est fait en programmant un trou en amplitude et en mesurant le spectre du faisceau diffracté. Le spectrogramme mesuré présente aussi un trou qui peut être translaté en tournant l'AOPDF autour de la direction verticale par une rotation micrométrique. Une fois que ce trou est

positionné à la même longueur d'onde que celle programmée, l'accord de phase est réalisé. D'un point de vue expérimental, ce paramètre est le plus important puisqu'il garantit le bon transfert de phase et d'amplitude de l'onde acoustique à l'onde optique, l'AOPDF est alors aligné.

A noter que la polarisation en entrée doit être verticale étant donnée la coupe du cristal. C'est pourquoi l'accord de phase est réglé par rotation autour de l'axe vertical. Ce point est d'autant plus important que si la polarisation est horizontale, une onde diffractée, et polarisée verticalement, est obtenue mais avec une phase qui n'est pas du tout celle programmée.

- La différence de vitesse de propagation dans le cristal fait que l'onde acoustique est vue figée par l'onde optique. Cependant à chaque arrivée de l'impulsion optique (kHz pour notre laser), une onde acoustique est lancée dans le cristal et doit être précisément synchronisée avec l'onde incidente. Pour éviter de ne diffracter qu'une partie du spectre incident, l'onde acoustique doit être centrée dans le cristal quand l'onde optique y entre. Ceci est réalisé par une ligne à retard électronique, synchronisée sur l'impulsion précédente. En jouant sur le délai, on s'assure que l'onde optique est diffractée en tout point du cristal.

2.2.3.4 Limitations

Avant de voir les résultats expérimentaux, nous allons discuter des limitations intrinsèques à ce dispositif. En effet, elles sont liées à la nature même de l'interaction acousto-optique.

- Le réseau de diffraction généré par l'onde acoustique n'est pas fixe, mais doit être renouvelé à chaque impulsion laser. La limite du taux de répétition laser est donc donnée par l'électronique de mise en forme et surtout par la propagation de l'onde acoustique dans le cristal. Plus ce temps est long, plus la fréquence de répétition est basse. Pour notre cristal de KDP, $L=78$ mm et $v_{ac} \simeq 2000$ m/s, la durée de propagation vaut environ $40 \mu\text{s}$ auquel il faut ajouter le temps de chargement de l'onde. On a au final un taux de répétition d'environ 25 kHz.
- Le façonnage de l'impulsion est fait en retardant les différentes composantes spectrales. La meilleure efficacité est donc obtenue quand l'onde acoustique est étalée dans tout le cristal, maximisant la longueur d'interaction. Cependant l'étalement de l'onde est gouverné par la phase programmée. Ainsi, à largeur spectrale fixe, programmer une impulsion fortement chirpée donnera une meilleure efficacité que pour une impulsion courte : l'efficacité dépend de la phase programmée. Cette caractéristique est relativement limitante pour les expériences de contrôle en boucle fermée [Form 08] qui nécessitent une énergie constante par impulsion alors que la phase peut fortement varier. Cet effet peut être partiellement compensé en jouant sur la puissance acoustique.
- Une partie de la fenêtre temporelle est utilisée pour compenser la forte dispersion du KDP (principalement quadratique) dans l'UV. L'ajout d'un chirp négatif à l'impulsion avant sa propagation dans le cristal [Krebs 10] compense ce problème. Cette technique est particulièrement intéressante pour les AOPDF avec une faible fenêtre temporelle (nouveaux Dazzler UV avec un cristal de 50 mm).

- Les effets non-linéaires parasites ont lieu à des seuils de puissance optique bien inférieurs à ceux des façonneurs à ligne 4f, où l'énergie est dispersée spatialement sur le masque (voir section 1.3.2). Par exemple, le seuil de dommage d'un façonneur à cristaux liquides est de l'ordre de 300 GW/cm^2 [Monmayrant 04] alors que le Dazzler UV est limité à 1 GW/cm^2 (donnée constructeur FASTLITE). Nous verrons (section 2.2.4.3) que l'on atteint rapidement un régime d'absorption à deux photons particulièrement dans l'UV lointain.
- L'interaction se passe comme si les composantes étaient diffractées à différentes positions dans le cristal. Elles présentent ainsi un couplage spatio-temporel, différent de celui des lignes 4f, mais inhérents aux façonneurs spectraux en général. Ce point sera vu dans la section 2.3.3 sur la caractérisation spatio-temporelle.

Les différentes caractéristiques propres à notre AOPDF ont été décrites et nous allons maintenant voir ses possibilités expérimentales.

2.2.4 Résultats expérimentaux

La conception de notre AOPDF UV (DazzlerTMT-UV-260-410/T2) en terme d'accord de phase et de fréquences acoustiques disponibles ainsi que la transparence du KDP permet de façonner des impulsions dans l'intervalle [260,410] nm. Nous allons voir les différentes mises en formes obtenues à différentes longueurs d'ondes dans cet intervalle.

2.2.4.1 Dispositif expérimental

Le test des capacités de l'AOPDF nécessite une source UV accordable (tout du moins différentes longueurs d'ondes) ainsi que des dispositifs de caractérisation. Le but n'étant pas l'obtention d'impulsions UV particulièrement courtes, nous n'avons pas utilisé de technique permettant de maximiser la largeur spectrale des impulsions UV tel l'accord de phase achromatique [Szabó 90]. Partant du fondamental à 805 nm, nous avons produit des impulsions lasers aux fréquences 404 nm (a), [300-360] nm (b) et 270 nm par différents mélanges non-linéaires. La figure 2.9 schématise les dispositifs expérimentaux et le cas du façonnage à 400 nm est explicité sur la figure 2.10, par une photo du montage et un schéma explicatif.

Les impulsions dans l'UV ont été produites par :

SHG

Génération de seconde harmonique (SHG) du fondamental dans un cristal de BBO (type I, $200 \mu\text{m}$, 29°). L'énergie obtenue est de l'ordre de $10 \mu\text{J}$. Un spectre typiquement obtenu est représenté sur la figure 2.11(a) (points noirs : spectre expérimental et ligne grisée : ajustement gaussien). La fréquence centrale vaut $\lambda_0 = 404 \text{ nm}$, la largeur spectrale FWHM $\Delta\lambda_{1/2} = 7,0 \text{ nm}$ et la durée limitée TF $\Delta t_{0.1/2} = 34,3 \text{ fs}$.

SFG

Une somme de fréquences (SFG) entre un faisceau dans le visible produit par un

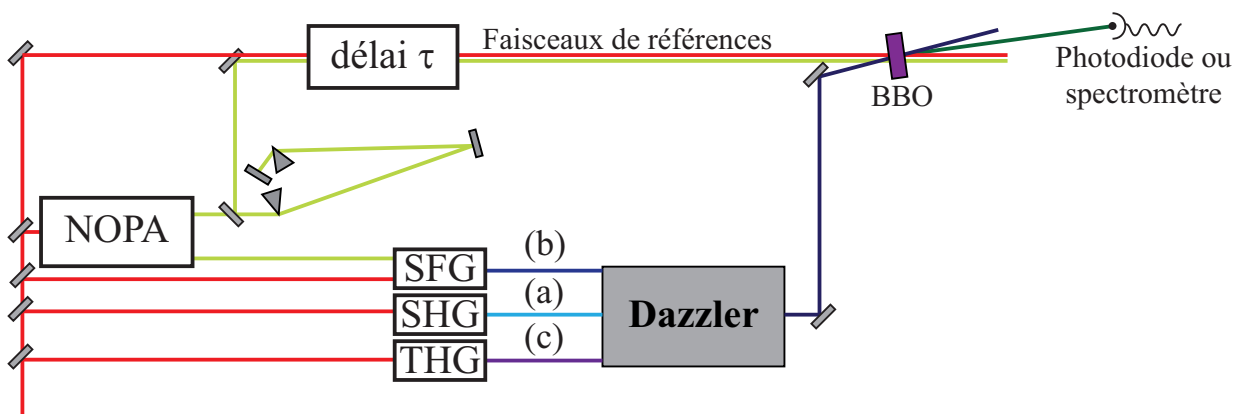


Figure 2.9 – Schéma du dispositif expérimental utilisé pour produire des impulsions dans l'UV, les mettre en forme et les caractériser. Cas (a) génération de seconde harmonique, cas (b) somme de fréquence entre un NOPA et le fondamental et cas (c) génération de troisième harmonique. La détection se fait avec un faisceau de référence fondamental ou issu du NOPA recomprimé.

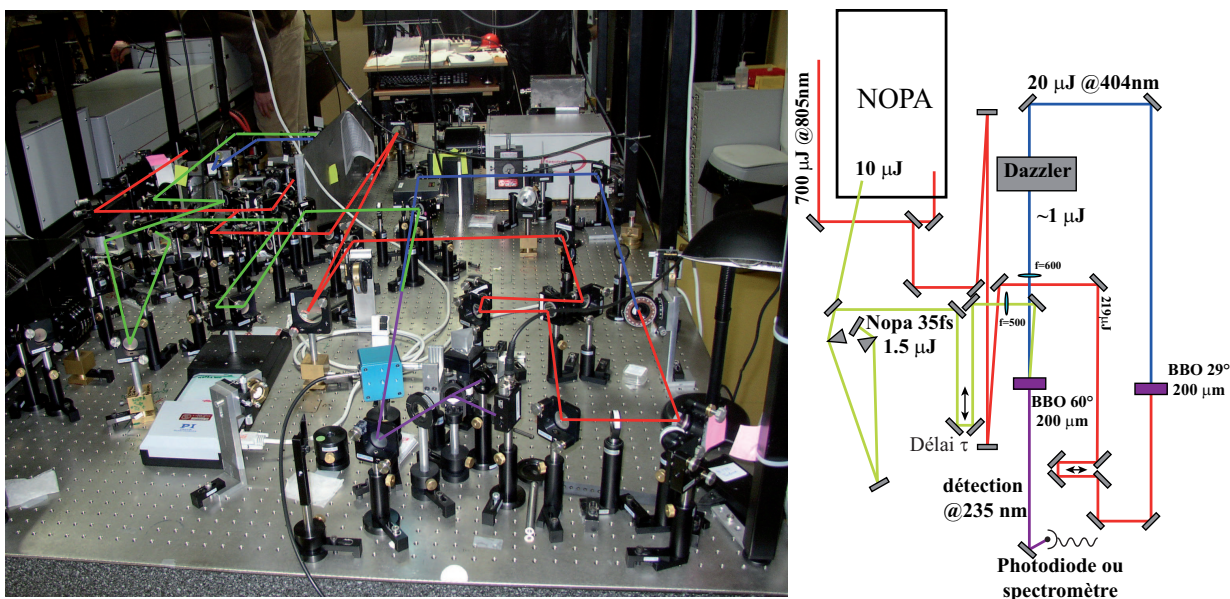


Figure 2.10 – Détail du dispositif expérimental pour le façonnage d'une impulsion laser à 400 nm et sa caractérisation par cross-corrélation avec un faisceau comprimé du NOPA. Le détail des chemins empruntés est schématisé sur la photo ainsi que sur le schéma à droite où sont mentionnées les caractéristiques des faisceaux et des optiques.

NOPA non-recomprimé ($8 \mu\text{J}$) et un faisceau fondamental ($150 \mu\text{J}$). Le mélange est fait dans un cristal de BBO (type I, $200 \mu\text{m}$, 35°). Le faisceau somme de fréquence à une énergie de l'ordre de $4 \mu\text{J}$ sur un intervalle $[300-360]$ nm et de l'ordre de 3 nm de bande dépendante de la longueur d'onde. Un spectre typiquement obtenu est représenté sur la figure 2.11(b) avec $\lambda_0 = 330$ nm, $\Delta\lambda_{1/2} = 4,15$ nm et $\Delta t_{0,1/2} = 38,6$ fs.

THG

Une génération de troisième harmonique (THG) effectuée en deux étapes : premièrement une SHG dans un cristal de BBO (type I, 200 μm , 29°) et deuxièmement une SFG entre le fondamental et cette deuxième harmonique dans un cristal de BBO (type I, 150 μm , 45°). Un spectre typiquement obtenu est représenté sur la figure 2.11(c) avec $\lambda_0 = 270 \text{ nm}$, $\Delta\lambda_{1/2} = 2,9 \text{ nm}$ et $\Delta t_{0,1/2} = 37 \text{ fs}$.

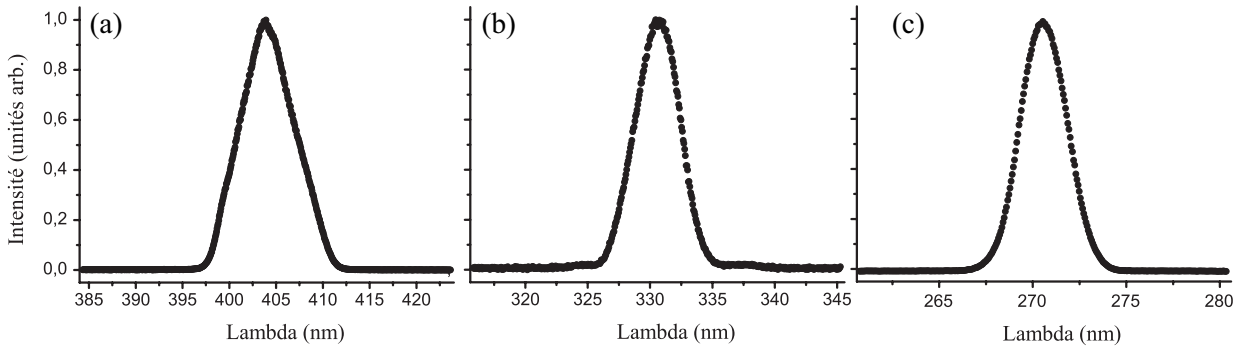


Figure 2.11 – Spectres des sources UV utilisées pour tester l'accordabilité de l'AOPDF. (a) impulsion produite par SHG ($\Delta\lambda_{1/2} = 7,0 \text{ nm}$), (b) par SFG ($\Delta\lambda_{1/2} = 4,15 \text{ nm}$) et (c) par THG ($\Delta\lambda_{1/2} = 2,9 \text{ nm}$).

Les différentes impulsions façonnées sont alors caractérisées par des cross-corrélations résolues spectralement (XFROG) ou non. Le mélange non-linéaire par somme ou différence de fréquences dans des cristaux de BBO d'épaisseur inférieure à 100 μm donne une acceptation spectrale suffisante à la mesure. Les faisceaux de références sont soit le fondamental, 60 fs à 805 nm, soit le NOPA compressé, 26 fs à 600 nm, selon les cas.

2.2.4.2 Mise en forme

La première opération à réaliser afin de mettre en forme l'impulsion UV est de s'assurer d'avoir une impulsion limitée par TF (ou presque) au départ. En général ce n'est pas le cas, la génération des impulsions UV requiert la propagation dans des cristaux non-linéaires dispersifs ainsi que dans des lentilles. De plus, la dispersion même du cristal de KDP doit être compensée.

Il faut donc d'abord calculer la phase ajoutée par le cristal, programmer la phase inverse sur l'onde acoustique et une impulsion proche de la limite par TF est alors obtenue. Une itération sur les trois premiers ordres du développement de Taylor de la phase permet alors d'optimiser cette proximité. Le mieux serait une mesure de phase, de type SPIDER, et d'appliquer alors la phase opposée. Cependant comme le support spectral ne permet pas d'aller sous les 30 fs, nous n'avons pas d'impulsions ultra-courtes et nous considérons donc que les impulsions obtenues par cette méthode sont globalement recompressées.

Résultats à 400 nm

A 404 nm, les impulsions mises en forme sont caractérisées par cross-corrélation. Une somme de fréquence entre cette impulsion et la référence issue du NOPA permet de visualiser l'intensité temporelle des impulsions convoluée par la durée du NOPA ($\Delta t_{1/2} = 26$ fs). Une impulsion globalement recompressée a été obtenue et est visible sur la figure 2.12(a) (en noir). La durée de crosscorrélacion, obtenue par ajustement avec une courbe gaussienne (en gris), est de $68 \pm 0,6$ fs FWHM soit $62 \pm 0,6$ fs une fois déconvolué. A partir de cette

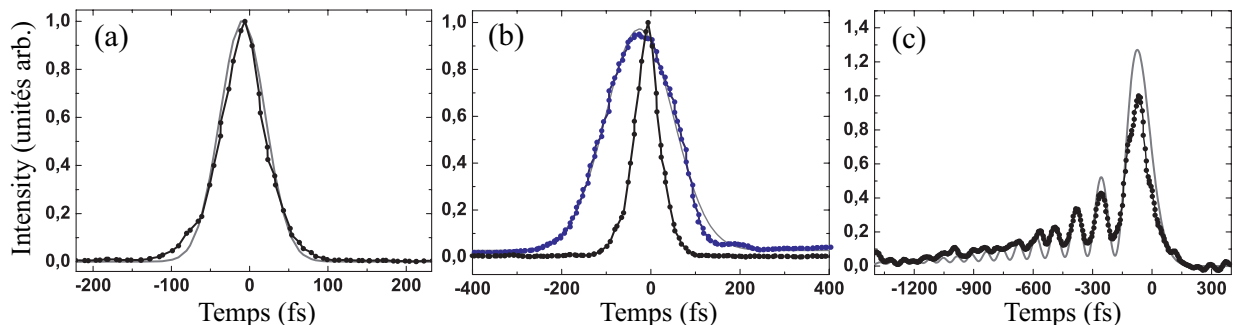


Figure 2.12 – Cross-corrélation d’impulsions mise en forme à 400 nm. (a) impulsion compressée à 62 fs, (b) ajout de phase quadratique (-2000 fs²) en bleu et impulsion TF pour comparaison et (c) de phase cubique (-1.10^6 fs³). Les ajustements ((a) et (b)) et la courbe théorique (c) sont représentés en gris.

mise en forme, l’ajout de phase quadratique (-2000 fs²) élargit le profil temporel (courbe bleue) visible en (b). L’impulsion compressée (en noir) est aussi représentée pour comparaison. Enfin une phase cubique (-1.10^6 fs³) donne une impulsion façonnée présentant de nombreuses pré-impulsions visibles en (c) (en noir). Cette dernière courbe est comparée à une courbe théorique (en gris) calculée en utilisant les données expérimentales.

Résultats à 330 nm

Plus loin dans l’UV, les impulsions issues de la SFG ont été compressées, puis une mise en forme en phase et en amplitude leur a été appliquée. Les figures 2.13 et 2.14 représentent des traces XFROG. La première est un train de deux impulsions limitées TF séparées de 400 fs (b) et le spectre correspondant (a). Le contraste des franges n’est pas très bon ici, car le faible signal diffracté a nécessité une ouverture importante de la fente du spectromètre. La deuxième représente le spectrogramme de deux trains de trois impulsions séparées de 250 fs^h. Chaque impulsion a une phase spectrale supplémentaire différente. A gauche une phase cubique positive ($+1,5.10^5$ fs³), au centre une impulsion limitée TF et à droite une phase quadratique (-2000 fs²).

Résultats à 270 nm

Finalement à 270 nm, nous avons testé les possibilités de l’AOPDF pour générer des trains d’impulsions. Successivement, nous avons programmé une puis trois puis cinq... jus-

h. Le chevauchement des impulsions est dû à ce délai un peu court devant leur durée.

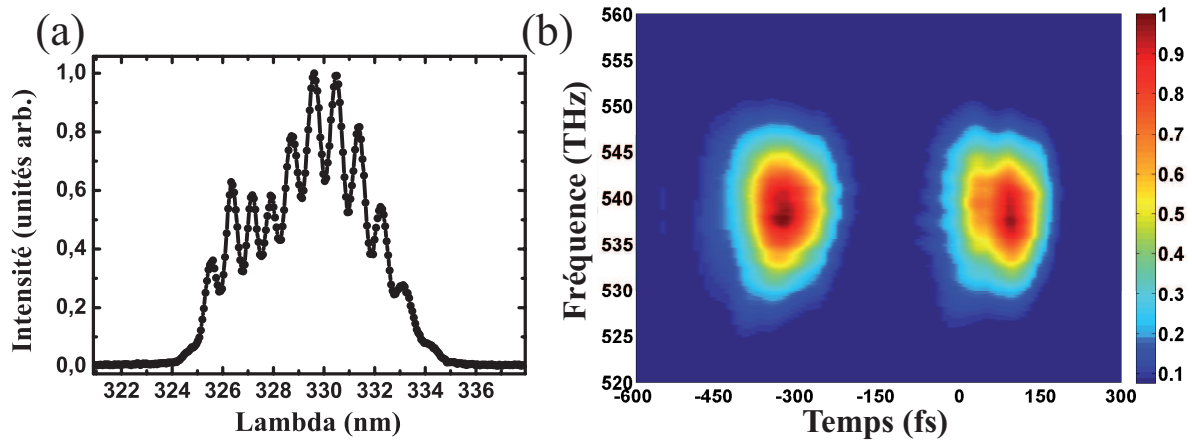


Figure 2.13 – Train de deux impulsions à 330 nm espacées de 400 fs. (a) spectre et (b) trace XFROG.

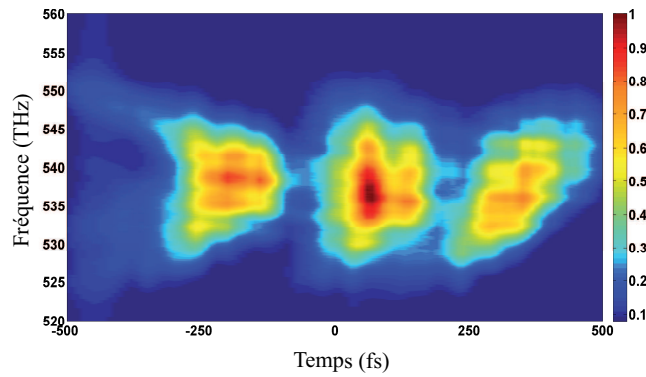


Figure 2.14 – Traces XFROG d'un train de trois impulsions. La phase programmée est cubique pour celle de gauche, TF au centre et quadratique à droite.

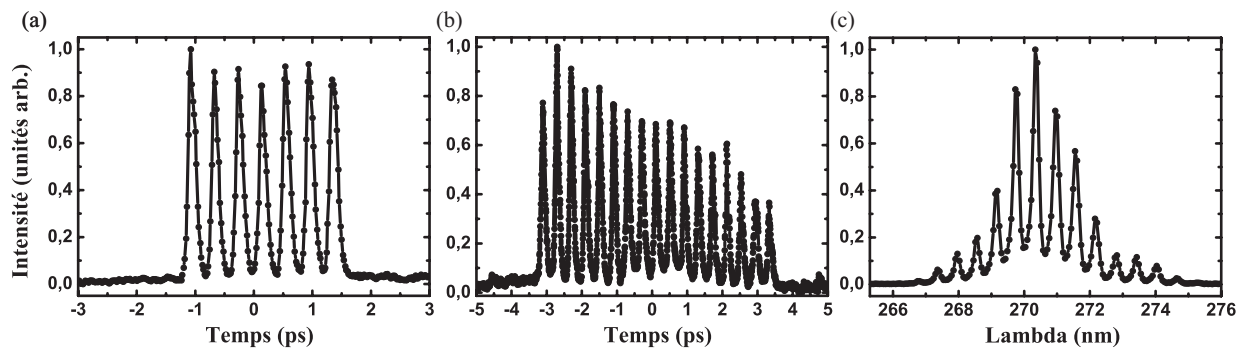


Figure 2.15 – Trains d'impulsions à 270 nm espacées de 400 fs. (a) 7 impulsions, (b) 17 impulsions et (c) le spectre correspondant au cas (b).

qu'à 17 impulsions limitée TF espacées de 400 fs. Leur caractérisation par cross-corrélation est visible sur la figure 2.15 où sont tracées en (a) 7 impulsions et en (b) 17 impulsions. Le spectre correspondant est représenté en (c). Le manque de résolution de notre spectro-

mètre ne nous permet pas de voir de variation entre le spectre de 5 impulsions ou plus, c'est pourquoi un seul spectre est représenté.

Le contrôle en amplitude est parfait pour les 7 impulsions. Par contre avec 17 impulsions, l'amplitude des impulsions diminue avec le temps. Ceci peut être corrigé en rajoutant un coefficient de pondération à chaque impulsion. L'effet peut provenir d'une mauvaise superposition du faisceau optique et de la colonne acoustique. En effet, ici toute la fenêtre temporelle est utilisée. Ainsi, si la superposition est bonne au départ, elle peut l'être moins à la fin. De plus, pour avoir un signal suffisant, la puissance acoustique est mise à son maximum, alors que les variations d'amplitude demandées sont très fortes. Il est donc possible que l'onde acoustique sature.

A cette longueur d'onde, nous avons aussi programmé un train d'impulsions complexes représentées sur la figure 2.16(a). Avec à gauche, une phase quadratique, au centre une impulsion limitée TF et à droite, une phase cubique. La simulation du même train est représentée en (b) à titre de comparaison.

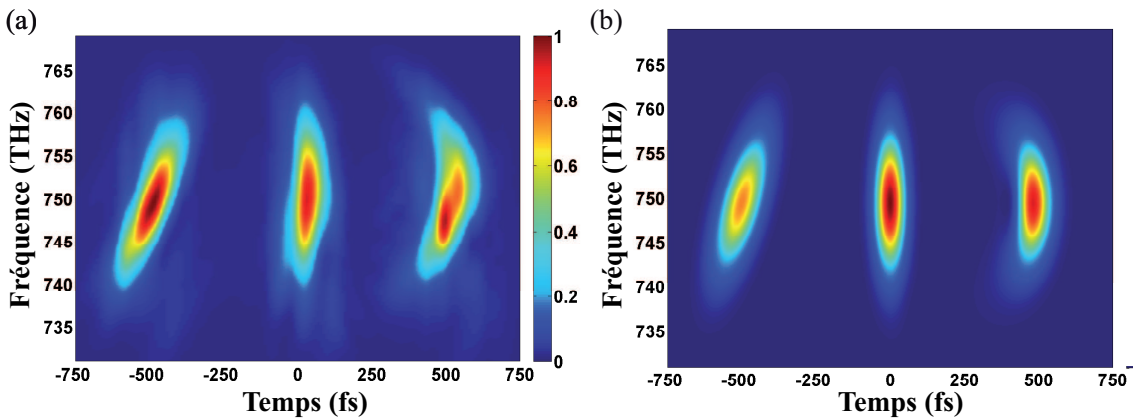


Figure 2.16 – Train de trois impulsions espacées de 500 fs. La phase programmé est quadratique pour celle de gauche, TF au centre et cubique droite. (a) trace XFROG expérimentale et (b) théorique.

Conclusion

Les capacités de l'AOPDF à mettre en forme les impulsions dans l'UV sont, comme on l'a vu, globalement conforme à la programmation. Nous avons insisté ici, plus sur l'accordabilité et la possibilité de produire facilement des trains d'impulsions et autre façonnage en phase que sur l'aspect quantitatif. Pour l'être plus, des expériences de caractérisation spatio-temporelle par interférométrie spatio-spectrale sont en cours. Ces mesures permettront de mesurer exactement la fonction de transfert spatio-fréquentielle de l'AOPDF.

Néanmoins, les résultats précédents ont montré que le façonnage est possible sur toute la bande spectrale [260,410]nm et sur une fenêtre temporelle de l'ordre de 7 ps (voir figure 2.15(b)) en bon accord avec la valeur théorique (voir figure 2.7). La mise en forme en phase et en amplitude permet d'obtenir des trains d'impulsions limitées TF ou plus complexes. En particulier, une phase cubique de 1.10^6fs^3 a été programmée ainsi que diverses phases

quadratiques. La valeur maximale de phase programmable est telle que l'onde acoustique doit être contenue dans le cristal, ainsi des impulsions d'une durée de l'ordre de 7 ps peuvent être générées.

2.2.4.3 Efficacité

L'énergie des impulsions mises en forme dans l'UV est un paramètre très important pour leur utilisation en femtochimie et contrôle cohérent. Or les sources femtosecondes directes dans l'UV n'existent pas, les multiples mélanges non-linéaires nécessaires rendent l'impulsion UV « chère ». L'efficacité du façonneur est alors un paramètre critique pour son utilisation.

Le KDP est principalement transparent dans l'UV ; sa transparence chute à zéro à 174 μm [Dmitriev 99] cependant il commence à absorber le rayonnement à 266 nm. Nous nous sommes donc placés dans ce cas défavorable pour tester l'efficacité de notre AOPDFⁱ. Tout d'abord, nous définissons l'efficacité du façonneur comme le rapport entre l'énergie diffractée et l'énergie à l'entrée. Elle dépend principalement de l'absorption du cristal et de son efficacité de diffraction. Théoriquement [Kaplan 02], cette dernière dépend de la largeur spectrale, du diamètre du faisceau et de sa divergence. De plus, elle dépend aussi de la phase programmée.

Pour pouvoir comparer l'efficacité mesurée ici, nous fixons la puissance acoustique à son maximum. De plus, nous ajoutons une phase quadratique qui étire l'onde acoustique dans tout le cristal (configuration maximisant la diffraction acousto-optique). Enfin le profil acoustique programmé est une hypergaussienne d'ordre 6 et de largeur spectrale 9 nm contre 2,9 pour l'impulsion optique^j.

Le faisceau optique est collimaté avec un diamètre de 1,5 mm et aligné avec la colonne acoustique. La figure 2.17 représente les résultats expérimentaux. Le cas (a) représente l'énergie transmise sans onde acoustique et le pourcentage de transmission. Le cas (b) représente l'énergie diffractée et le pourcentage d'efficacité.

On voit que celle-ci est très bonne pour les faibles énergies avec des valeurs supérieures à 40%. Cependant, elle diminue rapidement jusqu'à 20%. L'énergie transmise a un comportement linéaire aux faibles énergies puis devient non-linéaire. Cet écart à la linéarité est dû à l'absorption à deux photons (mélange non-linéaire d'ordre 3). L'allure de la courbe est en bon accord avec la théorie [Divall 05] mais la plage d'énergie balayée n'est pas assez importante pour en extraire un coefficient d'absorption. Nous nous sommes arrêtés à 25 μJ car on est déjà au delà du seuil de dommage théorique ($\Delta t \simeq 200\text{fs}$, $E = 25\mu\text{J}$, $d=1,5\text{ mm}$ soit $I \simeq 7\text{GW}/\text{cm}^2$) et nous n'avons pas voulu prendre de risque.

Les résultats expérimentaux ont montré les possibilités de façonnage de l'AOPDF dans l'UV. Des impulsions mises en forme ont été obtenues avec une énergie de l'ordre de 5 μJ avec une fenêtre temporelle disponible de l'ordre de 7 ps. Des expériences de

i. Sans compter qu'il est plus facile d'avoir de l'énergie à cette longueur d'onde comparée à la zone intermédiaire autour de 330 nm.

j. Le rapport 3 entre largeur spectrale acoustique et optique est nécessaire pour avoir une amplitude acoustique constante sur tout le spectre optique.

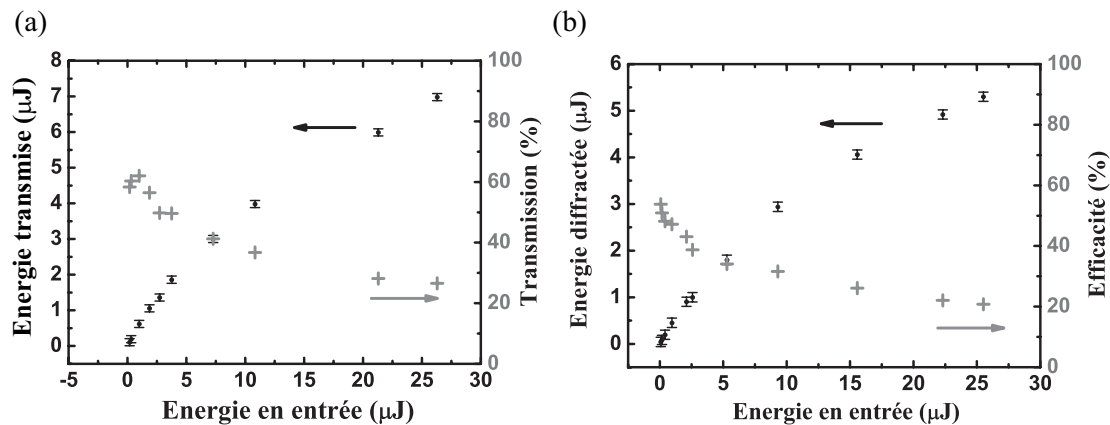


Figure 2.17 – Résultats expérimentaux de mesures d'efficacité en fonction de l'énergie en entrée. Le cas (a) représente l'énergie transmise sans diffraction (points noirs) et le pourcentage de transmission (croix noires) et le cas (b) représente l'énergie diffractée (points noirs) et le pourcentage d'efficacité (croix noires).

dynamique moléculaire [Kotur 09] sont donc possibles en utilisant ce dispositif. Cependant, l'absorption à deux photons, faible exceptée dans l'UV lointain, est un paramètre à prendre en compte.

2.3 Ouverture et conclusion

Le fonctionnement et les caractéristiques de l'AOPDF UV ont été vues. Il permet un façonnage large bande dans l'UV et peut donc servir à de multiples expériences de contrôle. En marge de ces applications de spectroscopie, plusieurs projets sont en cours pour utiliser l'AOPDF en routine. Effectivement, pour le moment son utilisation est sujette à une source UV relativement difficile à produire de manière accordable et il en est de même pour la caractérisation des impulsions. Je vais dans cette dernière section donner des pistes sur l'utilisation future du Dazzler, et mettre en lumière les recherches préliminaires auxquelles j'ai participé durant ma thèse.

2.3.1 Source UV accordable et façonnable

Utiliser des impulsions femtosecondes façonnées dans l'UV a un coût important en terme d'énergie nécessaire à la fréquence fondamentale. L'accordabilité des sources UV repose sur plusieurs étages non-linéaires qui donnent une impulsion de relativement faible énergie et des problèmes de stabilité. Le développement d'un OPA amplifiant directement un continuum UV est une solution à ce problème. Des travaux précédents ont montré la faisabilité d'un tel schéma pour amplifier des impulsions dans la bande [240,410] nm [Kurdi 04]. Le projet nécessite une source intense à 266 nm, un continuum UV et un façonneur. Nous pourrions donc utiliser notre AOPDF pour mettre en forme soit le continuum soit l'impulsion amplifiée.

La génération du continuum a constitué un des sujets de recherche durant ma thèse. En particulier, l'utilisation de fibres photoniques à diamètre de cœur variable a été essayée [Dudley 06]. Ces travaux n'en sont qu'au stade préliminaire mais je vais présenter quelques résultats obtenus.

Les fibres utilisées sont étirées pour obtenir un diamètre de cœur variable. Cette configuration permet d'abaisser la position spectrale du zéro de dispersion au cours de la propagation. Le continuum généré peut alors s'étendre vers les basses longueurs d'onde. Deux coupes d'une fibre, réalisée par microscope électronique sont présentées sur la figure 2.18(a). Le diamètre à l'entrée de la fibre (en haut) mesure $200\ \mu\text{m}$ et $130\ \mu\text{m}$ à la sortie (en-bas) après plusieurs mètres. Différentes sources, façonnées ou non, ont été injectées et

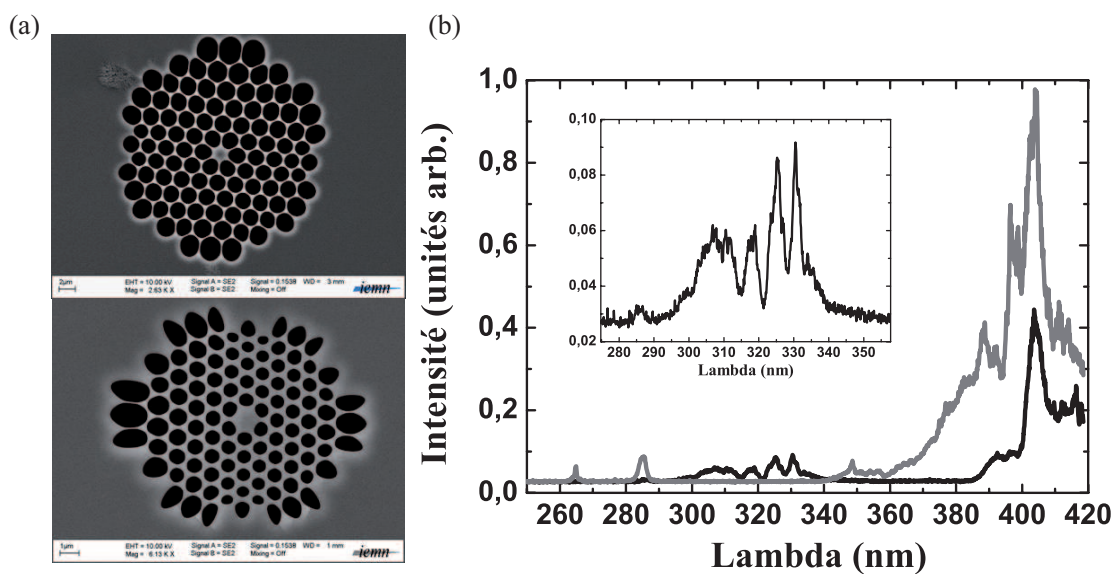


Figure 2.18 – (a) Coupe d'une fibres photonique prise au microscope électronique. Le diamètre à l'entrée de la fibre (en haut) mesure $200\ \mu\text{m}$ et $130\ \mu\text{m}$ à la sortie (en-bas) après plusieurs mètres. (b) Spectres obtenus par injection du fondamental dans un morceau de fibre de 10 cm de fibre. Les deux spectres ont été obtenus dans des conditions d'injections similaires.

le spectre à la sortie mesuré. Il a été vu qu'une fibre trop longue entraîne une fission solitonique néfaste à la production de continuum. On s'est donc restreint à quelques dizaines de centimètres. La meilleure source pour générer les continnum s'est avérée être le 800 nm, qui a permis l'obtention d'un continuum principalement centré à 400 nm. Un signal autour de 320 nm a aussi été obtenu et est visible sur la figure 2.18(b), courbe noire, avec un agrandissement dans l'encadré autour de 320 nm. Cependant, celui-ci est très instable et dépend fortement des conditions d'injection. Par exemple, la courbe grise a été obtenue pour des conditions légèrement différentes d'injection.

Un continuum dans l'UV lointain a ainsi été obtenu avec une injection de l'ordre de 20% pour une énergie en entrée de quelques nano-Joules. Cependant, les conditions d'obtention d'un tel continuum sont, pour le moment, aléatoires et le continuum lui-même est instable dans le temps. Cette voie de recherche a ainsi mis en évidence l'effet recherché,

mais une plus grande caractérisation de ce type de source est nécessaire avant de pouvoir l'utiliser dans un OPA. Nous allons aussi explorer la génération dans des lames cristallines, telle que le saphir ou le CaF_2 .

2.3.2 Caractérisation d'impulsions UV dans le diamant

La difficulté pour obtenir des impulsions UV accordables va de paire avec un dispositif de caractérisation accordable. La plupart des dispositifs courants de caractérisation utilise un mélange non-linéaire [Monmayrant 10]. Ce dernier n'est pas accordable sur un domaine de longueur d'onde aussi large que celui de façonnage. Il faut donc modifier le système (en pratique changer de cristal) à chaque longueur d'onde. Nous avons envisagé l'utilisation de l'absorption à deux photons dans le diamant^a pour obtenir une cross-corrélation qui ne demande pas d'accord de phase [Dadap 91, Roth 01]. En premier lieu nous allons voir que la théorie de l'absorption à deux photons par un système pompe-sonde donne accès à la cross-corrélation d'une pompe intense par une sonde. Elle est obtenue par la mesure de la transmission différentielle de l'intensité de la sonde. Nous donnerons alors quelques premiers résultats expérimentaux.

2.3.2.1 Absorption à deux photons dans le diamant

On considère donc un système de type pompe-sonde (voir section 4.2) où les deux impulsions de champ électrique E_p et E_s sont focalisées dans un cristal fin de diamant avec un délai τ . Pour des intensités élevées, un effet non-linéaire d'ordre 3 induit une variation du champ, au cours de la propagation, en $E|E|^2$ [Divall 05]. Cet effet peut se mettre sous la forme d'une équation sur l'intensité du champ $I(z, t) \propto |E(z, t)|^2$

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2, \quad (2.53)$$

où α et β sont respectivement les coefficients d'absorption linéaire et à deux photons. A cela, peut s'ajouter un terme d'absorption par des porteurs de charges en $-\sigma n_c I$. σ est la section efficace d'absorption, n_c la densité de porteur. Nous négligerons ce terme dans les équations, mais il peut devenir non-négligeable pour des impulsions intenses et longues.

En considérant l'intensité de la sonde comme faible devant celle de la pompe et le diamant transparent aux longueurs d'ondes envisagées [Berman 65], on peut écrire un système d'équations couplées

$$\frac{dI_p(z, t)}{dz} = -\beta_{pp} I_p(z, t)^2 \quad (2.54a)$$

$$\frac{dI_s(z, t)}{dz} = -\beta_{ps} I_p(z, t - \tau) I_s(z, t) \quad (2.54b)$$

avec β_{pp} le coefficient d'absorption à la fréquence $2\omega_p$ et β_{ps} celui à la fréquence $\omega_s + \omega_p$.

a. Ce travail a été commencé durant le stage de Jonathan Bonnet.

La résolution de l'équation 2.54b nous donne l'expression de l'intensité de la pompe après une distance de propagation z

$$I_p(z, t) = \frac{I_p(0^+, t)}{1 + \beta_{pp} L I_p(0^+, t)} \quad (2.55)$$

avec 0^+ la position du début du cristal de longueur L mais après le passage de l'interface air-diamant. On notera de même L^- la position de fin avant le passage de l'interface diamant-air. En injectant cette dernière équation dans l'équation 2.54b on obtient

$$I_s(L^-, t) = I_s(0^+, t) (1 + \beta_{pp} L^- I_p(0^+, t - \tau))^{-\frac{\beta_{ps}}{\beta_{pp}}} \quad (2.56)$$

soit en tenant compte du coefficient de réflexion R

$$I_s(L^-, t) = (1 - R)^2 I_s(0, t) (1 + \beta_{pp} L (1 - R) I_p(0, t - \tau))^{-\frac{\beta_{ps}}{\beta_{pp}}} \quad (2.57)$$

Pour une intensité de pompe pas trop élevée, $\beta_{pp} L (1 - R) I_p \ll 1$, on peut faire un développement limité et on obtient une transmission en énergie

$$T = \frac{(1 - R)^2}{I_{s0}} \int_{-\infty}^{+\infty} dt (1 - \beta_{ps} L (1 - R) I_p(0, t - \tau)) I_s(0, t) \quad (2.58)$$

avec I_{s0} l'intensité de la sonde intégrée sur le temps. Cette transmission fait bien apparaître le signal de cross-corrélation sur un fond continu. La mesure peut être améliorée et le fond supprimé par l'utilisation d'une détection synchrone^b.

La mise en œuvre expérimentale de ce schéma de détection a donné lieu à de jolis résultats et a soulevé un certain nombre de questions.

2.3.2.2 Résultats expérimentaux

Le dispositif expérimental est schématisé sur la figure 2.19. La sonde est produite par doublage d'un NOPA ou du fondamental, soit de l'ordre de 250 nm ou 400 nm, et façonnée par l'AOPDF. La pompe, intense et produite par la SHG du fondamental, est hachée pour ne détecter que le signal de même fréquence de hachage. Sonde et Pompe sont alors focalisées sur un cristal de diamant, d'épaisseur 500 μm , et la variation du faisceau sonde est enregistrée en fonction du délai. Pour la stabilité de la mesure, le signal mesuré est divisé par celui de référence.

Le premier résultat a consisté dans la mesure d'impulsions chirpées. La figure 2.20 représente des cross-corrélations mesurées pour une phase quadratique croissante (de haut en bas) ajoutée par l'AOPDF. Elle varie de 0 fs² (en haut) à +1400 fs² (en bas) par pas de 400 fs². Les durées ajustées correspondantes varient de 79 fs à 120 fs.

Une impulsion façonnée en phase et en amplitude a aussi été mesurée par cette méthode. Il s'agit d'un train de 7 impulsions espacées de 400 fs et visible sur la figure 2.21.

b. Le dispositif a été mis en place en collaboration avec Arnaud Arbouet [Arbouet 04].

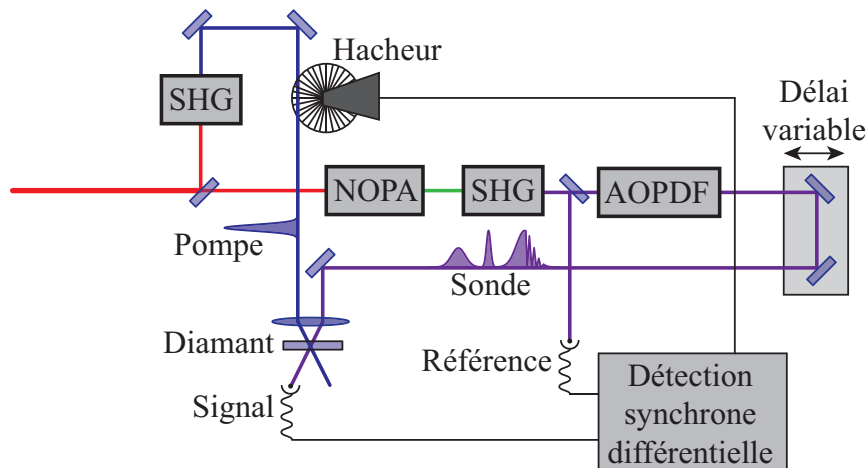


Figure 2.19 – Schéma du dispositif expérimental pour la détection synchrone. La sonde est produite par doublage d'un NOPA ou du fondamental, soit de l'ordre de 250 nm ou 400 nm, et façonnée par l'AOPDF. La pompe, intense est produite par la SHG du fondamental, est hachée pour ne détecter que le signal de même fréquence de hachage. Le signal mesuré est alors divisé par la référence pour s'affranchir des instabilités de puissance.

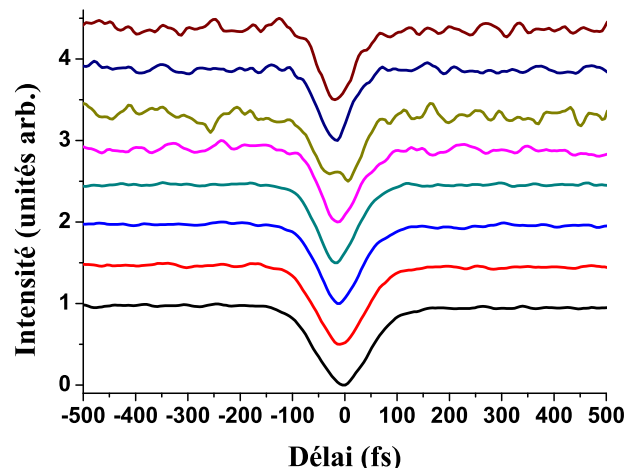


Figure 2.20 – Cross-corrélation dans le diamant avec un phase quadratique croissante (de haut en bas) ajoutée par l'AOPDF. La phase varie de 0 fs^2 (en haut) à $+1400 \text{ fs}^2$ (en bas) par pas de 400 fs^2 . Les durées ajustées correspondantes varient de 79 fs à 120 fs.

Les deux cross-corrélation ont été obtenues pour des énergies de pompe différentes : en (a) $E_p = 6 \mu\text{J}$ et $17 \mu\text{J}$ en (b). L'influence de cette énergie de pompe semble augmenter l'absorption linéaire du diamant, avec une diminution progressive de la transmission au cours du temps. Nous pensons que cet effet est dû à la création non-négligeable de porteur de charge dans la bande de conduction du diamant. Ces effets ainsi que la dépendance en longueur d'onde doivent encore être étudiés avant de pouvoir utiliser cette technique en routine.

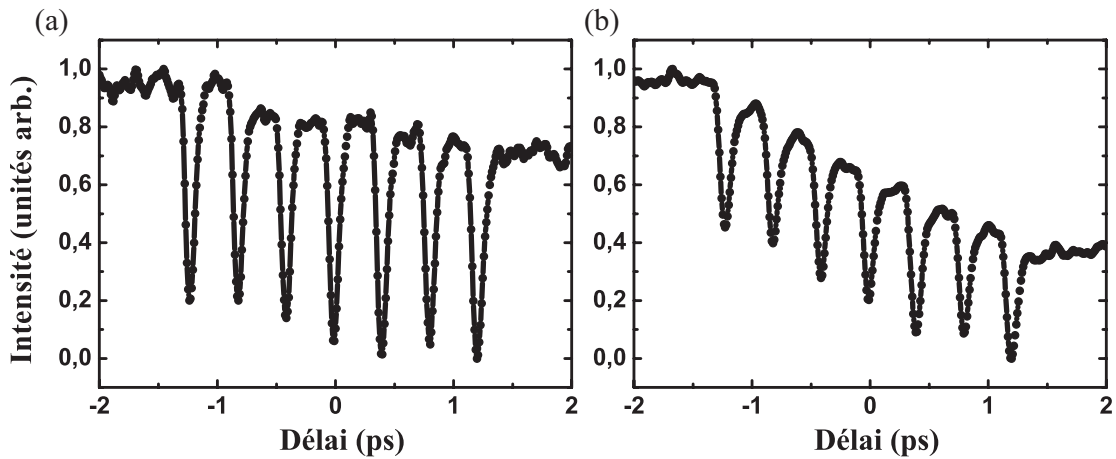


Figure 2.21 – Cross-corrélation dans le diamant d’un train d’impulsions séparées de 400 fs. L’énergie de la pompe vaut 6 μJ en (a) et 17 μJ en (b).

La mesure de transmission différentielle dans le diamant semble apporter une solution au problème d’accordabilité des dispositifs de caractérisation. Cependant, la nécessité de la détection synchrone rend le dispositif plus complexe dans son fonctionnement que d’autres techniques. Enfin, cette mesure n’est pas auto-référencée et ne donne qu’une information partielle sur l’impulsion. C’est pourquoi nous sommes en train de développer d’autres outils de mesure.

2.3.3 Caractérisation spatio-temporelle

La nécessité de mesurer les caractéristiques complètes d’une impulsion laser façonnée a donné lieu à de nombreuses techniques de caractérisation. Nous venons de voir une méthode donnant l’intensité temporelle de l’enveloppe. Cependant, il est souvent nécessaire de connaître exactement l’amplitude et la phase de l’impulsion. La méthode la plus directe, précise et simple à mettre en place dans l’UV est l’interférométrie spectrale [Froehly 73, Lepetit 95]. De plus, l’extension spatiale de cette technique, SSI « Spatial-Spectral Interferometry » [Meshulach 97] permet la mesure des couplages spatio-temporels inhérents aux façonneurs [Tanabe 02].

Le principe consiste à mesurer les interférences spatio-spectrales de deux impulsions $E_1(x, y, t)$ et $E_2(x, y, t)$ arrivant avec un angle sur la fente d’un spectromètre imageur. La fente est supposée verticale, ainsi les composantes spectrales sont dispersées horizontalement et le profil spatial vertical est imagé dans la dimension verticale de la caméra. Les deux faisceaux faisant un angle, l’interférogramme présente des franges dans la dimension spatiale. Si la fente est orientée selon l’axe (Oy), l’intensité mesurée sur la caméra est donnée par

$$I(y, \omega) = I_1(y, \omega) + I_2(y, \omega) + 2\sqrt{I_1(y, \omega)I_2(y, \omega)} \cos[\phi_2(\omega) - \phi_1(\omega) + (k_2 - k_1)y + \omega\tau] \quad (2.59)$$

avec I_m $m = 1, 2$ l'intensité de chacun des champs. ϕ_m est la phase spectrale et k_m est la projection du vecteur d'onde sur l'axe y . Enfin τ est le délai entre les impulsions. τ et $k_2 - k_1$ sont les porteuses respectivement temporelle et spatiale. L'analyse du déphasage peut alors se faire par transformée de Fourier selon la dimension spatiale. Si une des impulsions est une référence dont la phase est connue, alors on obtient la phase de la seconde impulsion. L'image obtenue est constituée de franges 2D qui sont horizontales dans le cas d'un délai nul et d'un déphasage nul. Un délai aura pour effet de tourner les franges alors qu'une phase quadratique les courbera.

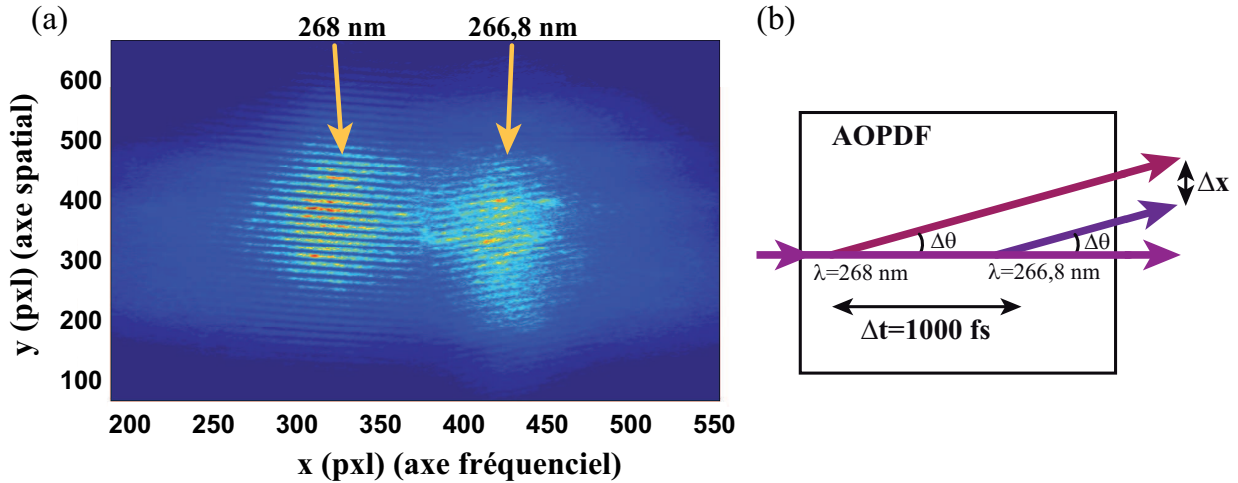


Figure 2.22 – (a) Interférogramme spatio-spectral entre une impulsion de référence et une impulsion mise en forme à 267,4 nm. (b) Schéma de l'interaction dans l'AOPDF. Le spectre est découpé en deux lobes de fréquences centrales 268 nm et 266,8 nm. Le lobe de gauche a une phase supplémentaire $\phi^{(1)} = -500$ fs et le lobe de droite une phase $\phi^{(1)} = +500$ fs. $\Delta\theta$ est l'angle de diffraction.

Nous sommes en train de développer cette technique dans l'UV en collaboration avec Dane Austin du groupe de Ian Walmsley à Oxford. Un exemple de résultat préliminaire est présenté sur la figure 2.22. L'intensité spatio-spectrale mesurée est représentée en (a), elle est le résultat de l'interférence spatiale d'une impulsion de référence à phase plate et d'une impulsion fortement façonnée. L'axe horizontal représente les fréquences et l'axe vertical représente la dimension spatiale (axe orthogonal à la propagation et dans le plan d'interaction de l'AOPDF). La mise en forme est ici en amplitude et en phase. Le spectre de l'impulsion est découpée en deux parties centrées respectivement à 268 nm et 266,8 nm d'où les deux lobes dans la dimension spectrale. De plus, une phase différente a été programmée sur chacun. Le lobe de gauche à une phase linéaire $\phi^{(1)} = -500$ fs et le lobe de droite une phase $\phi^{(1)} = +500$ fs. Ils sont donc diffractés à différentes position dans l'AOPDF. Ceci implique un décalage des deux lobes dans la dimension spatiale. Ce façonnage et le décalage spatial sont schématisés en (b). Le traitement par transformée de Fourier spatiale de cet interférogramme permet de remonter à la phase spectrale, l'amplitude spectrale, le profil spatial et le couplage entre espace et temps.

Nous prévoyons ensuite d'étendre cette technique à une version auto-référencée de

type SPIDER. En effet, la technique SSI ne permet pas de caractériser une impulsion mais seulement ses différences avec une impulsion de référence. La mesure précise de la fonction de transfert de l'AOPDF est ainsi faite mais nous n'obtenons pas le détail de l'impulsion dans l'absolu.

2.3.4 Conclusion

Le fonctionnement de notre AOPDF UV a été détaillé d'un point de vue théorique et de fonctionnement expérimental. Nous avons aussi détaillé ses principales possibilités de mise en forme en phase (quadratique, cubique) et en phase et en amplitude (train d'impulsions complexes ou non). L'efficacité de ce façonneur est de l'ordre de 20 à 40% selon les énergies et la longueur d'onde. Son utilisation pour des expériences de contrôle et de spectroscopie dans l'UV est alors possible.

Cependant, la relation entre son efficacité et la phase programmée le rend délicat à utiliser dans des expériences en boucle fermée. Néanmoins ce défaut peut être compensé en modulant la puissance acoustique, ce qui diminue malheureusement l'efficacité globale. De plus, il existe un couplage spatio-temporel inhérent au processus de façonnage qu'il convient de caractériser en détail. De cette façon son effet pourra être minimisé en l'utilisant dans une bonne configuration [[Krebs 10](#)].

A ce titre, l'application de l'AOPDF n'est pas réservée aux seules expériences de contrôle mais est aussi un outil pour le développement de nouveaux dispositifs de caractérisation comme la cross-corrélation dans le diamant ou la caractérisation spatio-temporelle référencée ou non.

Chapitre 3

Somme de Gauss, interférences et factorisation

La factorisation de grands nombres est un pilier de la cryptographie [Menezes 01, Zémor 00], en particulier pour les échanges de données bancaires et le commerce sur internet. Le cryptage des données est basé sur un algorithme asymétrique, appelé fonction trappe : il s'agit d'une opération simple à exécuter dans un sens mais très complexe dans l'autre. Par exemple, multiplier deux nombres est, quitte à utiliser une calculatrice ;-), à la portée de chacun mais il n'existe pas de manière simple et rapide de retrouver les facteurs d'un nombre N donné. Et plus N est grand, plus cette factorisation est ardue. L'algorithme le plus utilisé aujourd'hui est le Rivest Shamir Adleman (RSA) [Rivest 78] qui utilise actuellement des nombres premiers de 2048 bits, soit un nombre de chiffres de l'ordre de $\log(2^{2048}) \simeq 600$. Récemment, la factorisation d'un nombre de « seulement » 232 chiffres (un RSA de 768 bits) a nécessité à Thorsten Kleinjung [Kleinjung 10] (Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne), l'utilisation intensive de plusieurs centaines de processeurs pendant 2 ans (à titre de comparaison cela aurait nécessité 15000 ans avec une seule machine...). Ainsi toute nouvelle découverte touchant à la factorisation touche en particulier à la sécurité bancaire, elle est alors immédiatement médiatisée. La factorisation est d'ailleurs à la base de l'engouement pour le calcul quantique, en particulier depuis que Shor a démontré en 1994 [Shor 94] qu'un ordinateur quantique pourrait factoriser des grands nombres relativement rapidement comparé aux « milliards » d'années nécessaires à l'algorithmique classique. Malgré cet effervescence, les difficultés expérimentales telle que l'intrication d'états quantiques et les limitations comme le contrôle de la décohérence n'ont jusqu'alors pas permis d'exploiter la puissance de l'algorithme de Shor et seul le nombre 15 a été factorisé jusqu'à présent.

Devant cet engouement, une autre approche de la factorisation basée sur l'interférence d'ondes a été proposée par le groupe du Pr. Wolfgang Schleich [Merkel 06a]. Elle est basée sur les propriétés d'une somme de termes ayant une phase qui évolue quadratiquement avec l'indice. Cette somme, dite de Gauss ^a [Lang 70, Davenport 80] permet la factorisation d'un nombre N , codé dans la phase relative de ses termes, par le jeu d'interférences. Ce

a. Sa définition est donnée dans la section suivante ainsi que la description de ses propriétés

type de somme se retrouve dans de nombreux systèmes en physique comme l'effet Talbot [Talbot 36], la refocalisation de paquet d'ondes, appelée « revival » [Rosca-Pruna 01], etc. Nous montrerons en détail comment de tels systèmes aboutissent à la factorisation.

Notre groupe s'est intéressé à la factorisation suite à nos travaux sur l'effet d'impulsions lasers à dérive de fréquence linéaire^b sur un système atomique [Monmayrant 06a]. Ce type d'interaction, qui présente des similitudes avec les sommes de Gauss, a donné lieu à des propositions théoriques conjointes avec le Pr. Wolfgang Schleich [Merkel 06a, Merkel 06b, Merkel 07]. De nombreux groupes se sont alors intéressés à cette approche classique de la factorisation et plusieurs expériences ont vu le jour. Notre groupe a travaillé sur le façonnage d'impulsions pour la factorisation par les sommes de Gauss [Bigourd 08], expériences au cours desquelles j'ai débuté ma thèse. Mon travail s'est alors focalisé sur les sommes aléatoires et dernièrement sur une autre proposition théorique d'optique non-linéaire. Ces différents aspects seront présentés dans ce chapitre en commençant par une étude théorique détaillée des sommes de Gauss. Nous présenterons ensuite ses différentes mises en œuvres physiques [Clauser 96, Mehring 07, Mahesh 07, Gilowski 08], en particulier par les interférences d'un train d'impulsions femtosecondes laser [Bigourd 08, Weber 08]. Enfin, nous donnerons quelques perspectives à ces travaux.

3.1 La somme de Gauss

De manière générale, une somme de Gauss est une somme d'exponentielles complexes dont la phase varie quadratiquement avec l'ordre. Elle est définie par :

$$S(x) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} w_m \exp\{-2i\pi m^2 x\} \quad (3.1)$$

avec x un argument réel et w_m des coefficients de pondération. Si x est un entier alors chacun des termes a une phase multiple de 2π et s'additionne de manière constructive, S tend alors vers l'infini. Sinon la somme oscille très rapidement avec l'ordre m et tend vers 0. Il est alors possible d'utiliser cette propriété pour trouver les facteurs d'un nombre N en écrivant la somme sous cette forme :

$$\mathcal{A}_N^{(l-1)}(l) = \frac{1}{l} \sum_{m=0}^{l-1} \exp\left\{-2i\pi m^2 \frac{N}{l}\right\} \quad (3.2)$$

où $x = \frac{N}{l}$, l est appelé un *entier-test* et $w_m = \frac{1}{l}$ assure la normalisation. Ainsi si l'entier l est un facteur de N alors N/l est un entier, l'interférence constructive du signal donne un résultat maximal égal à un. Par contre, si l n'est pas un facteur alors $\frac{N}{l}$ n'est pas entier et la phase évolue rapidement donnant des interférences destructives. La somme s'arrête à $l-1$ car elle est périodique. Cependant notre étude ne traite pas de théorie des nombres mais de physique et en particulier de réalisation expérimentale de cette somme. En particulier,

b. Ces impulsions sont communément appelées chirpées et sont produites par ajout d'une phase spectrale quadratique.

il est difficile d'avoir un nombre très élevé de termes dans la somme, il est nécessaire de la tronquer et de la normaliser pour avoir une somme « d'énergie » constante quelque soit le nombre de termes dans la somme. Schleich et al. ont démontré que les propriétés sont globalement conservées en tronquant la somme définie par

$$\mathcal{A}_N^{(M)}(l) = \frac{1}{M+1} \sum_{m=0}^M \exp\left\{-2i\pi m^2 \frac{N}{l}\right\} \quad (3.3)$$

où M correspond à la troncature de la somme qui contient $M+1$ termes.

Cependant contrairement à l'équation 3.2, la troncature donne lieu à une limite dans la taille des nombres à factoriser. La figure 3.1 montre un exemple de factorisation du nombre $N = 11 \times 47 \times 953 = 492\,701$. La valeur absolue de la somme de Gauss est tracée en fonction des *entiers-test* l variant de 2 à 1000 pour différentes troncatures : cas (a) $M = 9$, cas (b) $M = 19$, cas (c) $M = 99$ et cas (d) $M = 999$ soit respectivement 10, 20, 100 et 1000 termes dans la somme. On voit ressortir les trois facteurs de N , en rouge sur la figure : $l = 11$, $l = 47$ et $l = 953$ pour lesquels la somme est égale à 1. On peut noter que l'entier $l = 517 = 11 \times 47$, en rouge également, est le produit de deux facteurs et donne une somme égale à un. Pour les autres l , on a $|\mathcal{A}_N^{(M)}(l)| < 1$.

Pour pouvoir factoriser correctement ce nombre N , il faut alors être capable de discriminer avec certitude les facteurs des non-facteurs, en particulier pour les applications expérimentales qui impliquent ajout de bruit et d'incertitudes à la mesure. On doit donc améliorer le contraste en adaptant la troncature M . En effet, on voit sur la figure 3.1, une augmentation du contraste quand on passe de $M = 9$ à $M = 999$. Pour ce nombre N , il suffirait ici de 20 termes pour discriminer suffisamment les facteurs des non-facteurs. Pour pouvoir évaluer la troncature nécessaire à une factorisation efficace, il faut tout d'abord spécifier un seuil S tel que si l vérifie $|\mathcal{A}_N^{(M)}(l)| > S$ alors l est un facteur de N . On va donc analyser les différents types d'*entiers-test* et définir un seuil « naturel ».

De l'observation de la figure 3.1, on peut définir quatre catégories d'*entiers-test* [Štefanaák 07] :

- (i) Les facteurs avec une valeur constante égale à un de la somme de Gauss.
- (ii) Les non-facteurs, pour lesquels quelques termes dans la somme suffisent à obtenir une norme petite devant 1.
- (iii) Les non-facteurs qui nécessitent une grande troncature. Nous en avons représenté quelques uns en violet sur la figure 3.1. Nous les appellerons les « *fantômes* ».
- (iv) Enfin, les non-facteurs pour qui la norme reste constante égale à un certain seuil. Par exemple en bleu sur la figure 3.1. Nous les appellerons les « *entiers-seuil* ».

La figure 3.2 représente $|\mathcal{A}_N^{(M)}(l)|$ pour $N = 11 \times 47 \times 953 = 492\,701$ en fonction de la troncature M pour différents *entiers-test* illustrant chaque catégorie décrite précédemment. Pour déterminer à quelle catégorie appartient un entier l , il faut calculer le rapport $\Gamma_{N,l} = \frac{2N}{l}$. En effet pour le nombre $N = 492\,701$ illustré figure 3.2 on trouve :

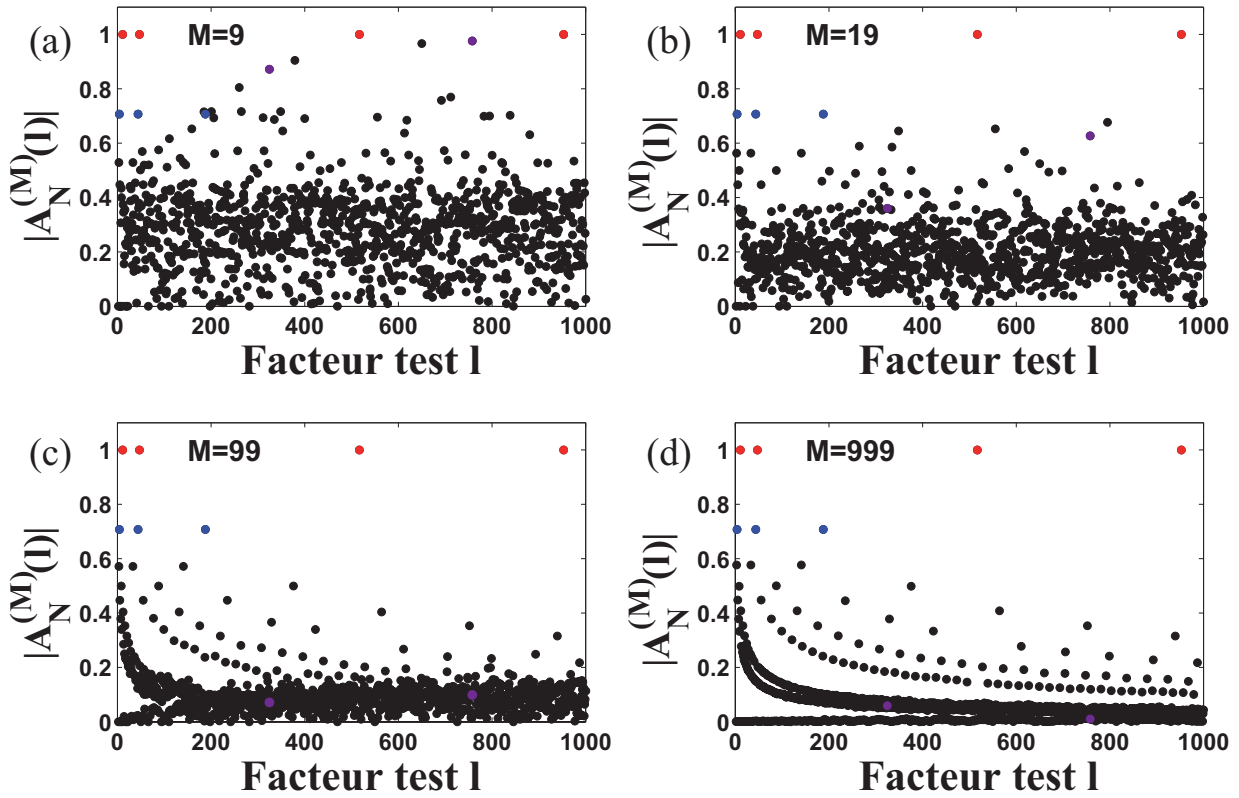


Figure 3.1 – Valeur absolue de la somme de Gauss calculée pour $N = 11 \times 47 \times 953 = 492\,701$ en fonction des *entiers-test* l variant de 2 à 1000. Cas (a) calculé avec $M = 9$, (b) avec $M = 19$, (c) avec $M = 99$ et (d) $M = 999$ soit 10, 20, 100 et 1000 termes respectivement. Les points en rouge correspondent aux facteurs de N : 11, 47, $11 \times 47 = 517$ et 953. Ceux en violet sont des exemples de non-facteurs, dits « *fantômes* » et ceux en bleu sont des non-facteurs, dit « *entiers-seuil* ». Ces dénominations sont définies dans le texte.

- (i) Pour un facteur, $l = 11$, $\Gamma_{N,l}$ est un entier pair ce qui donne une phase de $0[2\pi]$ rad.
- (ii) Pour un non-facteur, $l = 63$, $\Gamma_{N,l}$ est proche d'un entier impair soit une phase proche de $\pi[\pi]$ rad.
- (iii) Pour un *fantôme*, $l = 758$, $\Gamma_{N,l}$ est proche d'un entier pair soit une phase proche de $0[2\pi]$ rad. C'est pourquoi ils sont difficiles à discriminer avec peu de termes dans la somme.
- (iv) Enfin pour un *entier-seuil*, $l = 4$, $\Gamma_{N,l}$ est un demi-entier donnant un seuil égal à $1/\sqrt{2}$. On peut avoir comme cela différents seuils $1/\sqrt{3}$, $1/\sqrt{4}$... Avec $1/\sqrt{2}$ seuil maximal.

On peut donc conclure de cette étude que le seuil naturel de discrimination entre un facteur et un non-facteur est égal à $1/\sqrt{2}$, et que la troncature doit être suffisamment grande pour discriminer les *fantômes* des facteurs. La référence [Štefaňák 07] présente une étude plus approfondie. En particulier, une valeur de la troncature minimale M_0 est extrapolée permettant de factoriser un nombre N en ayant tous les *fantômes* sous le seuil naturel de

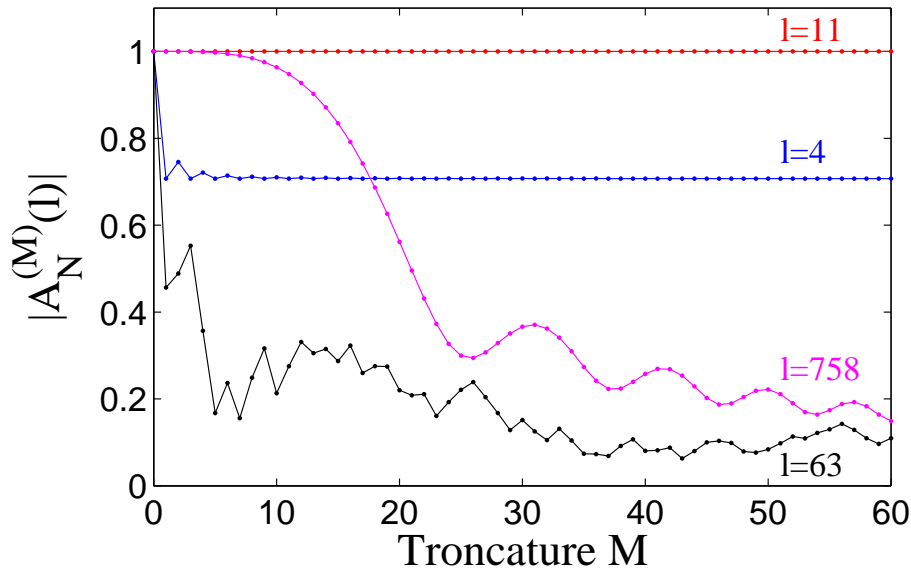


Figure 3.2 – $\left| \mathcal{A}_N^{(M)}(l) \right|$ calculée pour $N = 11 \times 47 \times 953 = 492\,701$ en fonction de la troncature M pour les *entiers-test* $l = 4, 11, 63$ et 758 . Ces entiers illustrent les différents comportements possibles. Pour le facteur $l = 11$, en rouge, la norme de la somme est constante égale à un, il s’agit donc d’un facteur de N . Pour l’*entier-seuil* $l = 4$, en bleu, la norme tend vers un seuil qui ne dépend pas de M , ici $1/\sqrt{2}$. Pour le *fantôme* $l = 758$, en violet, la norme oscille en fonction de M et elle ne devient petite devant un que pour une troncature élevée M . Enfin $l = 63$, en noir, la norme chute très rapidement en fonction de M et devient très vite petite devant un, il s’agit d’un non-facteur typique.

$1/\sqrt{2}$ soit :

$$M_0 \simeq 0.7\sqrt[4]{N} \quad (3.4)$$

Pour notre exemple $N = 492\,701$, la troncature nécessaire à une bonne factorisation est donc $M_0 = 17$ ce qui est cohérent avec la figure 3.1.

3.2 Proposition théorique « idéale »

L’utilisation des sommes de Gauss pour la factorisation expérimentale de nombre nécessite un système physique permettant d’encoder les phases quadratiques de Gauss $\phi_G = 2\pi m^2 \frac{N}{l}$, pour un N donné et pour tous les *entiers-test* l . Différentes propositions théoriques ont vu le jour [Merkel 06a, Merkel 06b, Merkel 07], toutes basées sur la création d’un paquet d’ondes ayant une phase relative égale à ϕ_G . On peut citer, entre autres, la rotation d’une molécule diatomique modélisée par un rotor quantique simple [Merkel 06b], l’excitation par un train d’impulsions d’un système à deux niveaux piloté par un champ externe [Merkel 06a] et l’interaction non-linéaire entre un train d’impulsions et une impulsion à dérive de fréquence. C’est cette dernière proposition que l’on va développer.

Parmi les nombreuses techniques de façonnage existantes à ce jour [Monmayrant 10], il en est une qui est utilisée pour atteindre des domaines de longueur d'onde où il n'existe pas de façonneur. Il s'agit du transfert de phase qui a permis le façonnage d'impulsions dans le moyen infrarouge [Belabas 01, Kaindl 00] et dans l'UV [Hacker 01a, Schriever 06]. Le principe, détaillé dans la section 2.1.1, consiste dans la somme de fréquence d'une impulsion façonnée et d'une impulsion fortement chirpée. Dans ce cas l'amplitude et la phase de l'impulsion chirpée sont quasiment constantes pendant la durée de l'impulsion façonnée. Le champ somme a alors la même amplitude et phase que l'impulsion façonnée mais à la fréquence centrale $2\omega_0$. Cette section reprend cette idée et on se propose de calculer la somme de fréquence entre une impulsion à dérive de fréquence linéaire et un train d'impulsions. Le champ somme consiste alors en un train d'impulsions dont la phase relative évolue quadratiquement. Nous allons décrire le calcul d'un tel champ électrique et discuter des applications possibles à la factorisation, l'idée étant bien sûr de produire une somme de Gauss pour la factorisation expérimentale de nombre.

3.2.1 Calcul du champ somme de fréquence

On considère deux champs électriques^a : un est à dérive de fréquence $E_1(t)$ de phase quadratique $\phi^{(2)}$ et l'autre est un train d'impulsions $E_2(t)$. Ils sont définis dans le domaine temporel par :

$$E_1(t) = E_{01} e^{-\frac{t^2}{4\Delta t_c^2}} e^{-i(\omega_0 t + \alpha t^2)} \quad (3.5a)$$

$$E_2(t) = E_{02} \sum_m w_m e^{-\frac{(t-\tau_m)^2}{4\Delta t_0^2}} e^{-i\omega_0 t} \quad (3.5b)$$

où

$$\Delta t_c = \Delta t_0 \sqrt{1 + \frac{\phi^{(2)^2}}{4\Delta t_0^4}} \quad (3.6)$$

est le temps chirpé et

$$\alpha = \frac{\phi^{(2)}}{2\Delta t_0^4 + \frac{\phi^{(2)^2}}{2}} = \frac{\phi^{(2)}}{2\Delta t_0^2 \Delta t_c^2} \quad (3.7)$$

est le paramètre de chirp. Les amplitudes maximales E_{01} et E_{02} sont données par (voir annexe A.2.4) :

$$E_{01} = \frac{\tilde{E}_{01} e^{i\frac{\theta_c}{2}}}{2\sqrt{\pi}\Delta t_0\Delta t_c} \quad (3.8a)$$

$$E_{02} = \frac{\tilde{E}_{02}}{2\Delta t_0\sqrt{\pi}} \quad (3.8b)$$

a. Par simplicité on considère que les deux champs électriques ont la même pulsation centrale ω_0 et la même largeur spectrale $\Delta\omega$ et donc la même durée limitée par transformée de Fourier, ou juste TF, $\Delta t_0 = \frac{1}{2\Delta\omega}$.

avec \tilde{E}_{0k} , $k = (1, 2)$ l'amplitude maximale de $\tilde{E}_k(\omega)$ et $\theta_c = \arctan\left(-\frac{\phi^{(2)}}{2\Delta t_0^2}\right)$ un déphasage par rapport à l'impulsion TF. Enfin τ_m est le délai entre les impulsions du train et w_m est un coefficient de pondération. Leur mélange non-linéaire (ici une somme de fréquence dans un cristal d'ordre 2) donne un champ somme proportionnel à leur produit (section 2.1.1), sous réserve d'un cristal fin pour négliger le désaccord de vitesse de groupe

$$E_{SFG}(t) \propto E_1(t) \cdot E_2(t) \quad (3.9)$$

où SFG est l'acronyme pour « Sum Frequency Generation ». Le champ spectral de E_{SFG} est donné par sa transformée de Fourier :

$$\tilde{E}_{SFG}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt E_{SFG}(t) e^{i\omega t} \quad (3.10a)$$

$$= E_{01}E_{02} \sum_m w_m \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{-\beta_1 t^2 - \beta_2 (t-\tau_m)^2} e^{i(\omega-2\omega_0)t} \quad (3.10b)$$

où l'on a noté :

$$\beta_1 = \frac{1}{4\Delta t_c^2} + i\alpha \quad (3.11a)$$

$$\beta_2 = \frac{1}{4\Delta t_0^2} \quad (3.11b)$$

En regroupant les termes en t^2 , en t et en sortant les termes constants on obtient l'intégrale d'une gaussienne :

$$\tilde{E}_{SFG}(\omega) = E_{01}E_{02} \sum_m w_m e^{-\beta_2 \tau_m^2} \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{-(\beta_1 + \beta_2)t^2 + it[(\omega-2\omega_0) - 2i\beta_2 \tau_m]} \quad (3.12)$$

qui se calcule^b pour donner :

$$\tilde{E}_{SFG}(\omega) = E_{01}E_{02} \sqrt{\frac{\pi}{\beta_1 + \beta_2}} \sum_m w_m e^{-\beta_2 \tau_m^2} \exp\left\{-\frac{(\omega - 2\omega_0 - 2i\beta_2 \tau_m)^2}{4(\beta_1 + \beta_2)}\right\} \quad (3.13)$$

On obtient donc le champ spectral somme de fréquence. A ce stade, l'expression obtenue ne permet pas de trouver une équivalence simple avec une somme de Gauss cependant il est clair (β_1 étant complexe) que l'on a une phase quadratique. L'expression se simplifie dans le cas d'un chirp important ($\phi^{(2)} \gg \Delta t_0^2$) : on a alors $\Delta t_c \simeq \frac{\phi^{(2)}}{2\Delta t_0}$ et $\Delta t_c \gg \Delta t_0$ et on obtient :

$$\frac{1}{\beta_1 + \beta_2} \simeq 4\Delta t_0^2 \left(1 - 8i \frac{\Delta t_0^2}{\phi^{(2)}}\right) \quad (3.14)$$

$$(3.15)$$

b. $\int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{-a^2 t^2 + bt} = \frac{\sqrt{\pi}}{a} e^{\frac{b^2}{4a^2}}$ [Gradshteyn 80]

soit pour le champ :

$$\begin{aligned} \tilde{E}_{SFG}(\omega) = \tilde{E}_0^{SFG} \exp \left\{ -\frac{(\omega - 2\omega_0)^2}{4\Delta\omega^2} \left(1 - 8i \frac{\Delta t_0^2}{\phi^{(2)}} \right) \right\} \\ \sum_m w_m \exp \left\{ \frac{4\tau_m \Delta t_0 (\omega - 2\omega_0)}{\phi^{(2)} \Delta\omega} \right\} \exp \left\{ i \left((\omega - 2\omega_0) \tau_m - \frac{2\tau_m^2}{\phi^{(2)}} \right) \right\} \end{aligned} \quad (3.16)$$

avec :

$$\tilde{E}_0^{SFG} = E_{01} E_{02} 2\Delta t_0 \sqrt{\pi \left(1 - 8i \frac{\Delta t_0^2}{\phi^{(2)}} \right)} \quad (3.17)$$

L'expression de \tilde{E}_{SFG} bien que complexe permet d'obtenir une somme de Gauss simplement en mesurant le champ spectral à sa fréquence centrale $2\omega_0$ et en notant $\tau_m = m\tau$, $m \in \mathbb{N}$ soit un délai τ entre impulsions dans le train . On obtient :

$$\tilde{E}_{SFG}(2\omega_0) = \tilde{E}_0^{SFG} \sum_{m=0}^M w_m \exp \left\{ -im^2 \frac{2\tau^2}{\phi^{(2)}} \right\} \quad (3.18a)$$

$$\tilde{E}_{SFG}(2\omega_0) = \tilde{E}_0^{SFG} \sum_{m=0}^M w_m \exp \left\{ -2i\pi m^2 \frac{N}{l} \right\} \quad (3.18b)$$

où l'on a identifié $2\pi \frac{N}{l}$ à $\frac{2\tau^2}{\phi^{(2)}}$. Le rapport N/l est donc encodé par le délai entre impulsions et le coefficient de phase quadratique de l'impulsion chirpée.

3.2.2 Possibilités expérimentales

A partir du résultat précédent, une somme de Gauss a été obtenue. Elle dépend de différents paramètres expérimentaux qui vont limiter les possibilités en terme de factorisation d'un nombre N . Rappelons d'abord ce qu'il est « aisé » d'obtenir pour ces différents paramètres. La durée limitée TF d'une impulsion dite « femtoseconde » varie de quelques centaines d'attosecondes à quelques centaines de femtosecondes. La durée FWHM des impulsions dans notre laboratoire est de 50 fs et sera utilisée pour les applications numériques.

Le nombre d'impulsions que l'on peut produire peut être très différent selon l'outil utilisé : si les délais ne sont pas trop grands (quelques centaines de femtosecondes) on peut utiliser un façonneur [Bigourd 08] et ainsi produire une trentaine d'impulsions^c. Par contre dans le cas d'un délai plus grand, il sera plus aisé d'utiliser un interféromètre à ondes multiples de type Fabry-Pérot [Jacquy 03] donnant une dizaine d'impulsions d'amplitude décroissante. La relation entre délai τ et épaisseur de l'interféromètre e est donnée par $\tau = \frac{2e}{c}$ avec c la vitesse de la lumière. Un délai variant de la dizaine de femtoseconde à la nanoseconde donne alors un écart entre miroirs qui varie de la dizaine de microns à la dizaine de centimètres.

c. La section 3.3.2.2 décrit l'obtention d'un tel train.

Enfin la phase quadratique peut être obtenue de différentes manières, soit par la dispersion de matériaux (type verres dopés) ou par l'utilisation d'un étireur à réseaux [Monmayrant 10], on obtient alors typiquement de l'ordre de 1.10^8 fs² dans les compresseurs des chaînes laser CPA « Chirp Pulse Amplification ». La phase quadratique d'un compresseur à réseaux double passage est donnée par [Martinez 87, Walmsley 01] :

$$\phi^{(2)} = -\frac{\lambda^3 D}{\pi c^2 d^2 \cos^3(\theta_d)} \quad (3.19)$$

avec λ la longueur d'onde centrale de l'impulsion, D la distance entre réseaux, $1/d$ le nombre de traits par unités de longueur et θ_d l'angle de diffraction. Rappelons maintenant

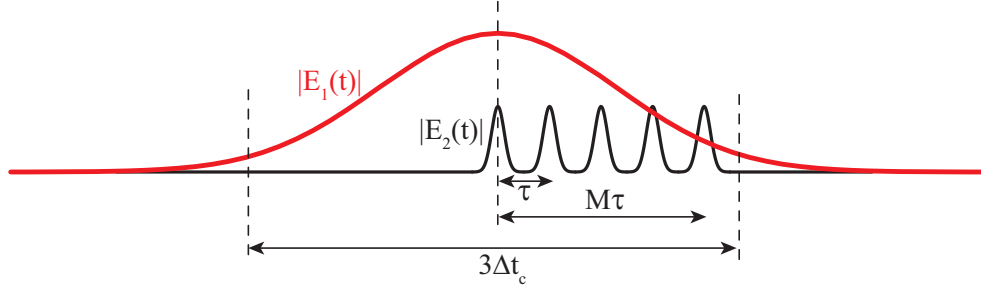


Figure 3.3 – Représentation de l'enveloppe des champs $E_1(t)$ et $E_2(t)$. τ est la durée entre impulsions, $M + 1$ le nombre d'impulsions et Δt_c la durée chirpée RMS, l'amplitude du champ à $3\Delta t_c$ correspond à environ 10% du maximum.

les conditions de validité d'une factorisation complète :

- Le chirp de l'impulsion E_1 doit d'abord vérifier $|\phi^{(2)}| \gg \Delta t_0^2$, ce qui implique $\Delta t_c \simeq \frac{|\phi^{(2)}|}{2\Delta t_0}$.
- Pour avoir un transfert complet du train d'impulsions à la fréquence somme, l'enveloppe E_1 doit recouvrir le train. Cette enveloppe prend des valeurs non-négligeables sur un intervalle de l'ordre de $3\Delta t_c$ soit $3\Delta t_c \geq 2M\tau$ où M représente la troncature de la somme et $M + 1$ est le nombre d'impulsions dans le train. A noter qu'un délai $+m\tau$ et $-m\tau$ donne le même terme de phase dans la somme. Ainsi pour une meilleure interférence, il est nécessaire de décaler le train d'impulsions dans le domaine $t > 0$ ou $t < 0$, d'où le facteur 2. Ces relations sont schématisées sur la figure 3.3.
- On identifie $2\pi \frac{N}{l}$ à $\frac{2\tau^2}{\phi^{(2)}}$
- Pour avoir une factorisation complète, l'entier-test l doit varier entre 1 et \sqrt{N} .

Ces différentes contraintes donnent ces quatre relations :

$$|\phi^{(2)}| \geq \frac{4}{3} \Delta t_0 M \tau \quad (3.20a)$$

$$\frac{N}{l} = \frac{\tau^2}{\pi |\phi^{(2)}|} \quad (3.20b)$$

$$\left(\frac{N}{l}\right)_{min} = \sqrt{N} \quad (3.20c)$$

$$\left(\frac{N}{l}\right)_{max} = N \quad (3.20d)$$

Deux cas de figure peuvent alors être envisagés selon les facilités de mise en œuvre. Dans un premier temps, on considère que la phase quadratique $\phi^{(2)}$ est constante et qu'un délai τ variable permet de faire varier l puis nous verrons le cas opposé.

3.2.3 Chirp constant - délai variable

L'équation 3.20d devient :

$$\frac{\tau_{max}^2}{\pi |\phi^{(2)}|} = N \quad (3.21)$$

dans laquelle on a injecté l'équation 3.20b, on peut alors remplacer $|\phi^{(2)}|$ par $\frac{4}{3} \Delta t_0 M \tau_{max}$ (équation 3.20a) ce qui donne :

$$\frac{3\tau_{max}^2}{4\pi \Delta t_0 M \tau_{max}} = N \quad (3.22)$$

On obtient alors l'expression de τ_{max} qui permet d'exprimer ensuite τ_{min} et $\phi^{(2)}$ en fonction des paramètres du problème :

$$\tau_{min} = \frac{4}{3} \pi \Delta t_0 M N^{3/4} \quad (3.23a)$$

$$\tau_{max} = \frac{4}{3} \pi \Delta t_0 M N \quad (3.23b)$$

$$|\phi^{(2)}| = \frac{16}{9} \pi \Delta t_0^2 M^2 N \quad (3.23c)$$

Pour estimer les valeurs de ces paramètres, la figure 3.4 représente en (a) le chirp $\phi^{(2)}$ (en ps²) en fonction du nombre N à factoriser et en fonction du nombre $M+1$ d'impulsions. Le délai minimal (en ps) entre impulsions est représenté en (b) et en (c) le délai maximal (en ps). Par exemple, pour factoriser un nombre $N = 105$ avec $M+1 = 10$ impulsions il faut une phase quadratique $|\phi^{(2)}| \simeq 21$ ps² et pour avoir l entre 1 et \sqrt{N} le délai doit varier entre $\tau_{min} = 24$ ps et $\tau_{max} = 77$ ps. Ces délais sont facilement réalisables avec un Fabry-Pérot, l'épaisseur nécessaire varie entre 3,6 et 11,5 mm. Cette valeur de $\phi^{(2)}$ peut être obtenue avec un étireur à réseau : à partir de l'équation 3.19, on obtient $\phi^{(2)} = -21$ ps²

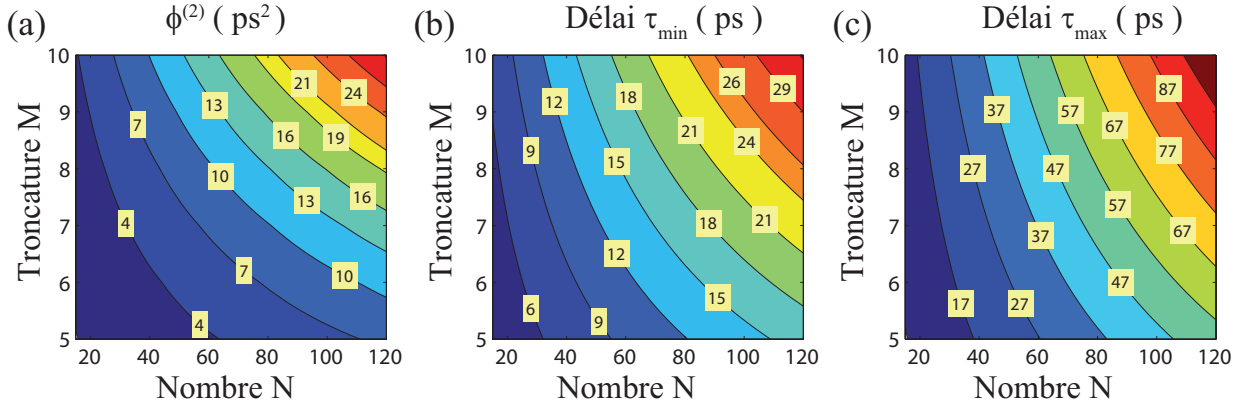


Figure 3.4 – Variations des différents paramètres nécessaires à la factorisation complète d'un nombre N : en (a) le chirp, en (b) le délai minimum et en (c) le délai maximum. Ces grandeurs sont représentées en fonction du nombre N à factoriser et du nombre $M + 1$ d'impulsions dans le train. La durée limitée TF des impulsions utilisées est $\Delta t_{0\ 1/2} = 50$ fs. Les valeurs indiquées dans les carrés sont les valeurs des paramètres sur les différentes courbes.

pour $\lambda = 800$ nm, $D = 1$ m, $d = 1/1200$ mm et $\theta_d = 60^\circ$. En analysant les équations précédentes, on s'aperçoit que les délais varient linéairement avec la durée des impulsions et quadratiquement pour le chirp.

La figure 3.5 présente le résultat, équation 3.18b, de la factorisation de $N = 3 \times 5 \times 7 = 105$ par $M + 1 = 10$ impulsions. Les délais et le chirp utilisés sont ceux donnés par les équations 3.23. La puissance spectrale à la fréquence $2\omega_0$ est tracée : en fonction de τ en (a), des valeurs de l correspondantes (équation 3.20b) en (b) et de même en (c) mais où l'on a sélectionné quelques valeurs de l pour plus de lisibilité. En particulier, le résultat pour les valeurs entières de l , correspondant aux *entiers-test* de la factorisation, sont représentés par un cercle. Les abscisses en (a) et (b) sont agrandies pour faire apparaître clairement le résultat pour un facteur de N , $l = 5$, et deux entiers non-facteurs $l = 4$ et $l = 6$. On voit en (a) que la phase oscille très vite avec le délai τ d'où le grand nombre de pics d'interférence, heureusement seules les valeurs pour l entier nous intéressent, on peut donc se contenter des délais autour de ces valeurs. Cependant la résolution doit être suffisamment bonne pour pouvoir discriminer les pics d'interférences. Ce faisant, on obtient bien $|\tilde{E}_{SFG}(2\omega_0)| = 1$ (spectre normalisé) pour un facteur et $|\tilde{E}_{SFG}(2\omega_0)| < 1$ pour les autres.

Il est intéressant de noter qu'à partir d'une mesure en fonction du délai, on est alors capable de factoriser plusieurs nombres. En effet, la factorisation est possible en déterminant l à partir de τ (équation 3.20b) :

$$l = \frac{\pi\phi^{(2)}N}{\tau^2} \quad (3.24)$$

On peut alors tout à fait calculer les valeurs de l correspondant à un autre nombre N' et obtenir sa factorisation sans aucune autre mesure. Cependant nous avons défini les délais

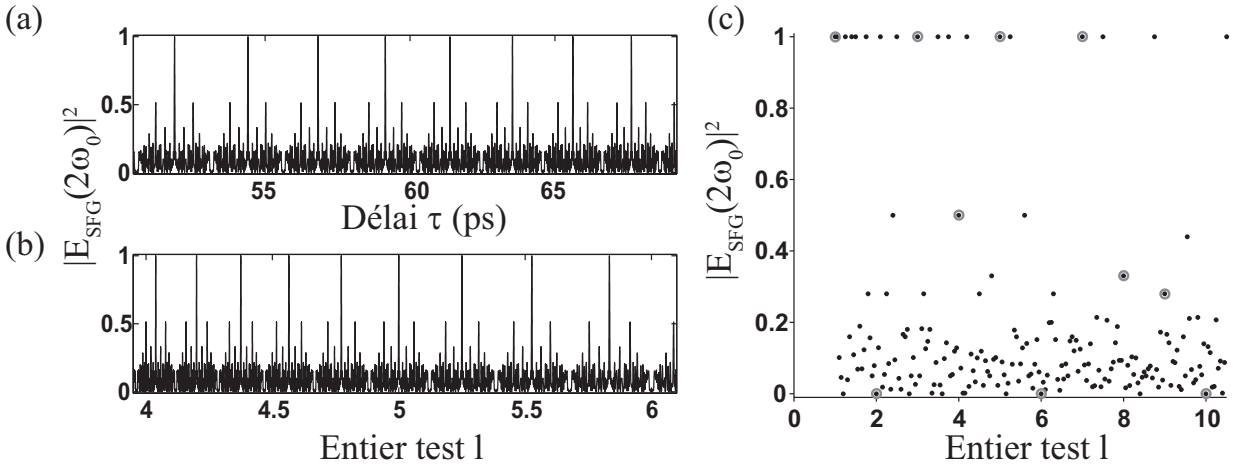


Figure 3.5 – Simulation de la factorisation de $N = 3 \times 5 \times 7 = 105$ par $M + 1 = 10$ impulsions. La puissance spectrale à $2\omega_0$ est tracée en fonction de τ cas (a), $l = \frac{4\pi\phi^{(2)}N}{\tau^2}$ cas (b) et quelques valeurs de l en (c) pour plus de lisibilité. Les résultats pour les valeurs entières de l sont représentés par des cercles.

et le chirp par :

$$\sqrt{N} \leq \frac{2\tau^2}{\phi^{(2)}} \leq N \quad (3.25)$$

On est donc restreint à :

$$\sqrt{N} \leq \frac{N'}{l} \leq N \quad (3.26)$$

soit

$$\frac{N'}{N} \leq l \leq \frac{N'}{\sqrt{N}}. \quad (3.27)$$

Si les facteurs de N' sont compris dans cet intervalle alors ils seront obtenus par cette « multi-factorisation ». On peut bien évidemment faire varier le délai sur une plage beaucoup plus grande de manière à englober tous les entiers tests de différents nombres.

3.2.4 Chirp variable - délai constant

La problématique dans le cas d'un train d'impulsions à délai constant et d'une phase quadratique variable est très similaire au cas précédent. Par le même type de raisonnement, on obtient ces équations :

$$\tau = \frac{4}{3}\pi\Delta t_0 M N \quad (3.28a)$$

$$\phi^{(2)}_{min} = \pm \frac{16}{9}\pi\Delta t_0^2 M^2 N \quad (3.28b)$$

$$\phi^{(2)}_{max} = \pm \frac{16}{9}\pi\Delta t_0^2 M^2 N^{3/2} \quad (3.28c)$$

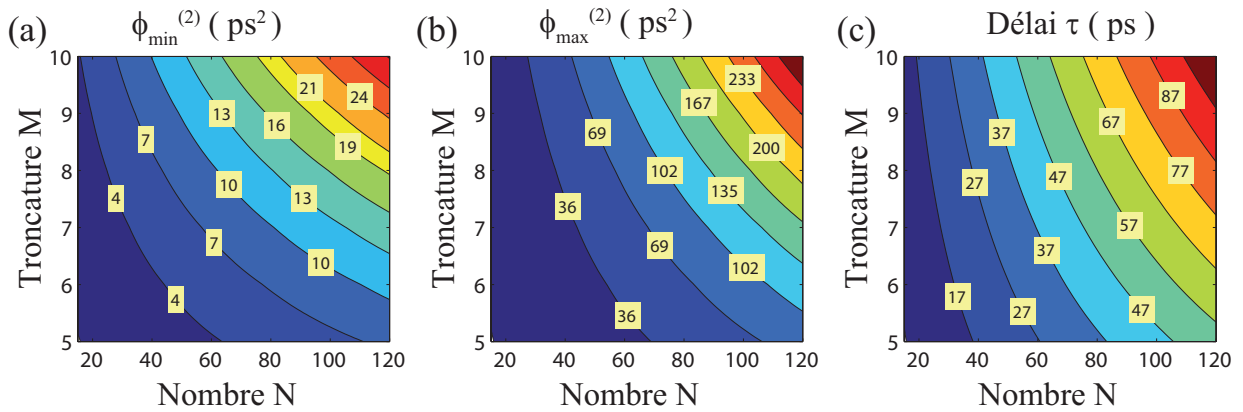


Figure 3.6 – Variations des différents paramètres nécessaires à la factorisation complète d'un nombre N : en (a) le chirp minimum, en (b) le chirp maximum et en (c) le délai. Ces grandeurs sont représentées en fonction du nombre N à factoriser et du nombre $M + 1$ d'impulsions dans le train. La durée limitée TF des impulsions utilisées est $\Delta t_0 \text{ }_{1/2} = 50$ fs.

Le résultat est typiquement le même et est visible sur la figure 3.6, seules les valeurs des paramètres changent. Ainsi, pour le même nombre $N = 105$ et $M + 1 = 10$ impulsions, les valeurs de $\phi^{(2)}$ doivent être comprises dans l'intervalle $[19 - 200]$ ps² et τ doit être de l'ordre de 77 ps. La quantité de phase quadratique nécessaire est beaucoup plus importante. De plus, pour ces valeurs de paramètres, il est expérimentalement plus facile de contrôler précisément le délai que le chirp. C'est pourquoi cette solution paraît plus difficile à mettre en œuvre.

Enfin, on pourrait envisager de faire varier les deux paramètres en même temps. Cependant, le contrôle précis de tous les paramètres rend le dispositif plus lourd et complexe à utiliser.

3.2.5 Bilan

L'expérience correspondant au premier schéma n'a pas encore été mise en place mais devrait l'être dans un futur proche^d. Pour la mise en œuvre, l'impulsion chirpée dans l'étireur de la chaîne laser pourrait être utilisée et le train d'impulsions serait produit par un interféromètre de Fabry-Perrot similaire à celui déjà utilisé dans la référence [Jacquy 03]. Trois points sont à noter :

- L'amplitude décroissante dans le train d'impulsions, due à la réflectivité des miroirs, diminuera le contraste des interférences mais pas de manière significative. En particulier, des simulations ont montré que la discrimination entre facteurs et non-facteurs est toujours très bonne en prenant les données de la référence [Jacquy 03].
- Le nombre d'impulsions n'est pas contrôlable contrairement au modèle présenté. Cependant cela ne nuit pas à la factorisation, au contraire plus il y a d'impulsions meilleur est le résultat.
- Si la valeur du chirp ne peut pas être bien mesurée (une mesure pour ce type de

d. Cette proposition et les calculs correspondant ont été faits durant la rédaction de cette thèse.

valeur est en effet délicat), il est nécessaire de calibrer l'axe des *entiers-test*. Ceci peut être fait en utilisant un nombre N' dont on connaît les facteurs. Partant du postulat que τ est parfaitement connu (par mesure interférométrique par exemple) alors on peut calibrer l'axe des l avec les facteurs de N' ce qui permet au final d'extraire la valeur de $\phi^{(2)}$.

Une expérience similaire, c'est à dire utilisant les mêmes champs, mais excitant une transition à deux photons sans état intermédiaire (voir la section 4.3.1.1) donnera a priori le même type de résultat. On aura alors un système atomique « factoriseur » de nombres.

Toutes les autres propositions théoriques permettent d'obtenir une somme de Gauss ou une variante mais leur difficulté de mise en œuvre n'a pas permis à ce jour de les réaliser expérimentalement. Cependant une première étape a été franchie par différents groupes^e. On peut en effet séparer le calcul des phases de Gauss, de l'obtention de la somme quadratique. Il s'est avéré qu'il est plutôt facile de trouver un système codant une telle somme que d'obtenir ces phases. Elles ont donc été calculées « à la main », programmées dans le système physique adéquat produisant un signal proportionnel à la somme de Gauss. Ce procédé, incomplet, permet néanmoins de se convaincre de la force des sommes de Gauss pour la factorisation.

3.3 Expériences de démonstration

3.3.1 Ce qui a été fait !

La proposition théorique que l'on vient de voir n'ayant pas encore donné de résultats expérimentaux, je me contenterai ici de décrire les résultats existants à ce jour. Ils présentent tous la même logique de mise en œuvre et, comme on le verra, ne permettent pas la factorisation directe car les systèmes physiques considérés n'encodent pas directement la phase de Gauss. Ce point sera l'intérêt majeur de la proposition précédente. Cependant par leurs différences, ils démontrent l'intérêt de la communauté pour cette technique et la grande versatilité des sommes de Gauss.

A ce jour, quatre types d'expériences utilisant la somme de Gauss tronquée (eq. 3.40) ont été réalisées dans quatre domaines différents de la physique. Elles ont été effectuées en Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) [Mehring 07, Mahesh 07, Peng 08], avec des atomes froids [Gilowski 08], des condensats de Bose-Einstein [Sadgrove 08] et enfin avec des trains d'impulsions femtosecondes mises en forme [Bigourd 08, Weber 08]. Elles sont toutes basées sur les interférences d'ondes ou paquet d'ondes pour obtenir la factorisation. Leur mise en œuvre nécessite cependant un calcul préalable de chaque phase de Gauss avant de l'encoder dans chaque onde, ce qui ne permet pas la factorisation d'un nombre dont on ne connaît pas a priori les facteurs. Ces expériences démontrent néanmoins la faisabilité d'une telle factorisation et ont montré la possibilité d'encoder une somme de Gauss dans :

e. Ces groupes et leurs expériences sont détaillées dans la section 3.3.1.

Domaine	Réf	Système	Observable	M_0	Digits	Principaux résultats
RMN	[Mehring 07]	Spin $\frac{1}{2}$	Rotation	11	6	Première mise en œuvre, nécessité de mesurer tous les termes de la somme
	[Mahesh 07]		de	15	8	Deux autres mises en œuvre
	[Peng 08]		spin	19	13	Factorisation avec sommes aléatoires et généralisées (n=5)
Atomes froids	[Gilowski 08]	2 niveaux hyperfins	Population	15	6	Nombreuses mesures mais système adapté au calcul quantique
BEC	[Sadgrove 08]	Condensat de Rubidium	Figure de diffraction	10	5	Diffraction d'un condensat sur une onde stationnaire. Meilleur contraste par mesure directe de $ \mathcal{A}_N^{(M)}(l) ^{2n}$
Femto-seconde	[Bigourd 08]	Façonneur	Spectre	9	9	Façonnage d'impulsions femto-seconde, influence de M_0 sur un <i>fantôme</i>
	[Weber 08]			30	13	Description de la somme aléatoire, implication sur les <i>fantômes</i> et loi d'échelle de M

Table 3.1 – Tableau récapitulatif des différentes mises en œuvres expérimentales de la somme de Gauss. La première colonne décrit le domaine physique des expériences, la deuxième, les références associées, la troisième et quatrième indiquent sur quel système porte l'expérience ainsi que l'observable mesurée. M_0 est la troncature maximum utilisée et Digits est le nombre de chiffres du nombre N factorisé. Enfin la dernière colonne indique les principaux résultats. BEC est l'acronyme de « Bose-Einstein condensate ».

- L'évolution d'un ensemble de spins nucléaires [Mehring 07, Mahesh 07, Peng 08] soumis à un train d'onde radio-fréquence dont la phase relative est programmée égale à $2\pi m^2 \frac{N}{T}$. La mesure de l'écho de spin après chaque impulsion permet d'obtenir l'un après l'autre les termes de la somme de Gauss. Il ne reste alors plus qu'à les sommer pour avoir la somme globale.
- L'évolution d'un ensemble de système à deux niveaux, représenté par deux niveaux hyperfins d'atomes de Rubidium refroidis et piégés dans un piège magnéto-optique [Gilowski 08]. Ce système est manipulé via une transition Raman de contrôle à deux photons. La phase est alors encodée dans un train de m impulsions de contrôle. La mesure de différence de population entre les deux états à la fin de ce train donne accès au terme d'ordre m de la partie réelle de la somme de Gauss $\cos(2\pi m^2 \frac{N}{T})$. En recommençant l'expérience avec un nombre croissant d'impulsions dans le train, tous les termes de la somme sont reconstruits, leur somme donnant le résultat final

$$\mathcal{R}e \left(\mathcal{A}_N^{(M)}(l) \right).$$

- La figure de diffraction d'un condensat de Bose Einstein d'atomes de Rubidium [Sadgrove 08]. Ce condensat est diffracté par une onde optique stationnaire formant un réseau de diffraction pour l'onde d'atomes. La phase du réseau peut être changée très rapidement comparée à la vitesse de déplacement du condensat. Ainsi le condensat est diffracté par plusieurs réseaux de phase pendant son expansion, il y a multi-diffraction de l'onde atomique. La diffraction globale sera nulle en moyenne si les phases appliquées, et donc les réseaux de diffraction, ne présentent pas de cohérence entre eux, dans le cas contraire il y aura diffraction. Ils montrent que l'énergie dans les différents ordres n de diffraction est proportionnelle à $\left| \mathcal{A}_N^{(M)}(l) \right|^{2n}$.
- Le spectre d'un train d'impulsions femtosecondes [Bigourd 08, Weber 08]. A partir d'une impulsion d'entrée, un façonneur haute résolution [Monmayrant 04] permet de produire un train d'impulsions dont la phase relative peut être programmée. Il suffit alors d'y encoder les phases $2\pi m^2 \frac{N}{l}$. L'interférence de ces ondes donne un spectre cannelé, dont l'amplitude à la fréquence centrale reconstruit directement $\left| \mathcal{A}_N^{(M)}(l) \right|^2$. Cette expérience ainsi que le façonnage du train d'impulsions sont détaillés dans les sections 3.3.2 et 3.3.2.2.

Toutes ces expériences ont deux points communs outre la factorisation : tout d'abord, elles nécessitent un calcul préalable de toutes les phases de la somme de Gauss, comme je l'ai mentionné au départ. Il ne s'agit aucunement d'une factorisation complète, pour le moment, mais juste d'expériences de principe démontrant avec élégance et efficacité la capacité des sommes de Gauss à trouver les facteurs d'un nombre. D'autre part, la factorisation n'est pas toujours immédiate. Dans certaines expériences, il faut plusieurs mesures à sommer avant d'obtenir la somme de Gauss. Dans tout les cas, le résultat de l'expérience n'est valable que pour un unique *entier-test* l . Ainsi même dans le cas favorable d'une mesure par valeur de l , l'expérience doit être renouvelée \sqrt{N} fois. Le tableau 3.1 donne quelques paramètres clés de ces expériences et permet ainsi leur comparaison, comme par exemple la valeur de la troncature et les nombres factorisés.

3.3.2 Champ électrique, effet Talbot et somme de Gauss

3.3.2.1 Présentation de notre expérience

Pour mettre en œuvre la somme de Gauss, nous avons cherché à reproduire l'effet Talbot [Talbot 36], connu spatialement, dans le domaine temporel. L'effet Talbot spatial est lié à la nature discrète d'un réseau transformant l'intégrale d'une phase quadratique de la diffraction de Fresnel en une somme. Cet effet a d'ailleurs été utilisé pour factoriser des nombres [Clauser 96], en codant N dans le nombre de fentes du réseau. Pour l'effet Talbot temporel, nous considérons une séquence de $M + 1$ impulsions, répliques d'une impulsion E_0 et ayant une phase relative θ_m . Le champ électrique correspondant s'écrit ainsi :

$$E(t) = \sum_{m=0}^M w_m E_0(t - \tau_m) e^{i\theta_m} \quad (3.29)$$

où τ_m est le délai entre impulsions. Le poids relatif de chaque impulsion w_m permet de garder l'énergie du train finie. Ce train d'impulsions, pouvant être vu comme un paquet d'ondes, a un spectre formé par les interférences de chaque impulsion. L'interférogramme est donné par la TF de $E(t)$:

$$\begin{aligned}\tilde{E}(\omega) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega E(t) e^{-i\omega t} \\ &= \sum_{m=0}^M w_m \tilde{E}_0(\omega) \exp\{i[\theta_m + (\omega - \omega_0)\tau_m]\}\end{aligned}\quad (3.30)$$

avec $\tilde{E}_0(\omega)$ le champ spectral de l'impulsions de référence $E_0(t)$, ω_0 la pulsation centrale de l'impulsion de référence. En posant $\theta_m = -2\pi m^2 N/l$, $\tau_m = mT$ avec T délai réglable et $w_m = \frac{1}{M+1}$ la somme de Gauss s'identifie au champ électrique spectral qui s'écrit :

$$\tilde{E}(\omega) = \frac{\tilde{E}_0(\omega)}{M+1} \sum_{m=0}^M \exp\left\{-2i\pi m^2 \frac{N}{l} + imT(\omega - \omega_0)\right\}\quad (3.31)$$

On obtient donc l'identité

$$\mathcal{A}_N^{(M)}(l) \equiv \frac{\tilde{E}(\omega_0)}{\tilde{E}_0(\omega_0)}\quad (3.32)$$

Pour factoriser un nombre, la norme de la somme est suffisante. Nous ne sommes donc pas obligés de mesurer le champ électrique mais uniquement son amplitude. Une façon simple de l'obtenir est de mesurer la puissance spectrale (spectre) normalisée à la fréquence centrale ω_0 ce qu'un spectromètre fait aisément.

Le dispositif expérimental est ainsi composé d'un façonneur et d'un spectromètre mesurant le spectre, en particulier à la fréquence ω_0 . On obtient ainsi $\left|\mathcal{A}_N^{(M)}(l)\right|^2$, ce qui implique, du fait de l'exposant deux, une augmentation du contraste entre facteurs et non-facteurs et un déplacement du seuil naturel à $1/2$. L'expérience est répétée en scannant l'*entier-test* l dans l'intervalle $[1 - \sqrt{N}]$. Pour tester la validité de la méthode, deux « petits » nombres ont d'abord été factorisés avant d'appliquer la méthode à des nombres beaucoup plus grands. Enfin et pour limiter les *fantômes*, une nouvelle méthode dite « aléatoire » a été développée pour factoriser des nombres au delà de la limite donnée par l'équation 3.4. Mais avant cela, nous allons voir quelles sont les limites, en terme de façonnage pour la factorisation, de notre dispositif expérimental.

3.3.2.2 Difficulté expérimentale

Comme on l'a vu dans la partie 3.1, la troncature de la somme fait apparaître des *fantômes*, il est donc nécessaire d'avoir une troncature la plus élevée possible si on veut pouvoir factoriser des nombres très grands, il faut donc un grand nombre d'impulsions dans

le train. Une partie de mon travail de thèse a été l'utilisation de notre façonneur haute résolution [Monmayrant 04] et en particulier de tester ses limites. Pour cela nous avons étudié plusieurs types de façonnage dont des phases quadratiques et des trains d'impulsions. Les phases quadratiques verront leur utilité dans la partie 4.2.3 avec l'étude des transitoires cohérents.

Comme on l'a vu au paragraphe 3.3.2, le champ électrique associé à un train d'impulsions s'écrit dans le domaine spectral :

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}_0(\omega) \sum_{m=0}^M w_m \exp\{i[\theta_m + (\omega - \omega_0)\tau_m]\} \quad (3.33)$$

ce qui fait apparaître la fonction de transfert du train :

$$H(\omega) = \sum_{m=0}^M w_m \exp\{i[\theta_m + (\omega - \omega_0)\tau_m]\} \quad (3.34)$$

que nous avons programmé dans notre façonneur infrarouge (voir la section 1.3.2). Son étude théorique a été faite en détail dans la thèse d'Antoine Monmayrant [Monmayrant 05a] et nous rappelons ici quelques caractéristiques nécessaires à la discussion.

- Le couplage spatio-temporel est dépendant de la taille du faisceau et des caractéristiques de la ligne 4f. Il fait apparaître une fenêtre temporelle gaussienne limitant les possibilités de mise en forme. Avec une taille de faisceau de 2 mm, nous obtenons une fenêtre d'environ 20 ps. Les impulsions ayant une durée FWHM de 50 fs, il faut un délai de l'ordre de 200 fs pour bien les séparer. La fenêtre temporelle de 20 ps autorise donc théoriquement une centaine d'impulsions.
- La pixellisation du masque à cristaux liquides introduit deux défauts majeurs : le premier est l'existence de répliques dues à la périodicité du masque. Heureusement ces répliques sont espacées d'environ 35 ps bien au-delà de la fenêtre temporelle. L'autre défaut est l'absence de mise en forme dans les interstices, espace séparant les pixels, ce qui donne une réplique non-mise en forme présente à $t=0$. Son énergie est faible devant l'impulsion d'entrée, cependant quand le façonnage devient trop important, par exemple pour une impulsion fortement étirée ou un train avec beaucoup d'impulsions, alors elle n'est plus négligeable et devra être corrigée.

La figure 3.7(a) illustre la fenêtre gaussienne due au couplage spatio-temporel. Elle représente la crosscorrélation entre une impulsion mise en forme par le façonneur et une impulsion courte (50 fs) de référence, dans un cristal de Beta-Borate de Baryum (BBO) de 500 μm . L'impulsion entrant dans le façonneur est retardée d'un délai $\tau = kT$, avec $k \in \mathbb{Z}$ et $T = 3 ps$, on mesure la cross-corrélation, et on recommence en incrémentant k . La fonction de transfert programmée s'écrit donc $H_k(\omega) = \exp\{i(\omega - \omega_0)kT\}$. Les impulsions aux délais les plus importants voient leur amplitude diminuée et le maximum de chaque impulsion décrit une gaussienne.

En ne programmant que quelques impulsions dans le train, il est facile de rester dans la zone centrale de la gaussienne où l'amplitude est presque constante. Cependant dès que le délai est plus grand que quelques picosecondes, il est nécessaire de compenser l'effet

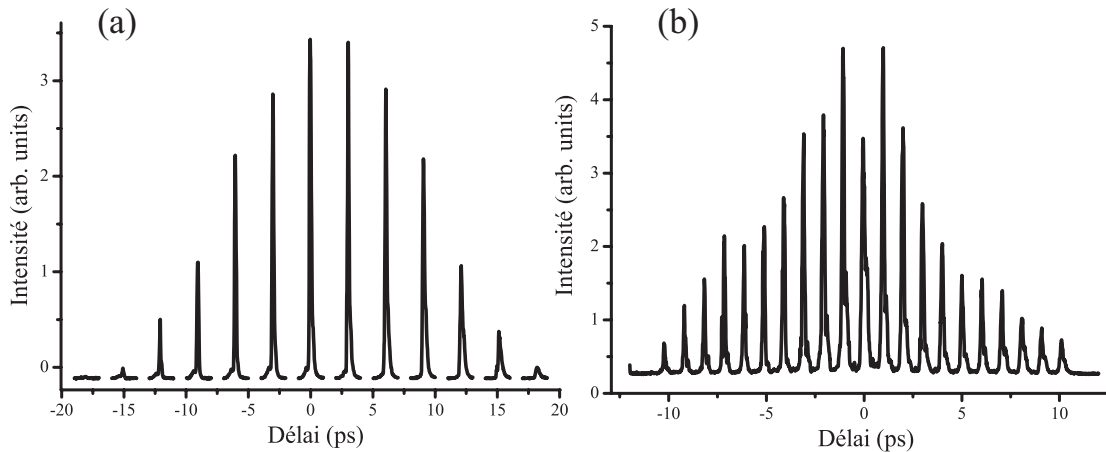


Figure 3.7 – Crosscorrélation entre l’impulsion mise en forme du façonneur et une impulsion courte (50 fs) de référence dans un cristal de BBO de $500\ \mu\text{m}$. (a) Un délai croissant a été appliqué par le façonneur pour mettre en évidence la fenêtre gaussienne due au couplage spatio-temporel. Le diamètre du faisceau d’entrée est ici de 2.4 mm ce qui correspond à une enveloppe gaussienne de 20 ps . (b) La mise en forme consiste en 21 impulsions espacées de 1 ps . L’amplitude programmée sur chaque impulsion est constante, l’enveloppe gaussienne est donc due au couplage spatio-temporel.

du couplage spatio-temporel par une modulation d’amplitude. Cette modulation résulte en une diminution globale de l’énergie. La somme de Gauss (équation 3.40), utilise des coefficients de pondération constants (w_m), ce qui permet d’avoir un meilleur contraste d’interférence, cependant celui-ci reste bon si la variation de w_m avec m n’est pas trop importante. On peut alors programmer un train d’impulsions plus long et se contenter de l’enveloppe gaussienne. Il est préférable d’avoir plus d’impulsions dans le train avec des coefficients non-constants que l’inverse.

La figure 3.7(b) représente le même type de cross-corrélation que précédemment. Un train de 21 impulsions séparées de 1 ps a été programmé. On retrouve encore une fois une enveloppe gaussienne. La seule différence est ici une amplitude plus petite pour l’impulsion à délai zéro qui est due à la présence de l’impulsion « intersticielle ». En effet, sans correction de notre part, cette impulsion aurait une énergie bien plus importante que ces voisines. Pour corriger cela, on programme deux impulsions au délai zéro : une « normale » faisant partie du train et l’autre dite « corrective » qui, déphasée de π , va interférer destructivement avec l’impulsion des interstices. La difficulté réside dans le choix de l’amplitude pour l’impulsion corrective. Dans le cas des 21 impulsions, l’amplitude de correction était un peu élevée (l’amplitude de l’impulsion centrale est inférieure à ses voisines) mais néanmoins adéquate pour avoir une amplitude d’impulsions quasi constante autour du délai zéro. On peut donc déjà utiliser $M + 1 = 21$ termes dans la somme de Gauss et factoriser des nombres de $4 \log M/0,7 \simeq 13$ chiffres (équation 3.4).

Pour tester les limites du façonneur, nous sommes allés jusqu’à programmer 31 impulsions comme le montre la figure 3.8(a). Le même type de crosscorrélation nous a permis

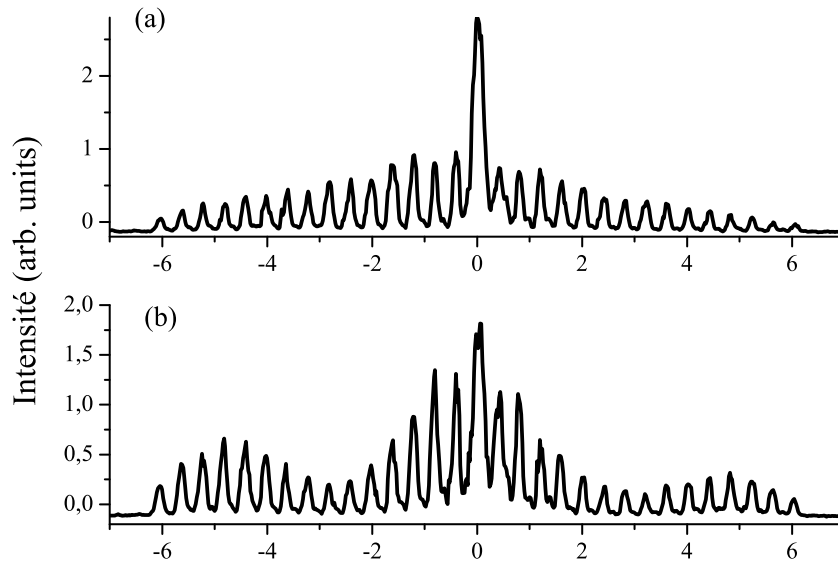


Figure 3.8 – Cross-corrélation entre l’impulsion mise en forme du façonneur et une impulsion courte (50 fs) de référence dans un cristal de BBO de 500 microns. La mise en forme consiste en 31 impulsions espacées de 400 fs. L’amplitude programmée sur chaque impulsion est constante. Une impulsion corrective est aussi programmée au délai nul avec une phase opposée afin de corriger l’impulsion intersticielle du façonneur. En (a) l’amplitude de cette impulsion vaut $\alpha_c = 0,029$, la correction n’est pas optimale mais on obtient un train bien défini alors qu’en (b) une amplitude de $\alpha_c = 0,025$ ce qui suffit à ajouter une enveloppe sinusoïdale au train.

de caractériser le train d’impulsions espacées de 400 fs. On retrouve bien la gaussienne du couplage spatio-temporel^a mais l’effet de l’impulsion intersticielle est encore plus prononcé et compliqué à corriger. En effet pour une amplitude corrective $\alpha_c = 0,025$ (au lieu de $\alpha_c = 0,029$ pour le cas (a) et $\alpha_m = 0,01$ pour les impulsions du train), nous obtenons sur la figure 3.8(b) un train d’impulsions ayant une enveloppe de forme sinusoïdale. Cette figure prouve, sans pour autant l’expliquer malheureusement, que la mise en forme programmée n’est pas toujours fidèlement reproduite et que l’on doit bien faire attention de travailler dans les limites de fonctionnement du façonneur.

En effet, la figure 3.9 simule le même train de 31 impulsions et de même amplitude en prenant en compte le couplage spatio-temporel : une fenêtre de 20 ps en haut et 8 ps en bas correspondant respectivement à un diamètre de faisceau incident de 2 mm et 0,5 mm. La pixellisation est aussi prise en compte mais les répliques sont en dehors de la fenêtre. En (a), il n’y a pas d’impulsion corrective des interstices, en (b) $\alpha_c = 0,025$ et en (c) $\alpha_c = 0,029$. Si la fenêtre temporelle correspond à l’expérience, en revanche la simulation

a. La fenêtre est plus petite car le diamètre a été adapté pour obtenir le meilleur train.

n'explique pas l'enveloppe sinusoïdale. Il est donc possible qu'un effet supplémentaire ne soit pas pris en compte, par exemple une phase « aléatoire » dans les interstices ou un léger désalignement des deux masques.

Cet effet peut aussi provenir du choix de la tension à appliquer au masque. En effet, la calibration de la phase en fonction de la tension appliquée fait apparaître plusieurs tensions possibles pour une même phase [Monmayrant 10]. Ainsi lors de la variation brusque de la phase, nécessaire à la production des 30 impulsions, il peut y avoir des tensions très différentes entre deux pixels adjacents. Cette différence, non prise en compte dans les simulations, pourrait alors empêcher une mise en forme « propre ». Dans tous les cas, il faut toujours s'assurer que la mise en forme est en adéquation avec celle programmée, spécialement quand on travaille près des limites du façonneur.

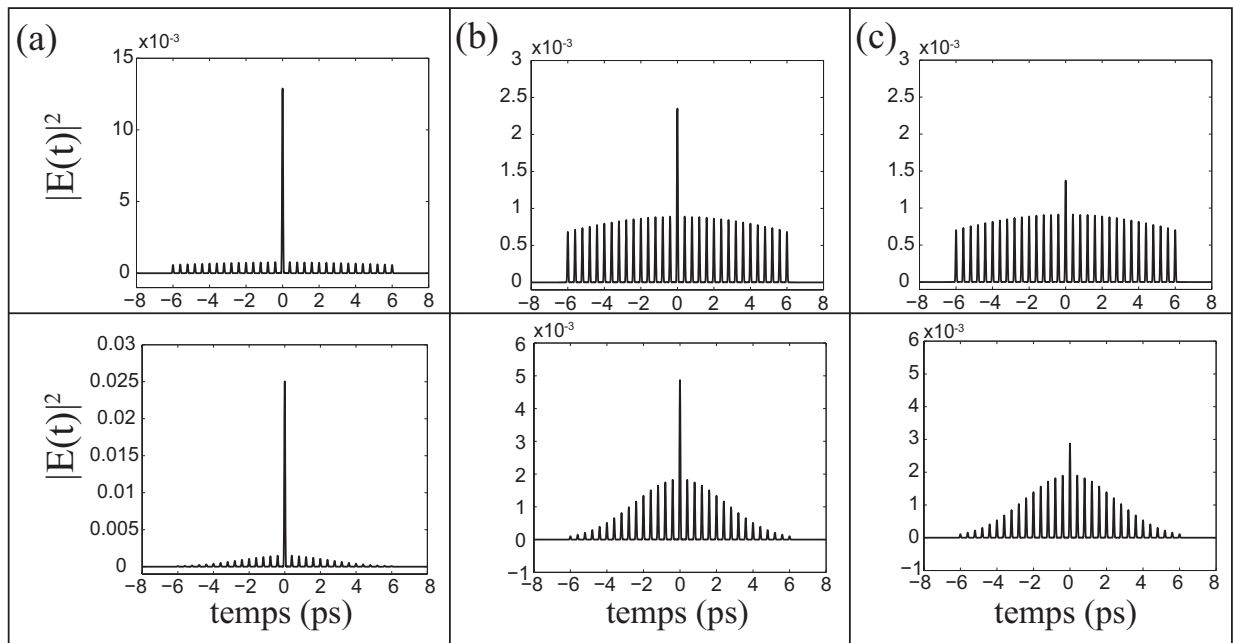


Figure 3.9 – Intensité temporelle simulée en fonction du temps pour différents diamètres de faisceau et différentes amplitudes correctives des interstices. Un train de 31 impulsions espacées de 400 fs est programmé sans correction en (a), $\alpha_c = 0,025$ en (b) et $\alpha_c = 0,029$ en (c). Le diamètre du faisceau incident est de 2 mm (en haut) et de 0,5 mm (en bas). La fenêtre temporelle correspondante est respectivement de 20 ps et 8 ps.

3.3.3 Première mise en œuvre

La figure 3.10 illustre la mise en forme d'un train de quatre impulsions espacées de 200 fs dont la phase relative est encodée pour tester si $l = 3$ cas (a) ou $l = 9$ cas (b) sont des facteurs de $N = 3 \times 5 \times 7 = 105$. Le spectre correspondant à $l = 3$ est tracé en (a) en fonction de la longueur d'onde, on obtient une interférence constructive à la fréquence centrale (trait vertical, longueur d'onde λ_0) donnant une amplitude maximale égale à un. Les spectres ont été normalisés par rapport à la transmission minimale et maximale du

façonneur. Dans le cas (b) le non-facteur $l = 9$ a été testé, le spectre présente une interférence destructive à λ_0 .

La mesure des spectres pour l variant de 1 à \sqrt{N} permet de tracer $\left| \mathcal{A}_N^{(M)}(l) \right|^2$ en fonction

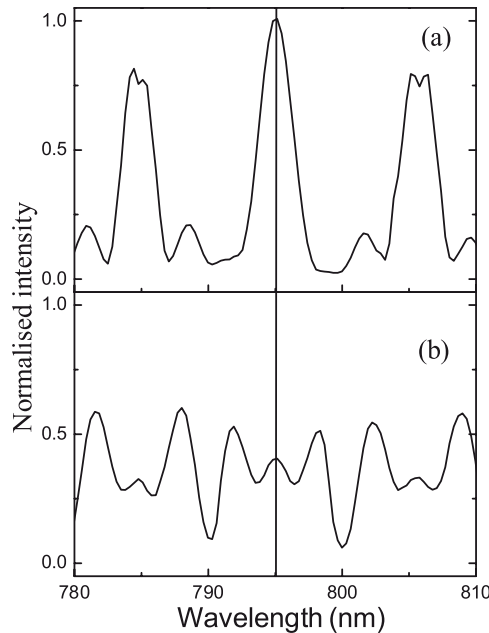


Figure 3.10 – Spectres d’un train de quatre impulsions mesurés en fonction de la longueur d’onde, résultat de la factorisation de $N = 3 \times 5 \times 7 = 105$. Cas (a) : test du facteur $l = 3$, le spectre présente une interférence constructive à la longueur d’onde centrale λ_0 , trait vertical, l’intensité est maximale égale à un à cette longueur d’onde. Cas (b) : test du non-facteur $l = 9$, une interférence destructive donne une intensité de l’ordre de $0.4 \ll 1$. Les intensités spectrales sont normalisées par rapport à la transmission minimale et maximale du façonneur.

de l . La figure 3.11 montre le résultat pour : cas (a) $N = 105$ avec $M + 1 = 4$ impulsions et cas (b) $N = 15\,251 = 101 \times 151$ avec $M + 1 = 9$ impulsions. Les données expérimentales sont indiquées par des points noirs. Elles sont comparées à la valeur théorique (croix) de $\left| \mathcal{A}_N^{(M)} \right|^2$. On obtient un très bon accord entre les deux, en particulier la discrimination entre facteurs et non-facteurs se fait très clairement même si le seuil de $1/2$ n’est pas toujours atteint. Le contraste un peu moins élevé pour l’expérience peut s’expliquer par les limites du façonneur en particulier une amplitude non constante des impulsions. Ces deux exemples avec des facteurs proches et éloignés montrent la validité de la méthode.

Pour illustrer le phénomène des *fantômes*, en particulier vérifier si la troncature est bien adaptée, nous avons choisi de factoriser un nombre du type $N = p(p + 2)$ avec $p \in \mathbb{N}$. Ce type de nombre est particulièrement adapté pour visualiser les *fantômes*. En effet, en

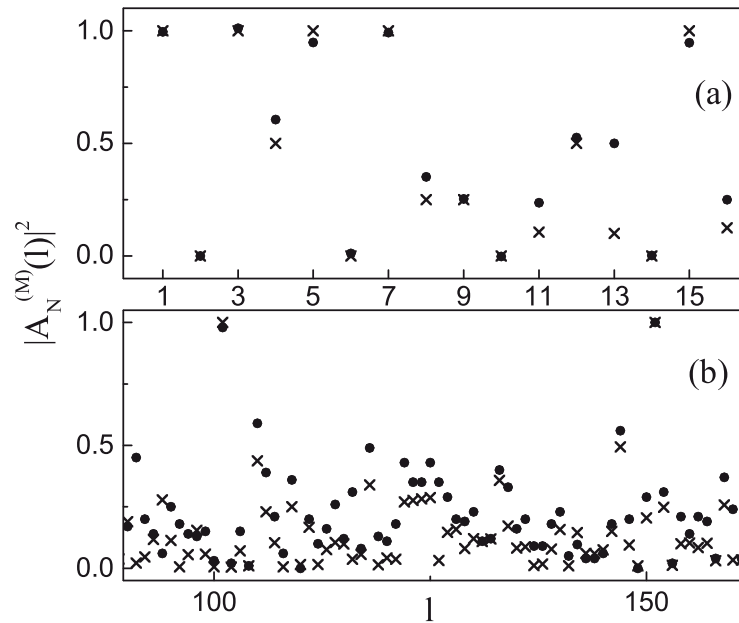


Figure 3.11 – Résultats expérimentaux de la factorisation utilisant des trains d'impulsions. La somme de Gauss $|\mathcal{A}_N^{(M)}|^2$ est tracée en fonction des *entiers-test* l . (a) Factorisation de $N = 3 \times 5 \times 7 = 105$ avec $M + 1 = 4$ impulsions. (b) Factorisation de $N = 101 \times 151 = 15\,251$ avec $M + 1 = 9$ impulsions. Les données expérimentales sont représentées par les points et la théorie par des croix.

notant que $p(p+2) = (p+1)^2 - 1$, la somme de Gauss s'écrit pour $l = p+1$:

$$\begin{aligned} \mathcal{A}_{p(p+2)}^{(M)}(p+1) &= \frac{1}{M+1} \sum_{m=0}^M e^{-2i\pi m^2(p+1)} e^{2i\pi \frac{m^2}{p+1}} \\ \mathcal{A}_{p(p+2)}^{(M)}(\epsilon) &= \frac{1}{M+1} \sum_{m=0}^M e^{2i\pi m^2 \epsilon} \end{aligned} \quad (3.35)$$

avec $\epsilon = \frac{1}{(p+1)} \ll 1$. La somme de Gauss évolue donc lentement et on obtient le même type de courbe que pour $l = 758$ dans la figure 3.2. En fait, sous réserve que $\sqrt{N} \simeq p+1 \gg M^2$ on peut approximer la somme discrète de Gauss par une intégrale de Fresnel complexe $F(x) = \int_0^x du \exp\left\{i\frac{\pi u^2}{2}\right\}$:

$$\mathcal{A}^{(M)}(\epsilon) \simeq \frac{1}{M} \int_0^M dm e^{2i\pi m^2 \epsilon} \quad (3.36)$$

soit en faisant le changement de variable $u = 2\sqrt{\epsilon}m$

$$\mathcal{A}^{(M)}(\epsilon) \simeq \frac{1}{2\sqrt{\epsilon}M} \int_0^{2\sqrt{\epsilon}M} du \exp\left\{i\frac{\pi u^2}{2}\right\} \quad (3.37)$$

$$\simeq \frac{F(2\sqrt{\epsilon}M)}{2\sqrt{\epsilon}M} \quad (3.38)$$

ce qui permet d'obtenir l'équation 3.4 : $M \simeq 0,7\sqrt[4]{N}$ en cherchant la valeur de M telle que $|\mathcal{A}^{(M)}(\epsilon)|^2 \leq 1/2$.

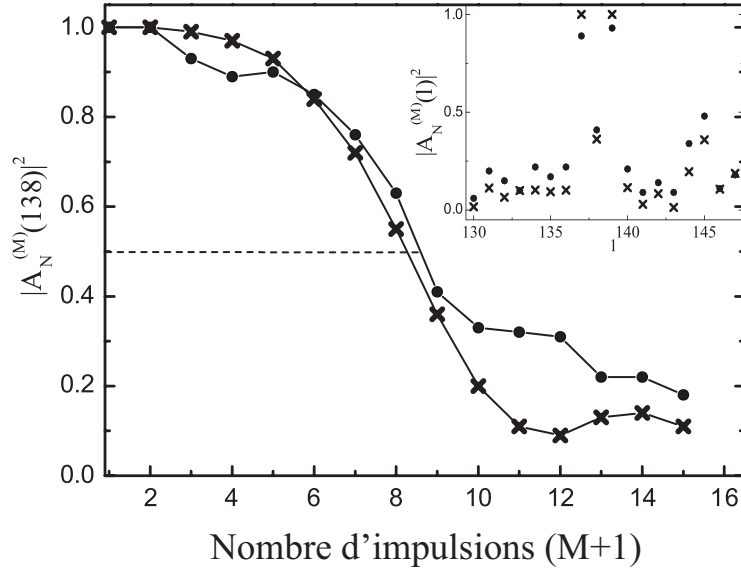


Figure 3.12 – Évolution de $|\mathcal{A}_N^{(M)}(l)|^2$ pour le *fantôme* $l = 138$ ($N = 19\,043 = 137 \times 139$) en fonction du nombre d'impulsions $M + 1$ dans le train. Les résultats expérimentaux sont représentés par des points et la théorie par des croix. La factorisation complète de N est présentée dans l'encadré en utilisant $M + 1 = 9$ impulsions.

La figure 3.12 montre la factorisation d'un tel nombre, $N = 19\,043 = 137 \times 139$, avec le *fantôme* $l = 138$. Cet exemple permet de visualiser l'évolution de la somme de Gauss en fonction du nombre d'impulsions dans le train ($M + 1$). Les points expérimentaux (ronds) sont comparés à la théorie (croix) pour M variant de 0 à 14. On voit ainsi que pour les faibles valeurs de M ($M < 3$) $|\mathcal{A}_N^{(M)}(138)|^2$ est quasi-constante, il est alors impossible de discriminer ce *fantôme*, des facteurs. Par contre quand M augmente, $|\mathcal{A}_N^{(M)}(138)|^2$ diminue doucement et finit par passer sous la valeur seuil $1/2$ pour $M = 8$ qui correspond à $\simeq 0,7\sqrt[4]{19\,043}$. L'encadré montre la factorisation complète avec un agrandissement autour de $l = 138$. Pour $M + 1 = 9$ impulsions, on discrimine parfaitement les deux facteurs $l = 137$ et $l = 139$ comparé au *fantôme* $l = 138$.

3.3.4 Factorisation de grand nombres

Après avoir démontré et validé la méthode, on peut étudier les limites du dispositif expérimental. Pour ça, les deux nombres $N_1 = 1\,340\,333\,404\,807 = 11003 \times 11027 \times 11047$ (13 chiffres) et $N_2 = 2\,499\,200\,063 = 49991 \times 49993$ (10 chiffres) du type $p(p+2)$ ont été factorisés avec 30 impulsions, ce qui correspond à la limite de notre façonneur (cf. sec.3.3.2.2). Une première mise en œuvre naïve de la somme de Gauss a mis en évidence la loi d'échelle des *fantômes*. En effet la troncature minimale (eq.3.4) vaut dans ces deux

cas : $M_0(N_1) = 756$ et $M_0(N_1) = 153$ soit un nombre d'impulsions nettement supérieur aux capacités de notre façonneur.

Néanmoins en tant que mesure de référence, nous avons mis en œuvre la factorisation habituelle dite « séquentielle » et présentée sur la figure 3.13. La factorisation de N_1 est présentée en (a) avec un agrandissement en (b). Les résultats pour N_2 sont présentés de même en (c) et (d). Les facteurs sont représentés en rouge, les non-facteurs en noir et les *fantômes* en violet. Il est clair qu'on ne peut pas discriminer ainsi les facteurs des *fantômes*. Il est donc nécessaire d'avoir une autre approche.

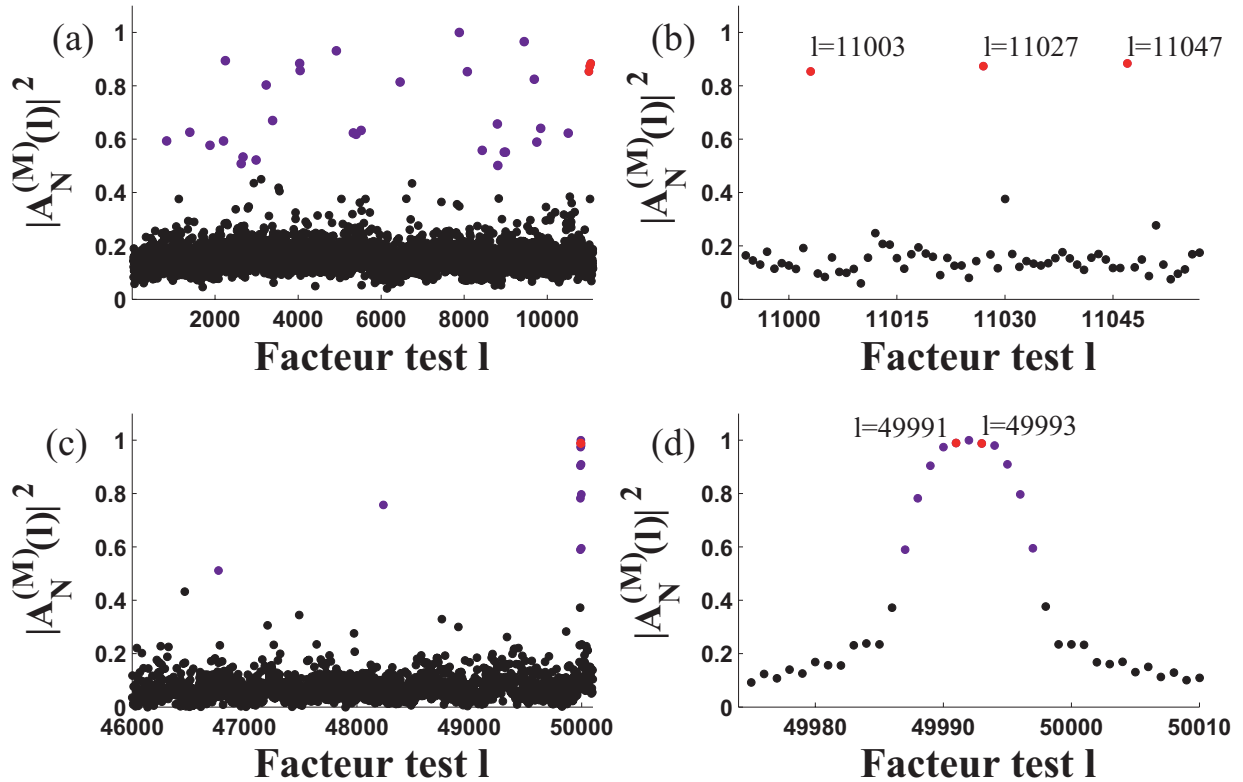


Figure 3.13 – Évolution de $\left| \mathcal{A}_N^{(M)}(l) \right|^2$ pour les nombres $N_1 = 1\,340\,333\,404\,807 = 11003 \times 11027 \times 11047$ (a) et zoom (b) et $N_2 = 2\,499\,200\,063 = 49991 \times 49993$ (c) et zoom (d) avec $M+1=30$ impulsions. Les facteurs apparaissent en rouge et sont labélisés par leur valeur. Les non-facteurs clairement identifiables sont tracés en noir et les *fantômes* (au dessus de seuil $1/2$) apparaissent en violet.

3.3.5 L'approche aléatoire

Une solution au problème des *fantômes* émerge de l'analyse du comportement de la somme terme après terme. Nous avons vu que pour un *fantôme*, la somme ne converge vers 0 que si le nombre de termes est élevé. Cependant l'important est d'avoir une interférence destructive dans la somme et donc des phases qui terme à terme ne présentent pas de relation particulière.

On peut se rendre compte graphiquement du comportement de la somme en assimilant chaque terme de la somme à un vecteur \mathbf{v}_m de norme $\frac{1}{(M+1)}$. Comme chacun de ces termes est un nombre complexe de module $\frac{1}{(M+1)}$, on assimile le plan complexe à un plan vectoriel.

$|\mathcal{A}_N^{(M)}(l)|$ est alors égale à :

$$|\mathcal{A}_N^{(M)}(l)| = L_M = \left| \sum_{m=0}^M \mathbf{v}_m \right| \tag{3.39}$$

où L_M est la norme de la somme de ces vecteurs.

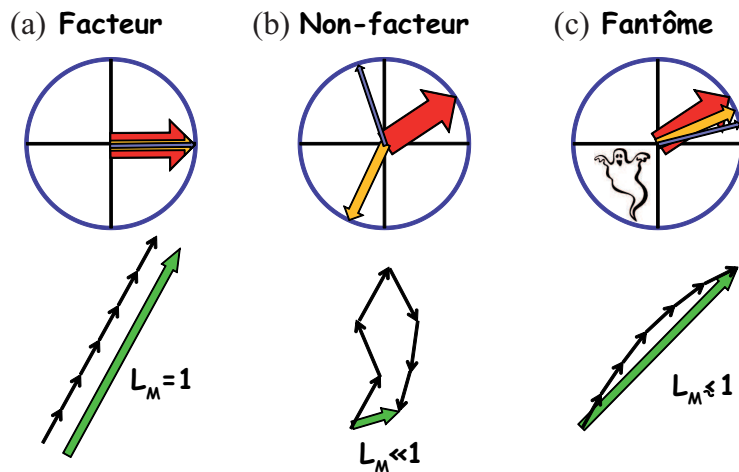


Figure 3.14 – Représentation vectorielle de la somme de Gauss. Chaque petite flèche (vecteur) représente un terme de la somme, de module $\frac{1}{(M+1)}$ mais d’argument donné par la phase $\phi_G = 2\pi m^2 N/L$. La norme de la somme de ces vecteurs, L_M , représentée par la flèche somme est égale à $|\mathcal{A}_N^{(M)}(l)|$. Cas (a) pour un facteur, tous les vecteurs sont colinéaires et s’additionnent constructivement pour obtenir $L_M = 1$ (phase de Gauss nulle). Cas (b) pour un non-facteur, il n’y a pas de relation de phase particulière entre les vecteurs et $L_M \ll 1$. Cas (c) pour un *fantôme*, la phase évolue lentement d’un terme à l’autre, les vecteurs sont quasiment parallèles et $L_M \simeq 1$.

La figure 3.14 représente cette vectorisation. Chaque vecteur est tracé dans la partie supérieure, ils sont tous contenus dans un cercle de rayon $\frac{1}{(M+1)}$. La somme de ces vecteurs est représentée dans la partie inférieure : cas (a) pour un facteur, tous les vecteurs sont colinéaires, la phase de Gauss est égale à 0, et les vecteurs s’additionnent constructivement pour obtenir $L_M = 1$. Cas (b) pour un non-facteur, il n’y a pas de relation de phase particulière entre les vecteurs et $L_M \ll 1$. Cas (c) pour un *fantôme*, la phase évolue lentement d’un terme à l’autre, les vecteurs sont quasiment colinéaires et $L_M \simeq 1$.

Comme on l’a déjà dit, il suffit alors de prendre plus de termes dans la somme pour « busteriser ^b » les *fantômes*. Cependant si on regarde de nouveau l’équation 3.2 alors on

b. Expression tirée du titre du film « *Ghost Buster* » avec Bill Murray dans le rôle d’un chasseur de fantôme.

s'aperçoit qu'il n'y a pas d'obligation à prendre les $M+1$ premiers termes. On peut en choisir $M+1$ dans l'intervalle $[0, l-1]$ et en particulier s'assurer qu'ils n'ont pas de relation de phase contrairement aux *fantômes*. Pour simplifier ce choix, nous avons décidé de les prendre aléatoirement dans cet intervalle. Une nouvelle somme de Gauss dite aléatoire [Weber 08] est obtenue, par opposition à la somme séquentielle utilisée jusqu'à présent, et est donnée par :

$$\mathcal{A}_{al}^{(M)}(l) = \frac{1}{M+1} \sum_{m=0}^M \exp \left\{ -2i\pi\mu(m)^2 \frac{N}{l} \right\} \quad (3.40)$$

avec $\mu(m)$ un entier tiré aléatoirement dans l'intervalle $[0, l-1]$ et tous différents les uns des autres.

Pour confirmer l'efficacité d'une telle procédure, la figure 3.15 montre l'évolution de la

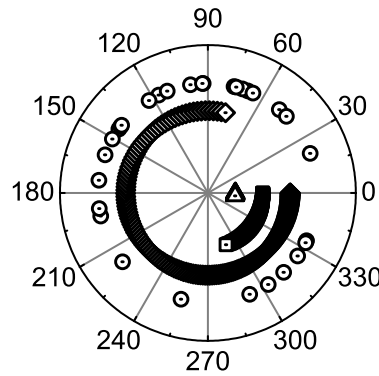


Figure 3.15 – Évolution de la phase des termes de la somme de Gauss pour le nombre $N_2 = 2\,499\,200\,063 = 49991 \times 49993$ et le *fantôme* $l = 49992$. Les triangles, carrés et losanges représentent respectivement la phase des 30, 100 et 200 premiers termes de la somme séquentielle. Les cercles représentent la phase de 30 termes de la somme aléatoire.

phase de chaque terme de la somme de Gauss pour le nombre $N_2 = 2\,499\,200\,063 = 49991 \times 49993$ et le *fantôme* $l = 49992$. Les triangles, carrés et losanges représentent respectivement la phase des 30, 100 et 200 premiers termes consécutifs. Par comparaison avec la figure 3.14 on voit bien le comportement *fantôme*, c'est à dire une évolution lente de la somme. Par contre les cercles représentent la phase de 30 termes aléatoirement sélectionnés dans l'intervalle $[0, l-1]$. L'interférence de ces termes de phase est bien destructive.

Le résultat expérimental de cette somme de Gauss aléatoire appliqué aux deux grands nombres précédents est représenté sur la figure 3.16. $N_1 = 1\,340\,333\,404\,807 = 11003 \times 11027 \times 11047$ est factorisé successivement par la méthode séquentielle cas (a) puis aléatoire cas (b). Le résultat est encore plus impressionnant avec le nombre $N_2 = 2\,499\,200\,063 = 49991 \times 49993$, où le cas (c) représente le résultat de la méthode séquentielle et le cas (d) celui de la méthode aléatoire. Les *fantômes* sont tous éliminés. Cette méthode très efficace permet de factoriser des nombres très grands tout en gardant une troncature raisonnable.

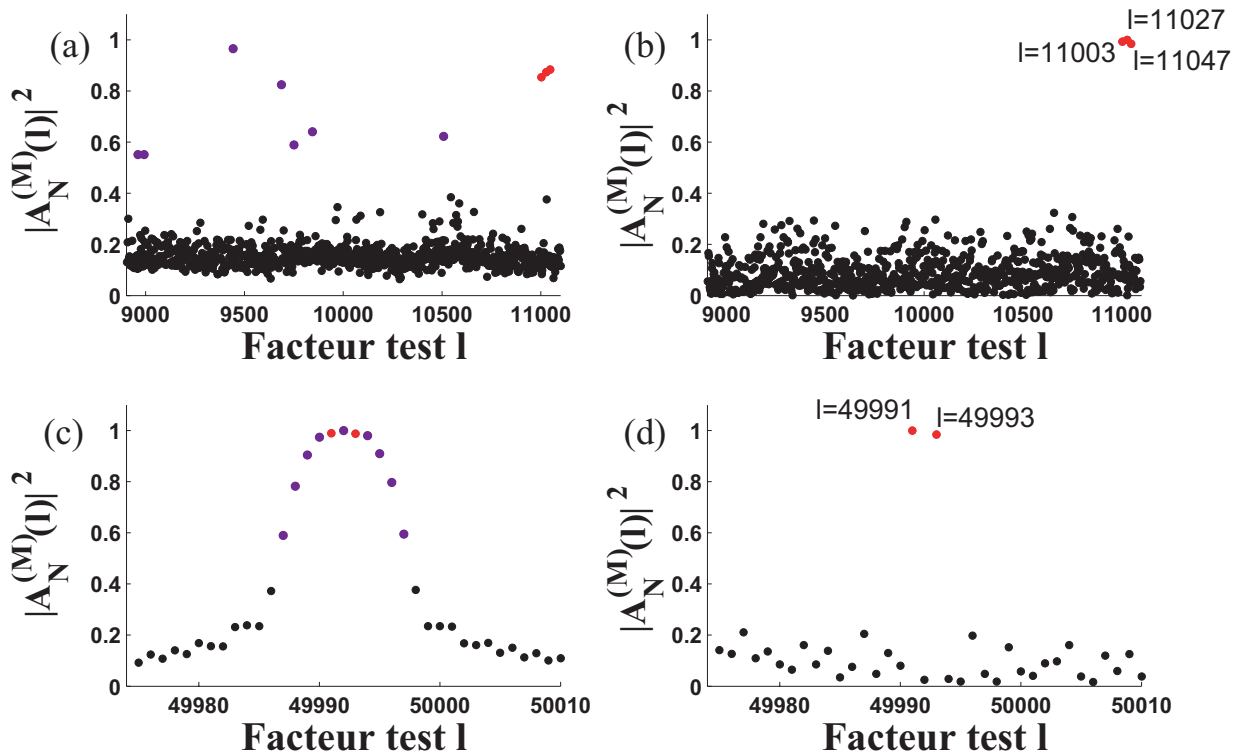


Figure 3.16 – Évolution de $\left| \mathcal{A}_{al}^{(M)}(l) \right|^2$ pour les nombres $N_1 = 1\ 340\ 333\ 404\ 807 = 11003 \times 11027 \times 11047$ (a) méthode séquentielle et (b) méthode aléatoire ainsi que le nombre $N_2 = 2\ 499\ 200\ 063 = 49991 \times 49993$ (c) méthode séquentielle et (d) aléatoire avec $M+1=30$ impulsions. Les facteurs apparaissent en rouge et sont labélisés par leur valeur. Les non-facteurs clairement identifiables sont dessinés en noir et les *fantômes* (au dessus de seuil $1/2$) apparaissent en violet.

3.3.6 Marche aléatoire

De même que pour la somme séquentielle, on peut évaluer le nombre de termes nécessaires pour factoriser efficacement un nombre N . Dans ce but et comme la figure 3.14(b) le fait penser, on considère un modèle de marche aléatoire. Chaque vecteur de la somme correspond à un pas du marcheur dans un plan (modèle à deux dimensions) et sa position initiale est prise à l’origine. Pour un non-facteur, on supposera les phases de la somme $\mathcal{A}_{al}^{(M)}(l)$ homogènement réparties dans l’intervalle $[0\ 2\pi]$ (cercles sur la figure 3.15).

La variable aléatoire $\mu(m) \in [0, l - 1]$ donne une phase de Gauss aléatoire dans l’intervalle $[0, 2\pi]$ ^c. On note :

$$\left| \mathcal{A}_{al}^{(M)}(l) \right| = |\mathbf{R}_{M+1}| \tag{3.41}$$

où \mathbf{R}_M est le rayon vecteur du marcheur et représente la longueur du chemin aléatoire

^c. Le cas particulier des *entiers-seuil* ne vérifie pas cette hypothèse, cependant ils n’entraînent pas de problème de discrimination dans le résultat de factorisation .

après M pas de longueur $1/M$. Cette relation est illustrée sur la figure 3.17.

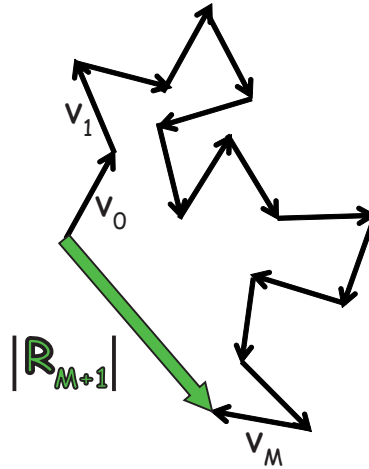


Figure 3.17 – Illustration de la marche aléatoire. Le rayon vecteur en vert est égal à la somme des petits vecteurs noirs de module égal à $\frac{1}{M+1}$ mais de direction et sens aléatoire. Le module de ce vecteur somme R_{M+1} est identifié à $|\mathcal{A}_{al}^{(M)}(l)|$.

3.3.6.1 Densité de probabilité et statistique

La densité de probabilité, $P_n(\mathbf{r})$, (n est le nombre de pas et \mathbf{r} le vecteur position dans le plan) associée à cette marche est calculée exactement en annexe B et une formule approchée est dérivée. Elle est obtenue pour $n \geq 5$ et correspond à la limite des grands nombres ou théorème central limite. Elle permet d'accéder aux informations statistiques sur la somme de Gauss. De plus elle donne une expression simple pour la probabilité d'obtenir un *fantôme* dans la somme.

La densité de probabilité est donnée par :

$$P_n(\mathbf{r}) \simeq \frac{1}{\pi n a^2} \exp\left\{-\frac{r^2}{n a^2}\right\} \quad (3.42)$$

dans le cas général où les pas sont de longueur a . Cette expression permet alors d'exprimer très simplement la moyenne et la variance des différents paramètres de la marche qui sont présentés dans le tableau B.1.

Par analogie, nous obtenons la statistique de la somme de Gauss. En effet, pour un non-facteur (et non-entier-seuil) la somme est une marche aléatoire de pas $a = \frac{1}{M+1}$ et $n = M + 1$. La statistique correspondante est représentée dans le tableau 3.3.

Tant que l'hypothèse grand nombre de pas est vérifiée, ces équations montrent que la valeur moyenne de $|\mathcal{A}_{al}^{(M)}(l)|^2$ décroît très rapidement avec le nombre de termes dans la

Variable	X	\mathbf{R}_n	R_n	R_n^2
Valeur moyenne $\langle \ \rangle$	$\langle X \rangle$	$\mathbf{0}$	$\sqrt{\pi n} \frac{a}{2}$	na^2
Écart type σ^2	$\langle X^2 \rangle - \langle X \rangle^2$	na^2	$na^2 \left(1 - \frac{\pi}{4}\right)$	$n^2 a^4$

Table 3.2 – Statistiques de différentes variables de la marche aléatoire. La première ligne indique ces variables, le rayon vecteur, sa norme et sa norme au carré ; la deuxième ligne donne l’expression de leur valeur moyenne et la dernière ligne de leur écart type.

Variable	$\mathcal{A}_{al}^{(M)}(l)$	$ \mathcal{A}_{al}^{(M)}(l) $	$ \mathcal{A}_{al}^{(M)}(l) ^2$
égale à	\mathbf{R}_{M+1}	R_{M+1}	R_{M+1}^2
Valeur moyenne $\langle \ \rangle$	$\mathbf{0}$	$\frac{1}{2} \sqrt{\frac{\pi}{M+1}}$	$\frac{1}{M+1}$
Écart type σ^2	$\frac{1}{M+1}$	$\frac{1}{M+1} (1 - \pi/4)$	$\frac{1}{(M+1)^2}$

Table 3.3 – Statistiques de différentes variables de la somme de Gauss directement appliquées du tableau B.1 en prenant $n = M + 1$ et $a = \frac{1}{M+1}$. La première ligne indique ces variables, la somme, sa norme et sa norme au carré ; la deuxième ligne donne la correspondance avec la marche aléatoire, la troisième donne l’expression de leur valeur moyenne et la dernière ligne de leur écart type.

somme tout comme sa variance, permettant ainsi la factorisation. Nous allons maintenant donner une expression de la troncature nécessaire à une bonne factorisation.

3.3.6.2 Estimation de la troncature

La probabilité d’avoir un marcheur en dehors d’un cercle de rayon $R = |\mathbf{R}|$ après n pas correspond à la probabilité d’avoir un résultat de somme supérieur à un seuil fixé. Transféré à la somme de Gauss on obtient la définition d’un *fantôme*. On notera ce type de probabilité W_n en précisant quelle condition elle vérifie. Par exemple, pour le marcheur en dehors du cercle on a :

$$W_n(r > R) = 1 - W_n(r < R) = 1 - \int_{\mathbf{r} < \mathbf{R}} d\mathbf{r} P_n(\mathbf{r}) \tag{3.43}$$

avec $d\mathbf{r} = r d\theta dr$ où θ et r sont les coordonnées polaires. On obtient alors :

$$W_n(r > R) = 1 - \frac{2}{na^2} \int_0^R dr r \exp\left\{-\frac{r^2}{na^2}\right\} \tag{3.44}$$

qui s’intègre pour donner finalement :

$$\boxed{W_n(r > R) = \exp\left\{-\frac{R^2}{na^2}\right\}}. \tag{3.45}$$

La définition d’un *fantôme* est donnée par $|\mathcal{A}_{al}^{(M)}(l)|^2 > S$, avec S un seuil de discrimination entre facteurs et non-facteurs. La probabilité de trouver un *fantôme* est alors

donnée par

$$P_{fant\hat{o}me} = P\left(\left|\mathcal{A}_{al}^{(M)}(l)\right| > \sqrt{S}\right) \quad (3.46a)$$

$$= W_{M+1}(r > \sqrt{S}) \text{ avec } n = M + 1 \text{ et } a = \frac{1}{M + 1} \quad (3.46b)$$

La somme est calculée \sqrt{N} fois (tous les *entiers-test* possibles) ce qui correspond à \sqrt{N} tirages aléatoires. La probabilité totale de trouver un *fantôme* à la fin de l'expérience est donc donnée par $P_{tot} = P_{fant\hat{o}me}\sqrt{N}$ et doit être telle que :

$$P_{tot} = \epsilon \ll 1. \quad (3.47)$$

Elle correspond à la question : « quelle est la probabilité d'avoir $100 \times \epsilon$ % d'obtenir un entier *fantôme* au cours des \sqrt{N} tirages de l'expérience ? » et vaut :

$$\epsilon = W_{M+1}(r > \sqrt{S})\sqrt{N} \quad (3.48a)$$

$$= \exp\{-(M + 1)S\}\sqrt{N} \quad (3.48b)$$

soit un nombre minimum d'impulsions (troncature)

$$\boxed{M + 1 = \frac{1}{2S} \ln N - \frac{1}{S} \ln \epsilon} \quad (3.49)$$

On choisit : $\epsilon = 0.01$ et $S = 1/2$, soit 1% de « malchance » de trouver un *entier-test* au dessus du seuil $1/2$. Ces conditions, un peu fortes, peuvent être revues à la baisse en fonction des conditions expérimentales, en particulier pour S .

La troncature obtenue pour notre nombre $N_2 = 2\,499\,200\,063 = 49991 \times 49993$ vaut $M \simeq 31$ en très bon accord avec notre expérience. Cette méthode aléatoire donne donc une loi d'échelle logarithmique pour M en fonction de N ce qui est une très nette amélioration comparée à la somme séquentielle.

Pour aller encore plus loin, par exemple avec des nombres ayant des *fantômes* trop « résistants », on peut imaginer appliquer plusieurs fois le processus aléatoire à ces *fantômes* récalcitrants, ce qui donnera un résultat différent à chaque essai, excepté pour les facteurs. Le coût en temps de mesure supplémentaire est ainsi réduit à son minimum.

3.4 Perspectives et conclusion

3.4.1 Améliorations possibles

La somme aléatoire améliore la loi d'échelle du nombre de termes nécessaires dans la somme. Une autre technique dérivée des sommes de Gauss a été décrite théoriquement [Štefaňák 08] et mise en œuvre expérimentalement [Peng 08]. C'est une somme généralisée définie par :

$$\mathcal{A}_{gen}^{(M)}(l) = \frac{1}{M + 1} \sum_{m=0}^M \exp\left\{-2i\pi m^n \frac{N}{l}\right\}, n \geq 3 \quad (3.50)$$

La valeur de l'exposant n permet d'avoir une convergence plus rapide de la somme dans le cas d'un non-facteur et donc diminue la troncature. Cependant les seuils naturels associés à ce type de somme sont beaucoup plus élevés que pour la somme de Gauss [Štefaňák 08].

Dans tous les cas, la factorisation complète d'un nombre N utilisant ces diverses sommes nécessite jusqu'à présent :

1. Un calcul préalable de toutes les phases $2\pi m^2 \frac{N}{l}$ de la somme^a, ce qui pose des problèmes de précision quand N a un nombre de chiffres très important mais surtout signifie qu'on ne peut pas factoriser un nombre N si on ne calcule pas tous les rapports $\frac{N}{l}$, c'est à dire le résultat de la factorisation. C'est le problème « du serpent qui se mord la queue ».
2. Une mesure expérimentale pour tous les entiers testés sur l'intervalle $[1, \sqrt{N}]$, soit \sqrt{N} mesures pour chaque N . On comprend bien que la durée nécessaire à la factorisation devient extrêmement longue et sera la principale limitation de ces techniques.

Par ailleurs, notre méthode, théorique et expérimentale, nécessite la mesure d'un spectre mais nous ne gardons que sa valeur à la fréquence centrale ω_0 . Nous avons donc essayé d'imaginer une façon d'utiliser tout le spectre pour encoder tous les *entiers-test* en une fois. Le champ électrique étant donné par (équation 3.31) :

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}_0(\omega) \sum_{m=0}^M w_m \exp\{i[\theta_m + (\omega - \omega_0)\tau_m]\} \quad (3.51)$$

On pourrait encoder le rapport N/l dans $(\omega - \omega_0)\tau$ avec par exemple

$$\begin{cases} \omega - \omega_0 = 1/l \\ \tau = m^2 N \end{cases}$$

mais plusieurs problèmes apparaissent. En effet, cela nécessite :

- Un délai entre impulsions qui varie quadratiquement, ce qui limite très rapidement le nombre de termes dans la somme.
- La continuité du spectre dans lequel il faut récupérer des valeurs discrètes $1/l$.
- La largeur finie du spectre qui ne permet pas d'avoir un grand nombre d'*entiers-test*.

Jusqu'à maintenant nous n'avons pas trouvé de configuration tout-en-un, c'est à dire des phases de Gauss obtenues par l'interaction et une unique mesure pour tous les *entiers-test*. Le principal enjeu pour le futur de la factorisation par les sommes de Gauss réside certainement dans une telle configuration expérimentale. A noter que notre proposition théorique s'en approche. En effet la somme de Gauss et les phases sont obtenues par l'interaction mais de plus, avec une série de mesure, nous sommes capables de factoriser plusieurs nombres.

a. Ceci n'est vrai que pour les mises en œuvre expérimentales citées. Pour la somme de Gauss issue d'une somme de fréquence, ou d'autres propositions théoriques, ce calcul préalable n'est pas nécessaire car est contenu dans l'interaction avec le système physique.

3.4.2 Conclusion

Dans cette partie, nous avons développé un outil classique, la somme de Gauss, permettant de s'attaquer au problème très tendance de la factorisation. La possibilité de factoriser rapidement de très grands nombres fait en effet trembler un grand nombre de gens : d'Ebay jusqu'au consommateur lambda en passant par les grandes banques internationales. La somme de Gauss ne nécessite que de la physique « classique » par opposition aux dernières propositions de calcul quantique. En effet, la somme de Gauss ne fait intervenir que des interférences d'ondes (atomiques, de spins ou optiques) mais ne présentant pas d'intrication entre elles. Il s'agit donc d'une méthode analogique élégante permettant de faire un parallèle entre un grand nombre de systèmes physiques et a donné lieu à une grande émulation dans le monde de la physique.

Pour finir, rappelons que dans l'algorithme de Shor, les ressources nécessaires à la factorisation (nombre d'opérations logiques à effectuer) d'un nombre N varient comme $N_d^3 \simeq (\log N)^3$ (avec N_d le nombre de chiffres de N) ; soit de façon polynomiale, ce qui fait tout son intérêt. Pour la factorisation avec une somme de Gauss, les mesures nécessaires varient beaucoup plus vite. En effet elles sont proportionnelles à $\sqrt{N} \simeq e^{\frac{N_d}{2}}$ soit une variation exponentielle. Cependant la factorisation expérimentale utilisant l'algorithme de Shor n'a permis jusqu'à présent que la factorisation de $N = 15$ laissant à notre méthode analogique le temps de s'améliorer et d'inspirer d'autres expériences.

Chapitre 4

Mise en forme pour le contrôle cohérent

Dans ce chapitre nous nous proposons de passer en revue les transitions à deux photons avec ou sans états intermédiaires. Nous nous appuyerons sur les résultats d'autres groupes qui éclaireront les nôtres.

Nous commencerons par présenter des expériences de type Pompe-Sonde où la transition à deux photons est une succession de deux transitions à un photon. Je présenterai en particulier des résultats obtenus avec la sonde mise en forme [Weber 10b].

Je passerai ensuite en revue quelques résultats de contrôle obtenus dans le cadre de l'absorption à deux photons sans état intermédiaire. Finalement je considérerai le cas des absorptions avec plusieurs états intermédiaires qui permettent de multiplier les chemins quantiques. Ces derniers et leurs interférences constituent l'attrait des schémas de contrôle cohérent. En particulier, je présenterai les résultats que j'ai obtenus sur la manipulation de la précession de Spin-Orbite [Chatel 08].

Mais tout d'abord, nous allons introduire les éléments théoriques nécessaires à la discussion des résultats obtenus.

4.1 Formalisme de l'interaction entre une impulsion laser et un atome

Nous allons décrire dans cette section les processus d'interaction entre une impulsion laser femtoseconde et les niveaux électroniques d'un atome. Nous décrirons d'abord le système étudié et les notations puis dériverons à partir de l'équation de Schrödinger, en représentation d'interaction, les expressions des amplitudes de probabilités et populations des niveaux électroniques atomiques. Après avoir vu le cas général, nous nous placerons dans le régime perturbatif. Les résultats obtenus seront alors utilisés dans les sections suivantes.

4.1.1 Notations et définitions

Nous nous intéresserons au couplage de deux états $|g\rangle$ (fondamental) et $|f\rangle$ (final) par deux impulsions laser représentées par leur champ électrique $\mathcal{E}_1(t)$ et $\mathcal{E}_2(t)$. Un certain nombre de niveaux intermédiaires $|k\rangle$ peuvent intervenir dans le processus d'excitation. Les énergies de ces niveaux sont notées $E_l = \hbar\omega_l$, avec $l = g, k, f$. Nous allons établir l'effet de ce champ électrique sur le système atomique et donner les expressions des populations des différents états. Chaque impulsion femtoseconde peut être mise en forme et retardée d'un délai τ . Le schéma général du système étudié est représenté sur la figure 4.1. Les pulsations ω_{01} et ω_{02} des impulsions sont accordées sur la transition à deux photons, on a donc $\hbar(\omega_{01} + \omega_{02}) = E_f - E_g = \hbar\omega_{fg}$ et l'écart à la résonance de l'état $|k\rangle$ est noté $\delta_k = \omega_{01} - \omega_{kg}$. Dans toute la suite, nous considérerons les durées de vie de ces états

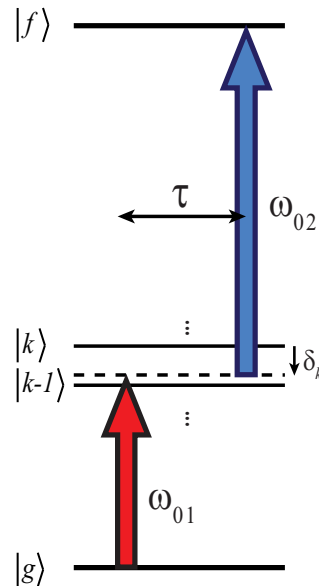


Figure 4.1 – Schéma de la transition à deux photons. L'état fondamental, symbolisé par $|g\rangle$, est couplé à l'état final, $|f\rangle$, par deux impulsions femtosecondes. Plusieurs états intermédiaires, $|k\rangle$, peuvent être présents entre les états $|g\rangle$ et $|f\rangle$. Les pulsations des deux impulsions ω_{01} et ω_{02} sont résonnantes avec la transition à deux photons $\omega_{01} + \omega_{02} = E_f - E_g = \omega_{fg}$. Le désaccord avec les niveaux intermédiaires est noté $\delta_k = \omega_{01} - \omega_{kg}$ et les impulsions sont retardées d'un délai τ .

comme infinies^a ou du moins très longues devant tous les processus étudiés. Le champ électrique, quantité réelle, s'écrit :

$$\mathcal{E}(t) = \frac{1}{2}[E(t) + E^*(t)] = \frac{1}{2}[A(t)e^{-i\omega_0 t} + A^*(t)e^{i\omega_0 t}] \quad (4.1)$$

a. Expérimentalement, cette approximation est valide car nous allons étudier des dynamiques de quelques picosecondes, les durées de vie des états utilisés étant de l'ordre de la nanoseconde.

Dans le domaine spectral, on définit le champ $\tilde{\mathcal{E}}(\omega)$

$$\tilde{\mathcal{E}}(\omega) = \mathcal{F}[\mathcal{E}(t)] = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathcal{E}(t) e^{i\omega t} \quad (4.2)$$

où \mathcal{F} est la transformée de Fourier directe (voir annexe).

4.1.2 Équation de Schrödinger

L'hamiltonien du système est donné par $H = H_0 + V$ où H_0 est l'hamiltonien de l'atome non perturbé et $V = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{e} \mathcal{E}(t)$ le terme de couplage atome-champ dans l'approximation dipolaire électrique avec \mathcal{E} le champ électrique et \mathbf{e} son vecteur unitaire de polarisation. On ne prend pas en compte l'effet du champ magnétique et on considère le champ comme uniforme spatialement sur la dimension de l'atome. La fonction d'onde $|\psi(t)\rangle$ du système est décrite comme une superposition cohérente des états propres $|n\rangle$ ($n = g, k, f$) de l'atome non-perturbé et d'énergies propres $E_n = \hbar\omega_n$

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n a_n(t) e^{-i\frac{E_n t}{\hbar}} |n\rangle = \sum_n a_n(t) e^{-i\omega_n t} |n\rangle. \quad (4.3)$$

$a_n(t)$ est l'amplitude de probabilité du niveau $|n\rangle$ et on notera sa population (ou probabilité) $|a_n(t)|^2 = P_n$. Par ailleurs la normalisation est assurée par $\sum_n P_n(t) = 1$. Par convention, on ne met pas le facteur de phase correspondant à la propagation libre dans l'amplitude. L'équation de Schrödinger dépendante du temps s'écrit

$$i\hbar \frac{d|\psi(t)\rangle}{dt} = (H_0 + V) |\psi(t)\rangle. \quad (4.4)$$

4.1.2.1 Représentation d'interaction - référentiel tournant

Pour obtenir une expression simple des amplitudes en fonction des champs des impulsions, il faut d'abord changer de base et utiliser la représentation d'interaction par rapport à H_0 [Cohen-Tannoudji 96]. Pour ça, nous utilisons une transformation unitaire associée à l'opérateur U :

$$U = \exp\left\{-i\frac{H_0}{\hbar}t\right\}. \quad (4.5)$$

Dans ce référentiel, dit tournant^b, on note les vecteurs $|\tilde{\psi}(t)\rangle$ et les opérateurs \tilde{A} . Ils sont définis par

$$|\tilde{\psi}(t)\rangle = U^\dagger |\psi(t)\rangle \quad (4.6a)$$

$$\tilde{A} = U^\dagger A U. \quad (4.6b)$$

b. Le nom de référentiel tournant ainsi que l'approximation associée est dérivée de l'analogie entre un spin 1/2 et un système à deux niveaux. Le spin précesse autour du champ magnétique, on se place alors dans la base tournant avec le spin [Cohen-Tannoudji 96].

On peut montrer que

$$i\hbar \frac{dU}{dt} = H_0 U \quad (4.7a)$$

$$-i\hbar \frac{dU^\dagger}{dt} = H_0 U^\dagger. \quad (4.7b)$$

La fonction d'onde s'écrit maintenant,

$$|\tilde{\psi}(t)\rangle = U^\dagger |\psi(t)\rangle = \sum_n a_n(t) e^{-i\omega_n t} U^\dagger |n\rangle = \sum_n a_n(t) e^{-i\omega_n t} |\tilde{n}\rangle = \sum_n a_n(t) |n\rangle. \quad (4.8)$$

La fonction d'onde s'exprime de la même façon dans les deux bases mais chaque composante de la fonction d'onde « tourne » à la fréquence ω_n par rapport à la base non-perturbée. Les populations, qui sont identiques dans les deux bases, sont données par $P_n = |\langle \tilde{\psi}(t) | \tilde{n} \rangle|^2 = |a_n(t)|^2$. L'équation de Schrödinger est modifiée en écrivant la dérivée de $|\tilde{\psi}(t)\rangle$

$$i\hbar \frac{d|\tilde{\psi}(t)\rangle}{dt} = i\hbar \frac{dU^\dagger}{dt} |\psi(t)\rangle + i\hbar U^\dagger \frac{d|\psi(t)\rangle}{dt}. \quad (4.9)$$

En remplaçant la dérivée de $|\psi(t)\rangle$ par l'équation 4.4 on obtient :

$$i\hbar \frac{d|\tilde{\psi}(t)\rangle}{dt} = -H_0 U^\dagger |\psi(t)\rangle + U^\dagger (H_0 + V) |\psi(t)\rangle \quad (4.10)$$

Or U et H_0 commutent et donc finalement

$$i\hbar \frac{d|\tilde{\psi}(t)\rangle}{dt} = U^\dagger V U |\tilde{\psi}(t)\rangle \quad (4.11)$$

$$i\hbar \frac{d|\tilde{\psi}(t)\rangle}{dt} = \tilde{V} |\tilde{\psi}(t)\rangle. \quad (4.12)$$

Dans cette représentation, la fonction d'onde ne varie que pendant la durée de l'interaction d'où le nom de cette représentation.

4.1.2.2 Expression des amplitudes

Pour obtenir l'amplitude des états de l'atome non-perturbé, on remplace $|\tilde{\psi}(t)\rangle$ dans l'équation 4.12 par son expression, équation 4.8. On obtient l'amplitude de l'état $|n\rangle$ en multipliant l'équation obtenue par $\langle n|$, soit pour le terme de gauche :

$$\langle n| \times i\hbar \sum_l \frac{da_l(t)}{dt} |l\rangle = i\hbar \frac{da_n(t)}{dt} \quad (4.13)$$

et pour le terme de droite :

$$\sum_l a_l(t) \langle n | \tilde{V} | l \rangle = \sum_l a_l(t) \langle n | e^{i\frac{H_0}{\hbar}t} V e^{-i\frac{H_0}{\hbar}t} | l \rangle \quad (4.14a)$$

$$= \sum_l a_l(t) e^{i\omega_n t} e^{-i\omega_l t} \langle n | V | l \rangle \quad (4.14b)$$

En explicitant l'opérateur V , on obtient :

$$\sum_l a_l(t) \langle n | \tilde{V} | l \rangle = - \sum_l a_l(t) e^{i(\omega_n - \omega_l)t} \mathcal{E}(t) \mu_{nl} \quad (4.15)$$

avec μ_{nl} l'élément de transition de l'état $|l\rangle$ à $|n\rangle$ et on note $\omega_{nl} = \omega_n - \omega_l$.

Au final, on obtient un système d'équations couplées dont la $n^{\text{ième}}$ vaut

$$\boxed{\frac{da_n(t)}{dt} = \sum_l \frac{i\mu_{nl}}{2\hbar} a_l(t) E(t) e^{i\omega_{nl}t} + \sum_{l'} \frac{i\mu_{nl'}}{2\hbar} a_{l'} E^*(t) e^{-i\omega_{nl'}t}}. \quad (4.16)$$

La variation de l'amplitude d'un niveau $|n\rangle$ est due à deux contributions :

- une absorption d'un photon du champ car $E(t)$ contient les fréquences positives du champ.
- Une émission stimulée d'un photon du champ car $E^*(t)$ contient les fréquences négatives.

On obtient l'expression formelle des amplitudes par l'écriture intégrale de l'équation précédente

$$a_n(t) = a_n(t_i) + \frac{i}{2\hbar} \int_{t_i}^t dt' \left[\sum_l \mu_{nl} a_l(t') E(t') e^{i\omega_{nl}t'} + \sum_{l'} \mu_{nl'} a_{l'} E^*(t') e^{-i\omega_{nl'}t'} \right]. \quad (4.17)$$

avec t_i un instant initial pris comme origine de la dynamique avant que la perturbation arrive. Cet instant sera pris comme tendant vers $-\infty$ dans les équations.

4.1.2.3 Calcul perturbatif

Ce système d'équations couplées, difficile à résoudre, peut être simplifié si le champ électrique induit une faible variation des populations électroniques de l'atome, ce qui est le cas dans nos expériences. On peut donc utiliser un calcul perturbatif des amplitudes de probabilités. Dans ce cadre, on considère que seul le niveau fondamental est peuplé avant l'interaction et que le transfert de population est très faible. Dans ce cas on peut négliger le deuxième terme de l'équation 4.17 correspondant à la désexcitation et on exprime $a_n(t)$ comme la somme de différents ordres $a_n(t) = a_n^{(0)}(t) + a_n^{(1)}(t) + a_n^{(2)}(t) + \dots$. On se limitera à l'ordre 2 dans le développement car il permet de traiter les transitions à deux photons. L'ordre 0 est donné par

$$a_n^{(0)}(t) = a_n(t_i) = \begin{cases} 1 & \text{si } n = g \\ 0 & \text{sinon} \end{cases}. \quad (4.18)$$

Pour obtenir l'ordre 1 on injecte l'ordre 0 dans l'équation 4.17 et on recommence pour l'ordre 2 On obtient ainsi pour l'ordre 1

$$a_n^{(1)}(t) = \frac{i}{2\hbar} \sum_l \int_{-\infty}^t dt' a_l^{(0)} \mu_{nl} E(t') e^{i\omega_{nl}t'} \quad (4.19a)$$

$$= \frac{i}{2\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \mu_{ng} E(t') e^{i\omega_{ng}t'}. \quad (4.19b)$$

Où l'on a pris $t_i \rightarrow -\infty$. Pour l'ordre deux qui nous intéresse particulièrement, on obtient

$$a_n^{(2)}(t) = \frac{i}{2\hbar} \sum_l \int_{-\infty}^t dt' a_l^{(1)}(t') \mu_{nl} E(t') e^{i\omega_{nl}t'} \quad (4.20a)$$

$$= \frac{-1}{4\hbar^2} \sum_l \int_{-\infty}^t dt' \left[\int_{-\infty}^{t'} dt'' \mu_{kg} E(t'') e^{i\omega_{ng}t''} \right] \mu_{nl} E(t') e^{i\omega_{nl}t'} \quad (4.20b)$$

soit de manière ordonnée :

$$a_n^{(2)}(t) = \frac{-1}{4\hbar^2} \sum_l \mu_{nl} \mu_{lg} \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' E(t') E(t'') e^{i\omega_{kg}t''} e^{i\omega_{nl}t'} \quad (4.21)$$

C'est cette expression qui sera utilisée pour les transitions à deux photons puisque elle fait intervenir deux fois le champ électrique. De plus la quantité mesurée expérimentalement est la population de l'état final aux temps longs car c'est la fluorescence par émission spontanée qui est détectée. On exprimera donc les amplitudes et les populations aux temps longs et on notera $a_n(\tau) = a_n(t \rightarrow \infty, \tau)$.

Avec les notations de la figure 4.1, le champ électrique total s'écrit : $E(t) = \frac{E_1(t) + E_2(t-\tau)}{2}$ avec E_1 accordé sur les transitions $|g\rangle \rightarrow |k\rangle$ et E_2 sur les transitions $|k\rangle \rightarrow |f\rangle$ ^c. Ainsi, en sous-entendant l'ordre 2, l'amplitude de l'état final s'écrit

$$a_f(\tau) = \frac{-1}{4\hbar^2} \sum_k \mu_{fk} \mu_{kg} \int_{-\infty}^{+\infty} dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' E_2(t' - \tau) e^{i\omega_{fk}t'} E_1(t'') e^{i\omega_{kg}t''} \quad (4.22)$$

où la somme ne porte que sur les états intermédiaires $|k\rangle$.

4.1.2.4 Amplitude et champ spectral

De façon générale, les expériences de contrôle cohérent utilisent un champ électrique façonné dans le domaine spectral. Ainsi les expressions des populations utilisant les champs spectraux seront plus aisées à analyser. Cette partie détaille donc le calcul de l'expression de $a_f(\tau)$ en fonction des champs spectraux^d. On peut écrire la seconde intégrale comme un produit de convolution en y ajoutant la fonction de Heaviside $\mathcal{H}(t)$ (fonction en marche d'escalier définie dans la section A.2.2) qui permet une sommation de $-\infty$ à $+\infty$.

$$a_f(\tau) = \sum_{fkg} \int_{-\infty}^{+\infty} dt' E_2(t' - \tau) e^{i\omega_{fk}t'} \int_{-\infty}^{+\infty} dt'' \mathcal{H}(t' - t'') E_1(t'') e^{i\omega_{kg}t''} \quad (4.23)$$

avec la contraction

$$\sum_{fkg} = -\frac{1}{4\hbar^2} \sum_k \mu_{fk} \mu_{kg}. \quad (4.24)$$

c. Cette hypothèse permet de négliger les termes en $E_1^2(t)$ et $E_2^2(t)$. On ne garde que les termes croisés.

d. Ce calcul a été fait dans la thèse de Jérôme Degert [Degert 02a] mais est limité à l'ordre 1.

Ce produit de convolution, entre la fonction $\mathcal{H}(t)$ et la fonction g définie par $g(t) = E_1(t)e^{i\omega_{kg}t}$, est noté $[g \otimes \mathcal{H}](t')$ et est égal à :

$$[g \otimes \mathcal{H}](t') = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \tilde{\mathcal{H}}(\omega) \tilde{g}(\omega) e^{-i\omega t'} \quad (4.25)$$

avec :

$$\tilde{\mathcal{H}}(\omega) = \pi\delta(\omega) + i\text{P}\left(\frac{1}{\omega}\right) \quad (4.26a)$$

$$\tilde{g}(\omega) = \tilde{E}_1(\omega + \omega_{kg}) \quad (4.26b)$$

où P est la partie principale de Cauchy. En inversant les intégrales on obtient :

$$a_f(\tau) = \frac{1}{2\pi} \sum_{fkg} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \tilde{\mathcal{H}}(\omega) \tilde{E}_1(\omega + \omega_{kg}) \int_{-\infty}^{+\infty} dt' E_2(t' - \tau) e^{i(\omega_{fk} - \omega)t'} \quad (4.27)$$

où on reconnaît une TF dans la seconde,

$$a_f(\tau) = \frac{1}{2\pi} \sum_{fkg} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \tilde{\mathcal{H}}(\omega) \tilde{E}_1(\omega + \omega_{kg}) \tilde{E}_2(\omega_{fk} - \omega) e^{i(\omega_{fk} - \omega)\tau} \quad (4.28)$$

enfin en développant $\tilde{\mathcal{H}}(\omega)$, on obtient

$$a_f(\tau) = \frac{1}{2\pi} \sum_{fkg} \pi \tilde{E}_1(\omega_{kg}) \tilde{E}_2(\omega_{fk}) e^{i\omega_{fk}\tau} + i\text{P} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{\tilde{E}_1(\omega + \omega_{kg}) \tilde{E}_2(\omega_{fk} - \omega)}{\omega} e^{i(\omega_{fk} - \omega)\tau} \quad (4.29)$$

qui s'exprime après le changement de variable $\omega = \Omega + \omega_{01} - \omega_{kg}$ par :

$$a_f(\tau) = a_f^{(r)}(\tau) + a_f^{(\text{hr})}(\tau) \quad (4.30a)$$

$$a_f^{(r)}(\tau) = - \sum_k \frac{\mu_{fk} \mu_{kg}}{8\hbar^2} \tilde{E}_1(\omega_{kg}) \tilde{E}_2(\omega_{fk}) e^{i\omega_{fk}\tau} \quad (4.30b)$$

$$a_f^{(\text{hr})}(\tau) = - \sum_k i \frac{\mu_{fk} \mu_{kg}}{8\pi\hbar^2} e^{i\omega_{fk}\tau} \text{P} \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \frac{\tilde{E}_1(\omega_{01} + \Omega) \tilde{E}_2(\omega_{02} - \Omega)}{\Omega + \delta_k} e^{-i(\Omega + \delta_k)\tau} \quad (4.30c)$$

avec $\delta_k = \omega_{01} - \omega_{kg}$ le désaccord de la transition $g \rightarrow k$ avec la pulsation de l'impulsion $E_1(t)$. On peut déjà établir un premier résultat, à savoir que la population finale est due à deux contributions :

- La première, $a_f^{(r)}(\tau)$, dite à « résonance » [Dudovich 02a], donne la valeur de l'amplitude dans le régime où τ est grand devant la durée de l'impulsion E_1 ($\tau \rightarrow \infty$). L'amplitude est proportionnelle au produit des champs \tilde{E}_1 et \tilde{E}_2 aux fréquences de résonance ω_{kg} et ω_{fk} .
- La deuxième, $a_f^{(hr)}(\tau)$, dite « hors-résonance », correspondant à une évolution transitoire en fonction du délai entre les impulsions et est très sensible au façonnage [Zamith 01b, Dudovich 02a]. En effet chaque couple de fréquence (ω_1, ω_2) , vérifiant $\omega_1 + \omega_2 = \omega_{fg}$ contribue à a_f avec un poids d'autant plus important que le désaccord δ_k est faible. Les interférences entre tous ces chemins de transition sont à l'origine des divers phénomènes présentés dans les sections suivantes.

Dans la suite, nous utiliserons l'une ou l'autre des équations 4.22 et 4.30 pour expliquer le plus clairement possible les phénomènes étudiés.

4.2 Systèmes Pompe-Sonde

Cette section décrit différents schémas de contrôle cohérent de type Pompe-Sonde. La technique pompe-sonde consiste à utiliser une succession de deux impulsions laser pour initier et suivre la dynamique d'un système. La première impulsion, pompe, induit une dynamique en excitant un état ou une superposition d'état (dans le cas général) créant un paquet d'ondes. L'étape sonde consiste alors à projeter cette superposition d'états vers un état final dont la population est détectée en fonction du délai entre les impulsions. La dynamique est ainsi reconstruite pas à pas, telle une stroboscopie de son mouvement. Cette technique a été proposée par Tannor et al. [Tannor 86] et appliquée expérimentalement par le Pr. Zewail [Zewail 94] en femtochimie.

L'introduction du façonnage a ensuite donné des degrés de contrôle supplémentaire de l'interaction. Les impulsions pompes façonnées ont d'abord été utilisées en boucle fermée dans les groupes des Pr. Rabitz [Warren 93] et Gerber [Assion 98] puis dans des systèmes en boucles ouvertes. Ces différentes techniques Pompe-Sonde ont été activement utilisées dans notre groupe [Zamith 01b, Degert 02b, Monmayrant 06a] par le passé. Cependant, la reconstruction de la dynamique n'est possible que si la sonde est suffisamment courte devant son évolution.

Après un bref rappel de ce type de technique, en particulier pour le contrôle et la mesure des *transitoires cohérents* [Degert 02b], nous étudierons le cas plus général d'un système à 3 niveaux excité par une impulsion pompe et une impulsion sonde pouvant être mises en forme toutes les deux. Nous montrerons que dans ce cas, l'étape pompe ne suffit plus pour décrire la dynamique du système qui doit être pris dans son ensemble, c'est à dire un système à 3 niveaux en interaction avec deux impulsions femtosecondes retardées. Nous illustrerons le rôle de la sonde dans le cas d'un façonnage des impulsions avec une phase quadratique et donc une dynamique de type *transitoires cohérents*.

4.2.1 Schéma Pompe-Sonde classique

Le schéma d'interaction est identique à celui de la figure 4.1 où dans notre cas les impulsions E_1 et E_2 sont respectivement la pompe et la sonde notées E_p et E_s . On se restreindra ici à un seul niveau intermédiaire $|k\rangle$.

Pour démontrer l'efficacité des schémas Pompe-Sonde à reconstruire la dynamique de l'état excité, on reprend l'équation 4.22 donnant la variation de la population de l'état final en fonction du délai entre les impulsions.

$$P_f(\tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' E_s(t' - \tau) e^{i\omega_{fk}t'} E_p(t'') e^{i\omega_{kg}t''} \right|^2 \quad (4.31)$$

Si la sonde est suffisamment brève devant l'excitation, on peut la considérer, en première approximation, comme un Dirac ce qui donne :

$$P_f(\tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' E_{0s} \delta(t' - \tau) e^{i\omega_{fk}t'} E_p(t'') e^{i\omega_{kg}t''} \right|^2 \quad (4.32a)$$

$$P_f(\tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{\tau} dt E_p(t) e^{i\omega_{kg}t} \right|^2 \quad (4.32b)$$

La comparaison de cette équation avec celle donnant l'amplitude des états intermédiaires (éq. 4.19b) montre que la mesure de P_f en fonction de τ donne, pour une sonde courte, un résultat proportionnel à l'évolution de $P_k(t)$. En d'autres termes, la dynamique de la population de l'état $|k\rangle$ est initiée à un instant t_0 , pris comme référence, par la pompe puis mesurée à l'instant $t_0 + \tau$ par la sonde. La dynamique est reconstruite dans son ensemble en réitérant l'expérience avec un délai τ variable. On obtient alors la dynamique avec une résolution donnée par la durée de la sonde, qui bien sûr diffère d'une distribution de Dirac.

On peut aussi exprimer cette probabilité en utilisant le champ spectral (équation 4.30) :

$$P_f(\tau) \propto \left| \pi \tilde{E}_p(\omega_{kg}) + i\mathcal{P} \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \frac{\tilde{E}_p(\omega_{kg} + \Omega)}{\Omega + \delta_k} e^{-i(\Omega + \delta_k)\tau} \right|^2 \quad (4.33)$$

On retrouve l'expression où le terme de gauche, résonnant, est responsable de la partie stationnaire de l'évolution de la population et le terme de droite, non-résonnant, est responsable de la partie transitoire. La pompe peut donc être façonnée de manière à contrôler la dynamique transitoire de l'état intermédiaire que la sonde va mesurer.

4.2.2 Contrôle du régime transitoire

Les deux grandes familles de façonnage que sont les sauts de phase [Dudovich 02a] utilisés principalement dans le groupe de Yaron Silberberg et les impulsions à dérive de fréquence [Zamith 01b, Degert 02b, Chatel 04] dont notre groupe est friand ont été utilisées

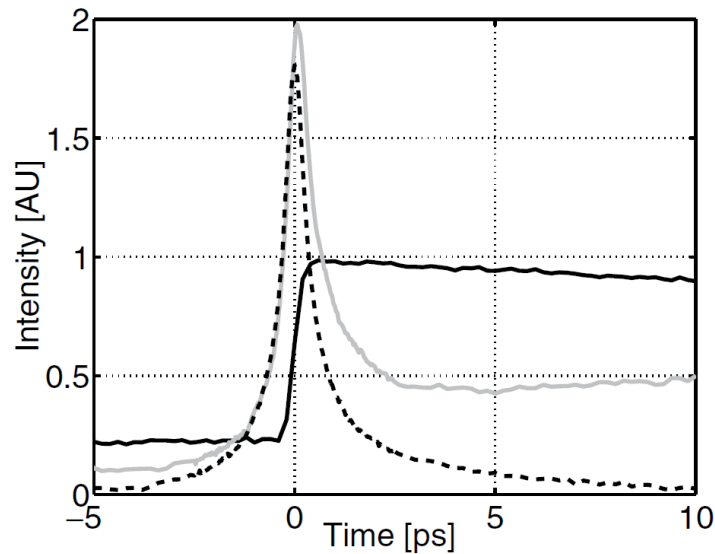


Figure 4.2 – Figure extraite de la référence [Dudovich 02a]. Mesure de population transitoire en fonction du délai pompe-sonde pour différentes formes d’impulsions pompe : impulsion limitée par TF (ligne noire), saut de phase de π à résonance (ligne pointillée) et saut de $0,7\pi$ légèrement hors résonance (ligne grise).

pour le contrôle du régime transitoire.

La figure 4.2 montre l’évolution de la population de l’état final d’un système à 3 niveaux dans le Rubidium [Dudovich 02a] en fonction du délai Pompe-Sonde. La pompe est mise en forme par un façonneur à cristaux liquides et la sonde est brève et limitée par TF, le signal mesuré est donc proportionnel à la dynamique de l’état intermédiaire.

- Si la pompe est aussi limitée TF alors la dynamique est une simple marche (ligne noire continue) au passage de la pompe (centrée à $\tau = 0$). La partie stationnaire est proportionnelle à la puissance spectrale à résonance.
- Si un saut de phase de π est appliqué à la résonance (ligne en pointillé), la partie non-résonnante est amplifiée. En effet le changement de signe de la phase compense celui du dénominateur (éq. 4.33), maximisant l’intégrale à $\tau = 0$. La population à ce délai est multipliée par 2,5. La population dans le régime stationnaire est nulle, car la partie résonnante est annulée par le façonneur, il s’agit d’un effet du couplage spatio-temporel (à chaque saut de phase de π correspond un trou en amplitude).
- Un saut de phase de $0,7\pi$ légèrement hors résonance maximise globalement le régime transitoire (ligne grise).

Notre groupe a observé des *transitoires cohérents* [Zamith 01b]. Les oscillations obtenues résultent de l’interaction d’un système à deux niveaux avec une impulsion pompe à dérive de fréquence et un exemple est présenté sur la figure 4.3. Nous avons montré que leur contrôle est possible par le façonnage de la pompe, ce qui a donné de nombreux résultats. Entre autres, il permet la calibration précise d’un façonneur [Wohlleben 04], la création d’une lentille de Fresnel temporelle [Degert 02b] et la mesure de l’évolution de l’ampli-

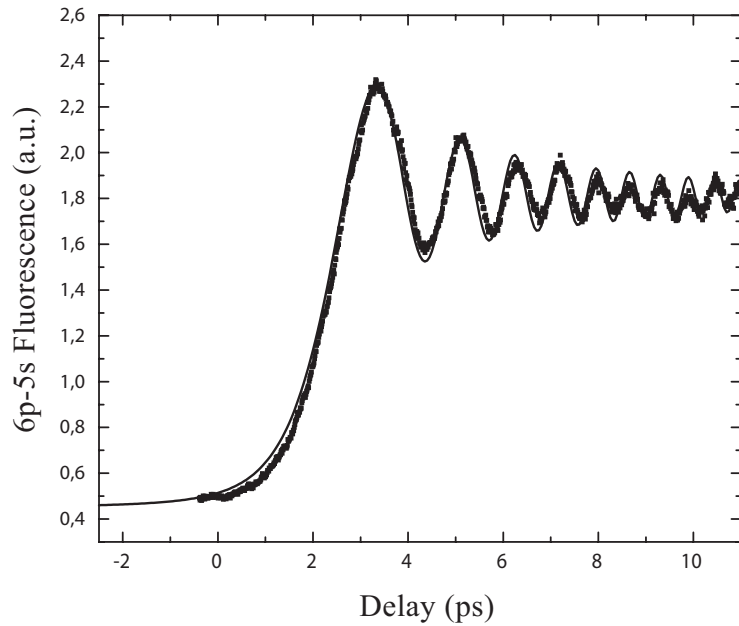


Figure 4.3 – Figure extraite de la référence [Zamith 01b]. Résultats expérimentaux de *transitoires cohérents* (points) et théoriques (ligne) : pour une impulsion pompe chirpée $\phi^{(2)} = -8.10^5$ et une sonde courte.

tude de probabilité d'un état excité en fonction du temps [Monmayrant 06a]. Toutes ces expériences de contrôle ont été faites et validées grâce à la mesure de l'état final. La proportionnalité entre la dynamique de l'état intermédiaire et la population de l'état final n'est possible qu'en considérant la sonde comme extrêmement courte. La deuxième étape, transition entre l'état intermédiaire et l'état final, n'a alors pas d'influence sur la dynamique.

4.2.3 Transitoires cohérents

Avant de parler de l'influence de la sonde sur le système atomique, nous allons rappeler la théorie et les résultats principaux concernant les *transitoires cohérents*. Ces transitoires ont été décrits en détail dans la thèse de Sébastien Zamith [Zamith 01a], nous ne donnerons donc que les explications nécessaires à la suite.

Dans un premier temps nous allons considérer l'évolution du niveau $|k\rangle$ sous l'action d'une impulsion pompe à dérive de fréquence linéaire (chirpée), puis dans un second temps, l'évolution du niveau $|f\rangle$ couplé à $|k\rangle$ par une sonde courte. L'impulsion pompe chirpée, dont on suppose le profil gaussien, est obtenue en ajoutant une phase quadratique $\phi_p(\omega) = \frac{\phi_p^{(2)}}{2}(\omega - \omega_0)^2$ à une impulsion limitée par TF de durée Δt_{0p} dans le domaine spectral. Elle s'écrit alors dans le domaine temporel (voir annexe) :

$$E_p(t) = A_p(t)e^{-i\varphi_p(t)} \quad (4.34a)$$

$$\text{avec } A_p(t) = E_{0pc}e^{-\frac{t^2}{4\Delta t_{cp}^2}} \quad (4.34b)$$

$$\text{et } \varphi_p(t) = \omega_{0p}t + \alpha_p t^2 \quad (4.34c)$$

avec c pour « chirpé », $\Delta t_{cp} = \Delta t_{0p} \sqrt{1 + \frac{\phi_p^{(2)2}}{4\Delta t_{0p}^4}}$ est la durée RMS de l'impulsion étirée et $\alpha_p = \frac{\phi_p^{(2)}}{2\Delta t_{0p}^4 + \frac{\phi_p^{(2)2}}{2}} = \frac{\phi_p^{(2)}}{2\Delta t_{0p}^2 \Delta t_{cp}^2}$ est le paramètre de chirp. L'amplitude maximale E_{0pc} est donnée par :

$$E_{0pc} = \frac{\tilde{E}_{0p} e^{i\frac{\theta_p}{2}}}{2\sqrt{\pi \Delta t_{0p} \Delta t_{cp}}} \quad (4.35)$$

avec \tilde{E}_{0p} l'amplitude maximale de $\tilde{E}_p(\omega)$ et $\theta_p = \arctan\left(-\frac{\phi_p^{(2)}}{2\Delta t_{0p}^2}\right)$ un déphasage par rapport à l'impulsion limitée TF. La pulsation instantanée est alors donnée par :

$$\omega(t) = -\frac{d\varphi(t)}{dt} = \omega_{0p} + 2\alpha_p t, \quad (4.36)$$

soit une dérive linéaire en fonction du temps, ce qu'on appelle l'homothétie temps-fréquence. L'amplitude de l'état $|k\rangle$ est alors donnée par :

$$a_k(t) = \frac{i\mu_{kg}}{2\hbar} \int_{-\infty}^t dt' A_p(t') e^{-i\delta_k t' + i\alpha_p t'^2} \quad (4.37)$$

avec $\delta_k = \omega_{0p} - \omega_{kg}$. L'évolution de cette amplitude, ainsi que de la population associée sont représentées sur la figure 4.4. La population de l'état $|k\rangle$, $P_k(t)$ est représentée en (a) et son amplitude est représentée dans le plan complexe en (b). La phase quadratique de l'impulsion pompe est $\phi^{(2)} = -5.10^4 \text{ fs}^2$ et on a supposé ici être à résonance ($\delta_k = 0$). On

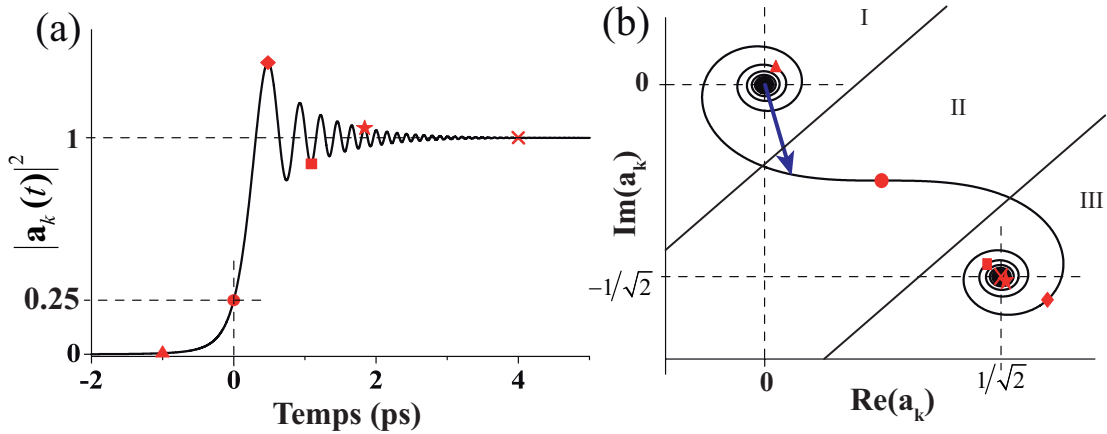


Figure 4.4 – Évolution de la population (a) et de l'amplitude de probabilité (b) dans le plan complexe d'un état intermédiaire excité par une impulsion pompe à dérive de fréquence $\phi^{(2)} = -5.10^4 \text{ fs}^2$. Les marqueurs représentent leurs valeurs à différents instants. La flèche est le rayon vecteur dont le module au carré donne la valeur de la population. Enfin la dynamique est séparée en trois parties décrites dans le texte.

observe sur la population $P_k(t)$ un accroissement rapide autour de $t = 0$ suivi d'oscillations

transitoires qui se produisent durant l'interaction avec l'impulsion pompe. Ce sont ces oscillations que nous appelons transitoires cohérents. L'accroissement à $t = 0$ correspond au passage par la résonance, c'est-à-dire à l'arrivée dans l'impulsion de la pulsation ω_{kg} . A cette contribution principale vient ensuite s'ajouter celles des autres pulsations, non résonnantes, qui arrivent linéairement au cours du temps (voir équation 4.36). Selon la différence entre la phase accumulée par ces pulsations et celle accumulée par la contribution résonnante, la population va s'accroître (interférence constructive) ou diminuer (interférence destructive).

L'effet de cette phase se voit encore mieux sur l'évolution de l'amplitude de probabilité dans le plan complexe (figure 4.4(b)). Cette évolution est similaire à la spirale de Cornu obtenue, dans l'approximation de Fresnel, par la diffraction d'une onde plane par un bord d'écran. Le module du rayon vecteur (flèche) partant du point (0,0) et pointant vers les différents points de la courbe est égal à $|a_k(t)| = \sqrt{P_k(t)}$. Suivre son évolution permet alors de reconstruire la population de l'état $|k\rangle$ en fonction du temps (figure 4.4(a)). Les différents marqueurs permettent de pointer différents instants dans l'évolution.

La population asymptotique du régime stationnaire est donnée par $P_k(t \rightarrow \infty)$ soit :

$$P_k(+\infty) = |a_k(+\infty)|^2 \propto A_p(\omega_{kg})^2 \quad (4.38)$$

ce qui correspond au résultat connu sur les transitions à un photon, à savoir que la population stationnaire ne dépend que de l'amplitude du champ spectral à résonance. L'étude a été faite ici avec $\omega_0 = \omega_{kg}$, l'effet d'un écart à résonance change l'instant t_0 auquel la pulsation ω_{kg} arrive dans l'impulsion, rendant la spirale asymétrique.

4.2.4 Influence de la sonde

L'influence de la sonde sur des systèmes atomiques et moléculaires a été étudiée dans différents travaux théoriques [Metiu 90] et expérimentaux. En particulier, l'influence de sa longueur d'onde [Nicole 99, Katsuki 06] et de sa polarisation [Zamith 00] permet la sélection de différents chemins d'excitations. Le contrôle de sa phase a permis la sélection de l'état final de Li_2 [Dai 07] et dans des expériences CARS, « Coherent Anti-Stokes Raman Scattering », il a permis d'améliorer la partie « résonnante » du signal ainsi que la résolution spectrale [Dudovich 02b, Lim 05] et temporelle [Polli 09].

Nous allons étudier ici son influence sur les transitoires cohérents. En particulier, nous étudierons l'effet d'une phase quadratique sur le signal global en pointant les différences avec le système classique des *transitoires cohérents*. Nous verrons alors que le façonnage de la pompe et de la sonde entraîne des résultats très intéressants [Weber 10b].

4.2.4.1 Pompe courte-Sonde chirpée

La mesure de la population de l'état $|k\rangle$, et donc des transitoires cohérents peut se faire par mesure pompe-sonde. On utilise pour ça une impulsion femtoseconde courte devant la durée des oscillations. Nous avons montré (équation 4.32b) que l'évolution de

la population de l'état final, en fonction du délai τ , permet de retrouver la population de l'état intermédiaire. La résolution est alors donnée par la durée de la sonde. Considérons maintenant le cas symétrique où la sonde est chirpée et la pompe est limitée TF. Le cas classique correspond à la figure 4.5(a) et ce nouveau cas que nous allons étudier à la figure 4.5(b). On considère que l'impulsion pompe est très courte et peut être modélisée par un

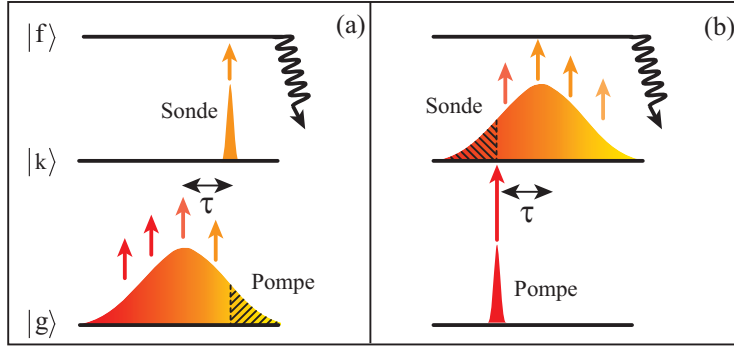


Figure 4.5 – Schéma de l'interaction Pompe-Sonde avec un système à trois niveaux. (a) correspond au cas classique des transitoires cohérents : état intermédiaire excité par une impulsion pompe chirpée et sa population mesurée par une sonde courte. (b) cas inverse avec une pompe courte et une sonde chirpée. Les parties hachurées représentent les fréquences ne participant pas à la dynamique.

Dirac. L'amplitude de probabilité de l'état final est donnée, aux temps longs, par (voir équation 4.21) :

$$a_f(\tau) = \frac{-\mu_{kg}\mu_{fk}}{4\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} dt' E_s(t' - \tau) e^{i\omega_{fk}(t' - \tau)} \int_{-\infty}^{t'} dt'' E_{0p}\delta(t'') e^{i\omega_{kg}t''} \quad (4.39)$$

L'équation se simplifie en notant que :

$$\int_{-\infty}^{t'} dt'' \delta(t'') e^{i\omega_{kg}t''} = \begin{cases} 1 & \text{pour } t' > 0 \\ 0 & \text{pour } t' < 0 \end{cases} \quad (4.40)$$

soit une amplitude :

$$a_f(\tau) \propto \int_0^{+\infty} dt' E_s(t' - \tau) e^{i\omega_{fk}(t' - \tau)} \quad (4.41a)$$

$$a_f(\tau) \propto \int_{-\tau}^{+\infty} dt' E_s(t') e^{i\omega_{fk}t'} \quad (4.41b)$$

La comparaison de cette équation avec celle des transitoires « normaux » (équation 4.37) permet de voir les rôles symétriques joués par la pompe et la sonde. Dans le cas normal

(figure 4.5(a)) la sonde fige l'évolution de l'amplitude de l'état intermédiaire à un délai τ par rapport à la pompe, les fréquences arrivant après ce délai ne sont pas prise en compte (zone hachurée sur la figure).

Dans le cas présent (figure 4.5(b)), la pompe joue un rôle de « déclencheur » dans l'évolution de la dynamique, et les fréquences de la sonde arrivant avant la pompe ne sont pas prise en compte. Cependant, si les rôles sont symétriques, la physique de l'interaction est plus délicate à analyser. En effet, le signal mesuré n'est pas relié à la dynamique de l'état final excité par l'impulsion chirpée, mais à sa valeur aux temps longs. Varier le délai τ modifie juste l'instant de départ de la dynamique. A noter que l'effet de la pompe sur la population de l'état intermédiaire est une simple marche dont la durée est de l'ordre de la durée de la pompe.

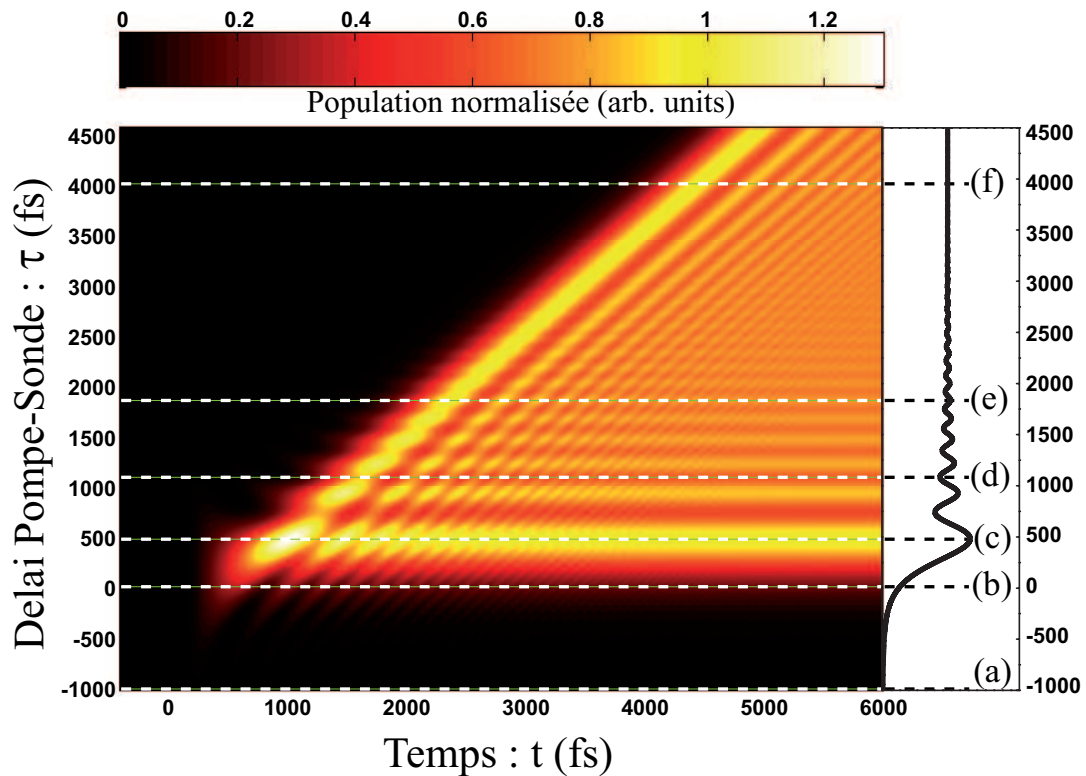


Figure 4.6 – Représentation de la population de l'état final en fonction du temps (t) et du délai pompe-sonde (τ) pour une impulsion pompe courte et une impulsion sonde chirpée $\phi^{(2)} = -5.10^4 \text{ fs}^2$. Le signal mesuré expérimentalement en fonction du délai correspond à la population aux temps longs et est tracé sur la droite de la figure. La dynamique de l'état final à différents délais est représentée par une coupe horizontale (pointillés blancs). Les lignes horizontales (pointillés blancs) donnent la dynamique de l'état final à différents délais. Ces dynamiques correspondent aux différents cas de la figure 4.7.

Pour mieux expliquer cette dynamique complexe la figure 4.6 représente la simulation de la population de l'état final en fonction du temps (t dans les équations) et du délai entre

les impulsions (τ). L'impulsion pompe a une durée de 50 fs et l'impulsion sonde a la même largeur spectrale mais une phase quadratique $\phi^{(2)} = -5.10^4 \text{ fs}^2$. Les deux impulsions sont résonnantes avec les niveaux atomiques. Une coupe horizontale donne l'évolution de $P_f(\tau)$ à un délai donné, pour ce délai le signal expérimental est celui obtenu aux temps longs. Le signal Pompe-Sonde complet est représenté à droite de la figure et est obtenu par une coupe verticale aux temps longs. On observe le même type d'oscillations que pour les transitoires classiques, cette courbe étant même superposable à celle de la figure 4.4. Les rôles joués par la pompe et la sonde sont symétriques.

Pour comprendre comment évolue le signal complet, des coupes horizontales à différents délais ont été faites (traits pointillés) et correspondent aux différents cas de la figure 4.7 ainsi qu'aux points rouges de la figure 4.4. La figure 4.7 représente dans la colonne de gauche l'évolution de la population de l'état final en fonction du temps. La colonne de droite représente dans le plan complexe, l'amplitude de probabilité. Chaque ligne correspond à un délai τ différent. Analysons en détail cette figure en commençant par les délais les plus longs :

- Au délai $\tau = 4000$ fs cas (f), l'impulsion pompe a transféré une partie de la population de l'état fondamental à l'état intermédiaire. Ainsi quand la sonde arrive, tout se passe comme pour un système à deux niveaux ($|k\rangle$ et $|f\rangle$) excité par une impulsion chirpée. La population en fonction du temps présente des oscillations de transitoires cohérents et l'amplitude est décrite par une spirale de Cornu. La fin de l'impulsion sonde correspondant à l'enroulement autour de la position asymptotique de l'amplitude.
- Au contraire pour un délai très négatif, la sonde arrive bien avant la pompe et n'a donc pas de population à transférer.
- Pour des délais positifs décroissants, $\tau = 1840$ fs cas (e), $\tau = 1090$ fs cas (d) et $\tau = 480$ fs cas (c), la pompe arrive de moins en moins en avance sur la sonde ; rognant de plus en plus la contribution des fréquences arrivant les premières et donnant l'enroulement autour de l'origine des spirales. Cependant la fin de la sonde participe toujours de la même manière. Cet effet est visible sur l'allure des spirales : leur enroulement autour de l'origine est très différent d'un délai à l'autre mais la fin est identique. La position de la fin des spirales change car la dynamique part toujours de l'origine (0,0). De plus, les pré-oscillations (particulièrement visibles dans le cas (d)) montrent bien que la dynamique de l'état final n'est pas un transitoire cohérent, mais une dynamique plus complexe.
- Au délai $\tau = 0$ fs (b), exactement la moitié de l'impulsion sonde participe à la dynamique et exactement la moitié de la spirale de Cornu est visible^a. De plus, dès que la population est transférée à l'état intermédiaire, à $t = 0$, la sonde est à résonance (car $\tau = 0$), transférant efficacement la population à l'état final. Le passage direct par la résonance donne une évolution de la spirale très importante dès le début.
- Enfin pour les délais négatifs $\tau = -1000$ fs (a), on observe de faibles oscillations et une population dans l'état stationnaire quasi-nulle.

a. En effet, la moitié des fréquences de la sonde ainsi que celle à résonance ont été « utilisées ».

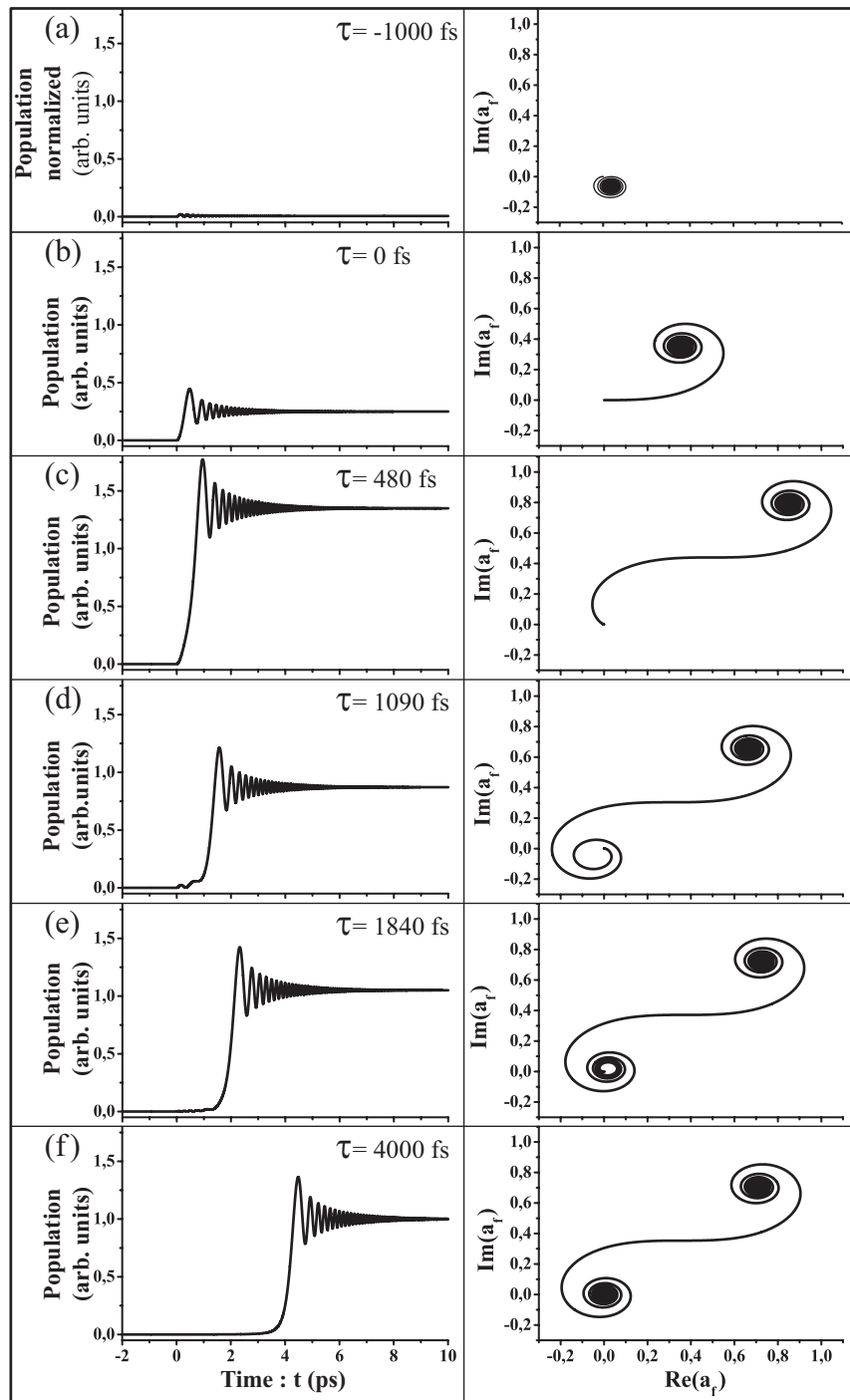


Figure 4.7 – Évolution de la population (colonne de gauche) et de l’amplitude de probabilité (colonne de droite) de l’état final en fonction du temps pour différents délais. Ces délais correspondent aux lignes pointillées de la figure 4.6.

L’analyse par les spirales de Cornu permet de montrer que le problème est complètement inversé. La dynamique se déroule comme un transitoire classique, mais dans le sens

opposé du temps : le départ de l'évolution semble commencer à la fin des spirales. La population de l'état final, en fonction du délai, est donc identique au cas classique car elle est proportionnelle au carré du module du rayon vecteur et donc ne dépend pas de la position de la spirale dans le plan complexe.

4.2.4.2 Cas général

En fait, il est intéressant de regarder l'évolution de la population dans le cas général d'une pompe **et** d'une sonde à dérive de fréquence qui peut s'exprimer de façon analytique. Cette expression ^b permet d'expliquer mathématiquement les comportements décrits dans la section précédente, de relier les paramètres physiques à la dynamique et d'envisager d'autres cas intéressants. Nous allons donc présenter son calcul puis discuterons de différents cas limites. On considère une pompe et une sonde à dérive de fréquence, de phase quadratique spectrale $\phi_p^{(2)}$ et $\phi_s^{(2)}$, données par :

$$E_p(t) = E_{0pc} e^{-\frac{t^2}{4\Delta t_{cp}^2}} e^{-i(\omega_{0p}t + \alpha_p t^2)} \quad (4.42a)$$

$$E_s(t) = E_{0sc} e^{-\frac{t^2}{4\Delta t_{cs}^2}} e^{-i(\omega_{0s}t + \alpha_s t^2)} \quad (4.42b)$$

où les différents paramètres ont été définis dans la section 4.2.3. En remplaçant ces expressions dans l'équation 4.31, on obtient :

$$a_f(\tau) = -\frac{\mu_{kg}\mu_{fk}}{4\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} dt E_s(t - \tau) e^{i\omega_{fk}t} \int_{-\infty}^t dt' E_p(t') e^{i\omega_{kg}t'} \quad (4.43)$$

On fait le changement de variable $t' \rightarrow t - t'$:

$$a_f(\tau) = -\mathcal{A}_f \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{-\beta_s(t-\tau)^2} e^{-i\delta_s(t-\tau)} \int_0^{+\infty} dt' e^{-\beta_p(t-t')^2} e^{-i\delta_p(t-t')} \quad (4.44)$$

où l'on a posé

$$\begin{cases} \mathcal{A}_f = \frac{\mu_{kg}\mu_{fk}E_{0pc}E_{0sc}}{4\hbar^2} e^{-i\delta_s\tau} \\ \beta_l = \frac{1}{4\Delta t_{cl}^2} + i\alpha_l, \quad (l = p, s) \\ \delta_p = \omega_{0p} - \omega_{kg} \\ \delta_s = \omega_{0s} - \omega_{fk} \end{cases} \quad (4.45)$$

β_l peut aussi s'exprimer par

$$\beta_l = \frac{e^{-i\theta_l}}{4\Delta t_{cl}\Delta t_{0l}} \quad (4.46a)$$

$$\theta_l = -\arctan\left(\frac{\phi_l^{(2)}}{2\Delta t_{0l}^2}\right) \quad (4.46b)$$

b. Le détail des calculs se trouvent dans la thèse de Sébastien Zamith, nous ne les reprenons que pour pouvoir relier les différents paramètres à la dynamique mesurée et étudier les cas limites.

Les deux intégrales peuvent alors être permutées et en regroupant les termes en t dans la seconde, l'équation devient :

$$a_f(\tau) = -\mathcal{A}_f \int_0^{+\infty} dt' e^{-\beta_p t'^2 + i\delta_p t' - \beta_s \tau^2 + i\delta_s \tau} \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{-(\beta_p + \beta_s)t^2 + t[2\beta_p t' + 2\beta_s \tau - i(\delta_p + \delta_s)]} \quad (4.47)$$

On reconnaît une gaussienne dans la seconde intégrale^c soit :

$$a_f(\tau) = -\frac{\mathcal{A}_f \sqrt{\pi}}{\sqrt{\beta_p + \beta_s}} \int_0^{+\infty} dt' e^{\frac{(\beta_p t' + \beta_s \tau - \frac{i}{2}(\delta_p + \delta_s))^2}{\beta_p + \beta_s} - \beta_p t'^2 - \beta_s \tau^2 + i\delta_p t' + i\delta_s \tau} \quad (4.48)$$

Que l'on peut écrire sous la forme :

$$a_f(\tau) = -\frac{\mathcal{A}_f \sqrt{\pi}}{\sqrt{\beta_p + \beta_s}} \int_0^{+\infty} dt' e^{-\beta t'^2 + \gamma t' + \nu} \quad (4.49)$$

avec

$$\begin{cases} \beta = \frac{\beta_p \beta_s}{\beta_p + \beta_s} \\ \gamma = \frac{2\beta_p \beta_s \tau - i\delta_s \beta_p + i\delta_p \beta_s}{\beta_p + \beta_s} \\ \nu = \frac{-\beta_p \beta_s \tau^2 + i\tau(\delta_s \beta_p - \delta_p \beta_s) - \frac{(\delta_p + \delta_s)^2}{4}}{\beta_p + \beta_s} \end{cases} \quad (4.50)$$

Cette intégrale se calcule en utilisant [Gradshteyn 80] :

$$\int_0^{+\infty} dt e^{-\beta t^2 + \gamma t} = \frac{\sqrt{\pi} e^{\frac{\gamma^2}{4\beta}}}{2\sqrt{\beta}} \left[1 - \operatorname{erf} \left(-\frac{\gamma}{2\sqrt{\beta}} \right) \right], \quad \operatorname{Re} \beta > 0 \quad (4.51)$$

où erf est la fonction erreur complexe définie [Gradshteyn 80] par $\operatorname{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^z dt e^{-t^2}$.

Après calcul et simplification on obtient :

$$a_f(\tau) = -\frac{\pi \mu_{kg} \mu_{fk} E_{0pc} E_{0sc} e^{-\frac{\delta_s^2}{4\beta_s} - \frac{\delta_p^2}{4\beta_p}} e^{-i\delta_s \tau}}{8\hbar^2 \sqrt{\beta_p \beta_s}} \left[1 - \operatorname{erf} \left(-\frac{\gamma \sqrt{\beta_p + \beta_s}}{2\sqrt{\beta_p \beta_s}} \right) \right] \quad (4.52)$$

Soit plus simplement pour l'amplitude et la population :

$$a_f(\tau) = -\frac{\mu_{kg} \mu_{fk} \tilde{E}_p(\omega_{kg}) e^{i\theta_p} \tilde{E}_s(\omega_{fk}) e^{i\theta_s} e^{-i\delta_s \tau}}{8\hbar^2} \left[1 - \operatorname{erf} \left(-\frac{\gamma \sqrt{\beta_p + \beta_s}}{2\sqrt{\beta_p \beta_s}} \right) \right] \quad (4.53a)$$

$$P_f(\tau) = \frac{\mu_{kg}^2 \mu_{fk}^2 \left| \tilde{E}_p(\omega_{kg}) \right|^2 \left| \tilde{E}_s(\omega_{fk}) \right|^2}{64\hbar^4} \left| 1 - \operatorname{erf} \left(-\frac{\gamma \sqrt{\beta_p + \beta_s}}{2\sqrt{\beta_p \beta_s}} \right) \right|^2 \quad (4.53b)$$

c. $\int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{-a^2 t^2 + bt} = \frac{\sqrt{\pi}}{a} e^{\frac{b^2}{4a^2}}$

L'évolution du système est donc reliée à la fonction erreur, elle-même reliée aux fonctions de Fresnel^d. La fonction $\text{erf}(x)$ est une fonction croissante. En $\pm\infty$, on peut calculer^e sa valeur qui vaut ± 1 . On a donc :

$$\begin{cases} \lim_{\tau \rightarrow -\infty} \text{erf}\left(-\frac{\gamma}{2\sqrt{\beta}}\right) = \text{erf}(+\infty) = 1 \Rightarrow a_f(\tau) = 0 \\ \lim_{\tau \rightarrow \infty} \text{erf}\left(-\frac{\gamma}{2\sqrt{\beta}}\right) = \text{erf}(-\infty) = -1 \Rightarrow a_f(\tau) = -\frac{\mu_{kg}\mu_{fk}\tilde{E}_p(\omega_{kg})e^{i\theta_{cp}}\tilde{E}_s(\omega_{fk})e^{i\theta_{cs}}e^{-i\delta_s\tau}}{4\hbar^2} \end{cases} \quad (4.54)$$

On retrouve le résultat classique : pas de transition pour des délais très négatifs et un régime stationnaire proportionnel au champ spectral à résonance. A ce stade, la dynamique peut être simulée facilement mais cette expression ne permet pas d'expliquer facilement le lien avec les paramètres physiques. Ainsi, j'ai poussé le calcul de S. Zamith plus loin pour faire apparaître un certain nombre de temps caractéristiques. L'argument de la fonction erreur peut se mettre sous la forme :

$$P_f(\tau) \propto \left| 1 - \text{erf}\left(-\frac{(\tau - \tau_r + i\tau_i)}{\tau_0}\right) \right|^2 \quad (4.55)$$

où l'on fait apparaître trois temps caractéristiques :

$$\tau_0 = \frac{1}{\sqrt{\beta}} = 2\sqrt{\Delta t_{0p}\Delta t_{cp}e^{i\theta_p} + \Delta t_{0s}\Delta t_{cs}e^{i\theta_s}} \quad (4.56a)$$

$$\tau_i = 2\text{Re}(\delta_p\Delta t_{cp}\Delta t_{0p}e^{i\theta_p} - \delta_s\Delta t_{cs}\Delta t_{0s}e^{i\theta_s}) \quad (4.56b)$$

$$\tau_r = 2\text{Im}(\delta_p\Delta t_{cp}\Delta t_{0p}e^{i\theta_p} - \delta_s\Delta t_{cs}\Delta t_{0s}e^{i\theta_s}) \quad (4.56c)$$

qui peuvent s'exprimer plus simplement en notant que :

$$\cos \theta_l = \frac{\Delta t_{0l}}{\Delta t_{cl}} \quad (4.57a)$$

$$\sin \theta_l = -\frac{\phi_l^{(2)}}{2\Delta t_{0l}\Delta t_{cl}} \quad (4.57b)$$

avec $l = p, s$ et en posant les grandeurs généralisée du problème :

$$\Delta t_0 = \sqrt{\Delta t_{0p}^2 + \Delta t_{0s}^2} \quad (4.58a)$$

$$\phi_{\text{gén.}}^{(2)} = \phi_p^{(2)} + \phi_s^{(2)} \quad (4.58b)$$

$$\Delta t_c = \Delta t_0 \sqrt{1 + \frac{\phi_{\text{gén.}}^{(2)2}}{4\Delta t_0^4}} \quad (4.58c)$$

Les temps caractéristiques s'expriment alors par :

$$\tau_0 = 2\sqrt{\Delta t_0\Delta t_c} \left[\sqrt{\frac{\Delta t_0 + \Delta t_c}{2\Delta t_c}} - i \frac{\phi_{\text{gén.}}^{(2)}}{4\Delta t_0^2} \right] \quad (4.59a)$$

$$\tau_i = 2(\delta_p\Delta t_{0p}^2 - \delta_s\Delta t_{0s}^2) \quad (4.59b)$$

$$\tau_r = \delta_s\phi_s^{(2)} - \delta_p\phi_p^{(2)} \quad (4.59c)$$

d. Ce qui explique, l'analogie avec la diffraction pour les oscillations des *transitoires cohérents*

e. En utilisant le même calcul de Gaussienne que précédemment.

Ces différents temps modifient l'allure du signal Pompe-Sonde :

- τ_0 est le temps caractéristique de l'évolution. Sa partie réelle donne la durée du régime transitoire ($\simeq \sqrt{2\Delta t_0 \Delta t_c}$) et sa partie imaginaire est responsable de la phase accumulée et des oscillations.
- τ_r est du à l'écart à résonance des deux impulsions. Il indique le temps de passage des fréquences de résonance dans les deux impulsions : le régime transitoire est donc décalé d'un temps τ_r .
- τ_i est aussi du à l'écart à résonance des deux impulsions et rajoute une phase constante. Dans le plan complexe, cette phase décale les extrémités de la spirale. On a un enroulement plus important autour de l'origine pour τ_i positif et plus important autour de l'asymptote pour τ_i négatif. Il est aussi responsable du pic de cross-corrélation visible sur la figure 4.8(a) et (d). A noter que ce temps ne dépend pas de la phase quadratique, l'effet est donc le même quelque soit la phase programmée.

A partir de ces expressions, nous allons décrire le comportement des différents cas limites en terme de ces temps caractéristiques. Les cas sont : (a) pompe et sonde courtes, (b) pompe courte et sonde chirpée, (c) le cas inverse et nous verrons que le cas (d) pompe et sonde chirpée de signe opposé est particulièrement intéressant car il implique $\phi_{\text{gén.}}^{(2)} = 0$.

Pour chaque cas, le tableau 4.1 donne les expressions simplifiées des différents temps caractéristiques, les valeurs approchées sont obtenues en considérant $\phi_l^{(2)} \gg \Delta t_{0l}$ pour $l = p, s$. De plus, la population et l'amplitude dans le plan complexe sont tracées en fonction du délai sur la figure 4.8. Les deux impulsions pompe et sonde ont des durées limitées TF de 50 fs FWHM et quand elles sont chirpées, ont une phase quadratique $\phi^{(2)} = \pm 1, 4 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$. Les populations sont normalisées par rapport à la valeur de leur état stationnaire. Enfin un code couleur correspond à des désaccords différents : en rouge désaccords nuls, en noir $\delta_p = 1, 1\Delta\omega_p$ et $\delta_s = -0, 8\Delta\omega_s$ et en bleu $\delta_p = -0, 7\Delta\omega_p$ et $\delta_s = +0, 3\Delta\omega_s$. Ces différentes valeurs, tout à fait arbitraires, permettent de voir l'effet des désaccords sur la dynamique. L'amplitude des courbes noires et bleues est translatée verticalement dans le plan complexe $(\pm 0, 4i)$ pour que les spirales ne soient pas confondues.

Cas (a) Dans le cas d'impulsions limitées par TF, le temps τ_0 est le double de la durée de cross-corrélation entre les deux impulsions. On obtient donc une évolution rapide de la population. Dans le cas d'un désaccord nul, il s'agit d'une simple marche. La mesure permet donc une caractérisation partielle des impulsions, en particulier de leur durée. τ_r est nul car toutes les fréquences arrivent en même temps dans une impulsion limitée TF, il n'y a pas de « retard » de la fréquence de résonance. τ_i est la partie imaginaire des contributions hors résonances. En effet, si les impulsions ne sont pas accordées sur les résonances, à $\tau = 0$, il n'y a pas interférences destructives complètes des fréquences non-résonnantes (voir équation 4.30). On obtient un pic dans l'évolution de la population à ce délai, connu sous le nom de pic de cross-corrélation [Hertel 06]. Enfin il peut arriver que les désaccords se compensent (signe moins dans l'équation 4.59c) redonnant alors juste une marche. L'effet du désaccord est visible

Cas	Caractéristiques	τ_0	τ_r	τ_i
(a)	Pompe courte Sonde courte	$2\sqrt{\Delta t_{0p}^2 + \Delta t_{0s}^2}$	0	$2(\delta_p \Delta t_{0p}^2 - \delta_s \Delta t_{0s}^2)$
(b)	Pompe chirpée Sonde courte	$\simeq \sqrt{ \phi_p^{(2)} }(1 - i)$	$-\delta_p \phi_p^{(2)}$	$2(\delta_p \Delta t_{0p}^2 - \delta_s \Delta t_{0s}^2)$
(c)	Pompe courte Sonde chirpée	$\simeq \sqrt{ \phi_s^{(2)} }(1 + i)$	$+\delta_s \phi_s^{(2)}$	$2(\delta_p \Delta t_{0p}^2 - \delta_s \Delta t_{0s}^2)$
(d)	Pompe chirpée Sonde chirpée ($\phi_s^{(2)} = -\phi_p^{(2)}$)	$2\sqrt{\Delta t_{0p}^2 + \Delta t_{0s}^2}$	$-(\delta_p + \delta_s)\phi_p^{(2)}$	$2(\delta_p \Delta t_{0p}^2 - \delta_s \Delta t_{0s}^2)$

Table 4.1 – Temps caractéristiques de la dynamique pour quatre cas différents. (a) pompe et sonde courtes, (b) pompe courte et sonde chirpée, (c) le cas inverse et (d) pompe et sonde chirpées de signes opposés. Les deux valeurs approchées de τ_0 sont obtenues en considérant que $\phi_l^{(2)} \gg \Delta t_{0l}$ pour $l = p, s$.

sur la figure 4.8(a) par un pic de cross-corrélation plus marqué dans le cas noir que dans le cas bleu. De même l’excursion de l’amplitude dans le plan complexe est plus importante pour le cas noir.

Cas (b) L’évolution de la population, visible figure 4.8(b) se fait avec un temps caractéristique $Re(\tau_0) = \sqrt{2\Delta t_{0p}\Delta t_{cp}} = \sqrt{|\phi^{(2)}|} = 375$ fs $\gg \Delta t_{0p}$ auquel vient s’ajouter une variation très rapide de la phase responsable des oscillations. Le désaccord joue ici deux rôles : premièrement il décale les transitoires d’un temps $\tau_r = 3,6$ ps pour la courbe noire et $\tau_r = -2,3$ ps pour la courbe bleue. Ces temps correspondent aux temps de groupe de la pulsation ω_{kg} , soit le passage de la fréquence de résonance dans l’impulsion chirpée. Deuxièmement il augmente ou diminue les oscillations selon le signe de τ_i ce qui se voit clairement sur les spirales correspondantes.

Cas (c) Les évolutions de la population et de l’amplitude de probabilité sont visibles figure 4.8(c) pour un chirp $\phi_s^{(2)} = -1,4 \cdot 10^5$ f s². On obtient exactement la même dynamique que dans le cas opposé pompe chirpée et sonde courte, cas (2). Comme le désaccord de la sonde est différent de celui de la pompe, seules les valeurs de τ_r et τ_i change. L’augmentation et la diminution des oscillations sont inversées et les délais des régimes transitoires sont modifiés : $\tau_r = -2,6$ ps pour la courbe noire et $\tau_r = 0,9$ ps pour la courbe bleue.

Cas (d) L’évolution de la population est visible sur la figure 4.8(d) se fait sur une durée $2\sqrt{2}\Delta t_0$, durée de cross-corrélation des durées limitées TF des impulsions. En cela, on obtient exactement la même dynamique que le cas pompe et sonde courtes. Cependant ici, les impulsions ont des durées de plusieurs picosecondes ($\Delta t_c = 3,3$ ps). Il est important de noter qu’on est alors capable d’obtenir une dynamique très courte avec des impulsions très longues, ce qui remet en cause le schéma habituel pompe

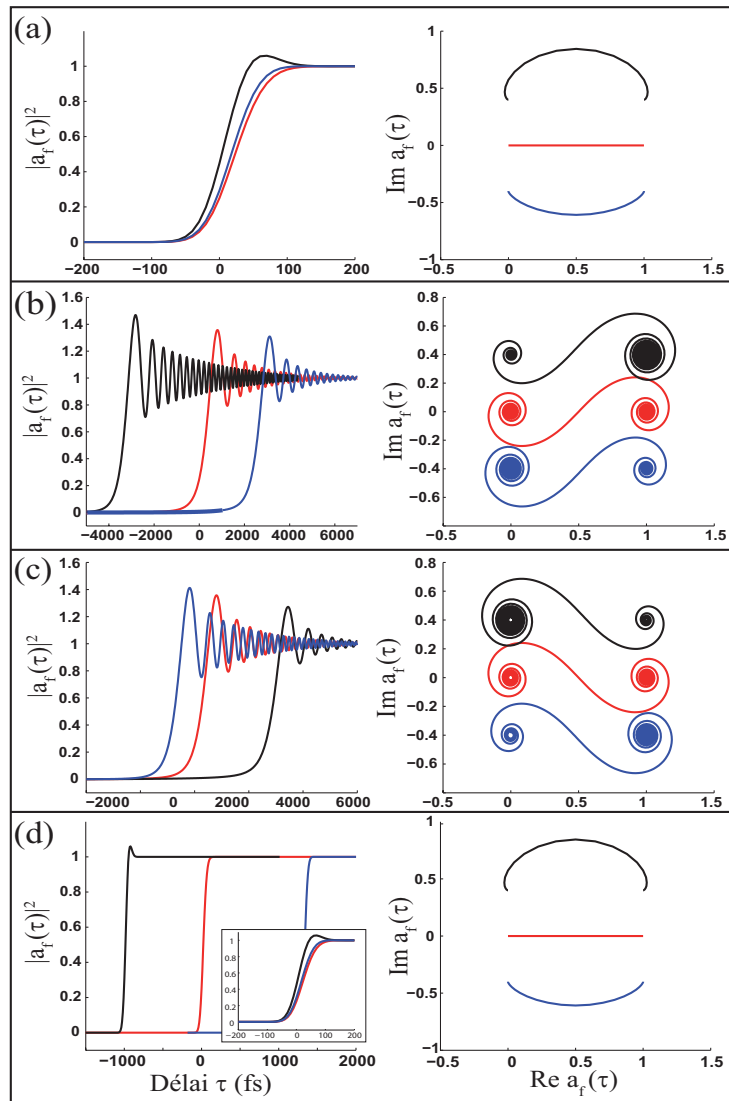


Figure 4.8 – Évolution de la population en fonction du délai pompe-sonde (à gauche) et de l'amplitude dans le plan complexe (à droite) pour quatre cas limites. (a) pompe et sonde courtes, (b) pompe courte et sonde chirpée, (c) le cas inverse et (d) pompe et sonde chirpées de signes opposés. L'encadré représente les mêmes courbes que (d) mais décalées temporellement de leur temps τ_r ce qui permet de bien les comparer aux courbes (a). Les impulsions pompe et sonde utilisées ont des durées limitées TF de 50 fs FWHM et quand elles sont chirpées, ont une phase quadratique $\phi^{(2)} = \pm 1,4 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$. Les populations sont normalisées par rapport à la valeur de leur état stationnaire. Enfin un code couleur correspond à des désaccords différents : en rouge désaccords nuls, en noir $\delta_p = 1,1\Delta\omega_p$ et $\delta_s = -0,8\Delta\omega_s$ et en bleu $\delta_p = -0,7\Delta\omega_p$ et $\delta_s = +0,3\Delta\omega_s$. Enfin, l'amplitude est translatée verticalement dans le plan complexe ($\pm 0,4i$) pour les courbes noires et bleues.

excitatrice, mise en forme, et sonde courte.

Il est alors possible d'envisager d'utiliser une sonde mise en forme compensant la

phase résiduelle de la pompe. La seule restriction est d'avoir une bande spectrale de la sonde suffisante pour que sa durée TF soit de l'ordre de la durée des variations de la dynamique à mesurer. A noter que l'on obtient le même pic de cross-corrélation dû au temps τ_i mais que contrairement au cas pompe et sonde courte, le désaccord déplace temporellement le régime stationnaire $\tau_r \neq 0$. L'encadré représente les mêmes courbes mais décalées temporellement de leur temps τ_r ce qui permet de bien les comparer aux courbes avec deux impulsions limitées TF.

Cette compensation des phases peut aussi être comprise par l'analyse de l'équation 4.30 donnant la population en fonction des champs spectraux :

$$P_f(\tau) \propto \left| \pi \tilde{E}_p(\omega_{kg}) \tilde{E}_s(\omega_{fk}) + i \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \frac{\tilde{E}_p(\omega_{0p} + \Omega) \tilde{E}_s(\omega_{0s} - \Omega)}{\Omega + \delta_k} e^{-i(\Omega + \delta_k)\tau} \right|^2 \quad (4.60)$$

En regardant le détail de la phase totale du terme de droite, on a :

$$e^{i\phi_p(\omega_{0p} + \Omega)} e^{i\phi_s(\omega_{0s} - \Omega)} = e^{i\left(\frac{\phi_p^{(2)}}{2}(\omega_{0p} + \Omega - \omega_{0p})^2 + \frac{\phi_s^{(2)}}{2}(\omega_{0s} - \Omega - \omega_{0s})^2\right)} \quad (4.61)$$

où l'on a exprimé la phase spectrale quadratique des impulsions. En notant que $\phi_p^{(2)} = -\phi_s^{(2)}$ la somme des phases se réduit à zéro, soit une population

$$P_f(\tau) \propto \left| \pi A_p(\omega_{kg}) A_s(\omega_{fk}) + i \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \frac{A_p(\omega_{0p} + \Omega) A_s(\omega_{0s} - \Omega)}{\Omega + \delta_k} e^{-i(\Omega + \delta_k)\tau} \right|^2. \quad (4.62)$$

Cette expression est identique au signal Pompe-Sonde utilisant deux impulsions de même spectre mais limitée TF. On voit ici que les phases se compensent exactement. De manière plus générale, on peut montrer que les ordres de phase pairs $\phi^{(2n)}$ de signes opposés se compensent ainsi que les ordres impairs $\phi^{(2n+1)}$ de même signes.

4.2.4.3 Principe de l'expérience

Pour illustrer ces différents aspects, une expérience a été réalisée dans une vapeur d'atomes de Rubidium. Le principe de l'expérience est schématisé sur la figure 4.9 avec les détails expérimentaux. L'impulsion pompe courte, centrée à 808 nm, excite la transition $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2}$ à 795 nm. Une mise en forme de l'amplitude permet de supprimer la fréquence de transition vers l'autre niveau du doublet de structure fine ($5P_{3/2}$) à 780 nm ainsi que celle de la transition à deux photons directe vers les niveaux $5D_{3/2}$ et $5D_{5/2}$ à 778 nm. Après un délai τ , la sonde centrée à 603 nm et étirée temporellement vient porter l'atome vers les niveaux supérieurs (ns, n'd). La cascade radiative de ces états vers le fondamental produit un signal de fluorescence à 420 nm via le niveau 6p détecté par un photo-multiplicateur. Le tableau 4.2 regroupe l'ensemble des données relatives aux niveaux impliqués dans le schéma d'excitation : longueurs d'ondes associées aux transitions, moments dipolaires de transition et le taux de fluorescence vers l'état 6p. Le dispositif

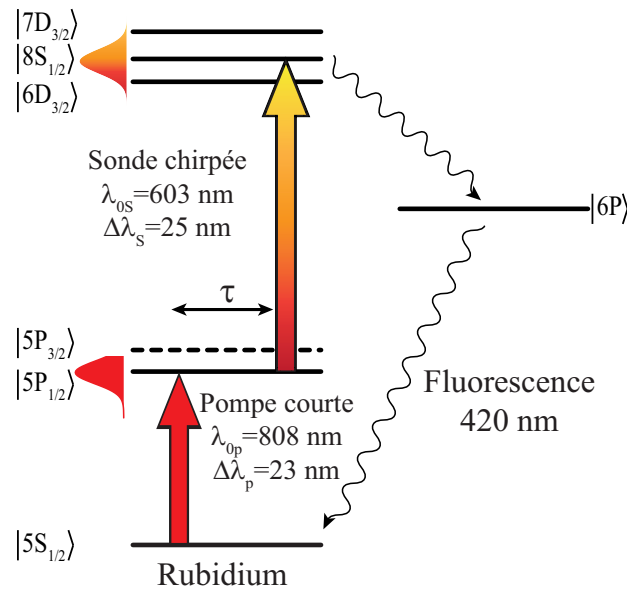


Figure 4.9 – Principe de l'expérience pompe-Sonde sur l'atome de Rubidium.

États	Longueur d'onde de transition (nm)	Moment dipolaire de transition (C.m)	Taux de fluorescence vers l'état 6p (%)
$5P_{1/2}$	794,98	$1,467.10^{-29}$	/
$6D_{3/2}$	620,08	$-3,511.10^{-30}$	6
$8S_{1/2}$	607,24	$-1,604.10^{-30}$	26
$7D_{3/2}$	564,93	$-2,570.10^{-30}$	12

Table 4.2 – Longueurs d'ondes de transitions et moments dipolaires impliqués dans l'expérience. La dernière colonne donne le taux de fluorescence vers l'état 6p dont on détecte la fluorescence.

expérimental est représenté sur la figure 4.10 et le système laser est décrit au chapitre 1.

En sortie de chaîne, on dispose d'impulsions limitées TF de durée 50 fs et d'énergie 1 mJ^f centrée à 808 nm. Une partie du faisceau passe par notre façonneur à cristaux liquides permettant le façonnage en amplitude et/ou en phase [Monmayrant 04]. On obtient environ 20 μ J pour l'impulsion pompe. Le reste du faisceau injecte un NOPA, produisant une impulsion sonde centrée à 603 nm, de largeur spectrale 25 nm (durée limitée TF de 21 fs FWHM) et d'énergie 5 μ J. Les deux impulsions ont un désaccord à résonance : $\delta_s = -4 \text{ nm} = +0,02 \text{ rad/fs}$ et $\delta_s = 13 \text{ nm} = -0,038 \text{ rad/fs}$. La longueur d'onde de la sonde ainsi que sa largeur spectrale permet de limiter l'étude à un seul niveau final, ce qui évite d'avoir des transitions à désaccord variable, ce qui change les transitoires cohérents [Zamith 01a]. L'impulsion sonde est directement envoyée dans un étireur à réseaux en double passage. Cet élément introduit une dispersion négative majoritairement quadratique

f. la chaîne produit 3 mJ au total mais est partagée entre plusieurs bancs d'expériences.

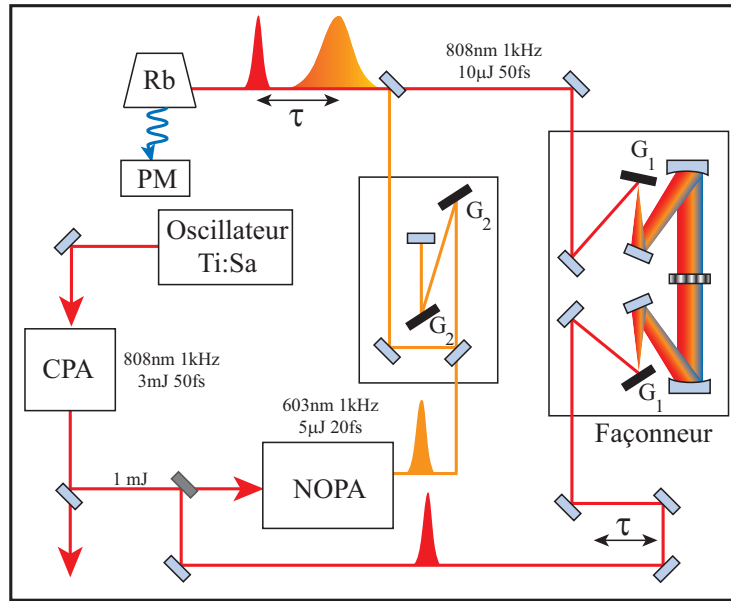


Figure 4.10 – Dispositif expérimental : G2 réseaux avec 600 traits/mm. G1, réseaux de 2000 traits/mm. NOPA : Amplificateur Paramétrique optique Non-collinéaire, PM : photo-multiplificateur, CPA : « Chirped pulse amplification » chaîne amplifiée à dérive de fréquence.

donnée par

$$\phi^{(2)} = -\frac{L\lambda_0^3}{\pi c^2 d^2 \cos^3 \theta_d} \quad (4.63)$$

avec dans notre cas $1/d = 600$ traits/mm, un angle proche de Littrow, et $L=50$ cm la distance entre réseaux. On obtient alors une dispersion $\phi^{(2)} = -1,4 \cdot 10^5$ fs², soit une durée de la sonde $\Delta t_c = 3,5$ ps ($\Delta t_{c\frac{1}{2}} = 8.2$ ps). Les deux faisceaux sont alors recombinaés dans une cellule de vapeur de Rubidium avec un léger angle et un délai τ réglable leur est appliqué par une table de translation motorisée micro-métrique.

La cellule de longueur 80 mm est fermée par des fenêtres, d'épaisseur 3 mm, placées en incidence de Brewster pour minimiser les réflexions. Elle est constituée de deux parties : le queusot, contenant du rubidium solide, et le corps dans lequel se trouve le rubidium gazeux et où a lieu l'interaction. La pression de vapeur dans la cellule est contrôlée par le température du queusot (69 °C, soit une pression d'environ $2,67 \cdot 10^{-3}$ Pa). On impose un gradient de température entre le corps (80 °C) et le queusot pour éviter les points froids et un dépôt de rubidium sur les fenêtres.

Enfin la fluorescence est collectée, orthogonalement aux faisceaux lasers, par deux lentilles de grandes ouvertures, et filtrée spectralement par un verre coloré. Elle est alors détectée par un photo-multiplificateur relié à un intégrateur de type « BoxCar ».

4.2.4.4 Résultats

La figure 4.11 représente l'intensité collectée (points noirs) en fonction du délai pompe sonde. L'évolution de la population a été normalisée à sa valeur stationnaire. Une étude de puissance permet d'assurer une interaction perturbative. Les oscillations correspondent

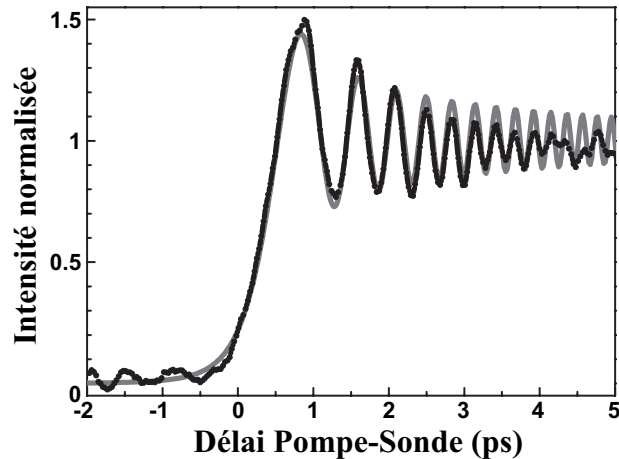


Figure 4.11 – Intensité de fluorescence détectée dans le Rubidium. Dynamique pompe sonde avec excitation par une pompe courte, 50 fs FWHM et détection par une sonde à dérive de fréquence $\phi_s^{(2)} = -1,4 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$ (points et courbe noirs). La théorie est représentée par la ligne grise. Les courbes sont normalisées par rapport à leur valeur stationnaire.

bien aux transitoires cohérents « classiques ». Leur contraste est excellent et la théorie (trait grisé), obtenue en utilisant les différents paramètres expérimentaux, ajuste bien la courbe expérimentale. Seul le délai a été ajusté ainsi que l'amplitude relative pour superposer les courbes. Cette première expérience montre bien le rôle symétrique joué par la pompe et la sonde dans la mesure du régime transitoire.

Par contre elle remet en question le fait bien établi selon lequel la mesure de la dynamique d'un état ne peut se faire qu'avec une pompe mise en forme et une sonde courte. Pour démontrer le côté non-dissociable de la pompe et de la sonde, des valeurs croissantes de phase quadratique ont été appliquées sur la pompe par le façonneur pour atteindre finalement une dérive de fréquence opposée à celui de la sonde. La figure 4.12 (à gauche) regroupe les différents résultats avec $\phi_s^{(2)} = -1,4 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$ pour la sonde et des chirps positifs croissants pour la pompe, (a) $\phi_p^{(2)} = 0 \text{ fs}^2$, (b) $\phi_p^{(2)} = 1,0 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$, (c) $\phi_p^{(2)} = 1,2 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$, (d) $\phi_p^{(2)} = 1,4 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$ et (e) $\phi_p^{(2)} = 1,5 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$. La simulation correspondante est présentée à droite avec les cas supplémentaires (b') $\phi_p^{(2)} = 1,1 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$ et (c') $\phi_p^{(2)} = 1,3 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$.

On observe une diminution des oscillations jusqu'à leur extinction (cas (d) et (e)). On obtient pour le cas (d) un temps de montée très court de l'ordre de 60 fs. Cependant, étant données les contraintes sur le système laser, la pompe présente un large désaccord ($\simeq 13 \text{ nm}$) à résonance d'où la présence d'un important pic de crosscorrélacion. A noter que le cas (e) ne présente ni oscillation ni pic, ce que nous pensons être dû à la compensation

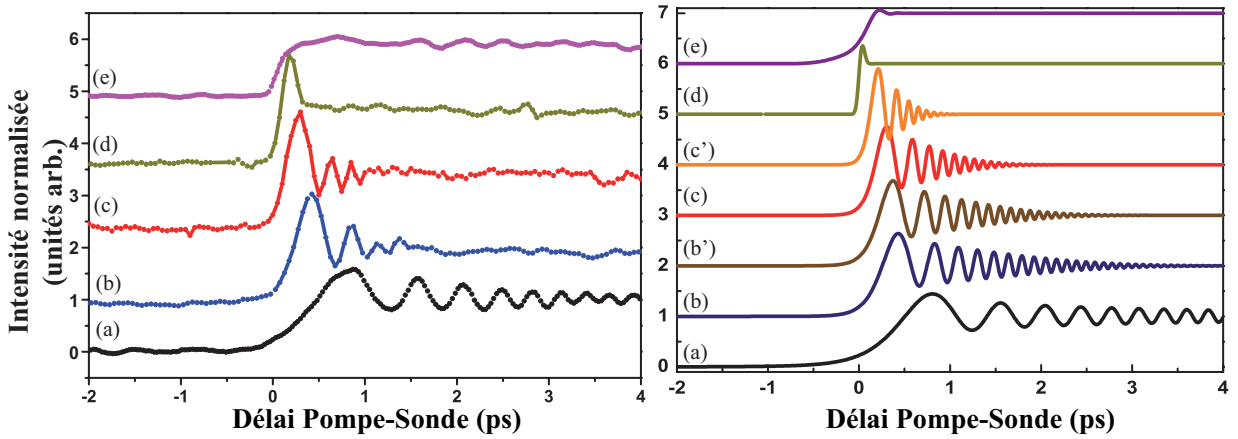


Figure 4.12 – Intensité de fluorescence détectée dans le Rubidium (à gauche) et simulations (à droite). Les transitoires sont obtenus avec une sonde chirpée $\phi_s^{(2)} = -1,4 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$ et des valeurs croissantes de la phase quadratique de la pompe : (a) $\phi_p^{(2)} = 0 \text{ fs}^2$, (b) $\phi_p^{(2)} = 1,0 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$, (c) $\phi_p^{(2)} = 1,2 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$, (d) $\phi_p^{(2)} = 1,4 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$ et (e) $\phi_p^{(2)} = 1,5 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$. Les courbes sont normalisées par rapport à leur valeur stationnaire et translattées pour plus de visibilité. Les deux courbes supplémentaires simulées correspondent aux cas intermédiaires (b') $\phi_p^{(2)} = 1,1 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$ et (c') $\phi_p^{(2)} = 1,3 \cdot 10^5 \text{ fs}^2$.

mutuelle des dérives de fréquence et des désaccords^g. Le temps de montée dans ce cas est plus long que dans le cas (d).

Il faut noter que l'accord entre la théorie et l'expérience est globalement bon. En particulier, la disparition progressive des oscillations est obtenue ainsi que la présence du pic de cross-corrélation. Cependant de manière générale les oscillations théoriques sont légèrement plus importantes que dans l'expérience et durent plus longtemps. Après environ 2 ps, il n'y a plus d'oscillation excepté sur la courbe (a) qui présente un très bon contraste. Enfin, le pic de cross-corrélation du cas (d) est moins important dans la théorie que dans l'expérience. Nous avons joué sur les différents paramètres afin de l'augmenter, mais les autres résultats ne correspondaient plus. Les différences observées peuvent aussi provenir de l'existence de la réplique due aux interstices. En effet, quand la pompe est très chirpée, l'amplitude de cette réplique n'est plus négligeable et produit des oscillations du type (a). Les deux impulsions, sonde et réplique, sont produites deux dynamiques différentes dont les interférences peuvent expliquer l'amortissement plus rapide des oscillations.

Ce système permet deux applications immédiates : la première est de pouvoir mesurer une dynamique courte en utilisant une impulsion sonde qui n'est pas forcément limitée TF. Pour cela, il suffit que la phase de la sonde soit compensée par la mise en forme de la pompe où inversement. La résolution temporelle de la mesure n'est plus donnée par la durée de la sonde mais par sa durée limitée TF [Polli 09]. La conclusion est qu'il n'y a pas nécessairement besoin d'avoir des impulsions limitées TF au niveau de l'échantillon pour

g. L'analyse théorique ne permet pas de l'affirmer.

mesurer sa dynamique. Bien sûr, nous nous sommes placés ici dans le cas simple d'un état électronique atomique à durée de vie longue. Ce type d'expérience appliquée aux molécules ou à des états larges en énergie doit prendre en compte le caractère non-trivial du système.

La deuxième application est la caractérisation de la phase d'une impulsion inconnue. En effet, quand les phases (quadratiques dans notre exemple) se compensent, on observe un temps de montée du régime transitoire extrêmement court (durée de cross-corrélation des impulsions limitées TF correspondantes). On peut donc, en scannant les paramètres de phases de la sonde, retrouver la phase opposée de la pompe^h.

La résolution d'une telle mesure dépend de deux paramètres principaux : le premier est la possibilité de varier finement la phase de l'impulsion et la seconde est l'estimation de la compensation. La différence de phase entre les cas (d) et (e) précédents est de l'ordre de 10%. Cette résolution peut être améliorée mais dépend de la détermination du temps de montée.

Enfin cette caractérisation n'est pas limitée dans un domaine de longueur d'onde particulier (comme de nombreux dispositifs de caractérisation) ce qui en fait son intérêt mais nécessite tout de même une transition atomique voir un continuum. En effet, nous allons montrer dans la section suivante, que l'utilisation des harmoniques d'ordres élevées est possible et que l'on peut ainsi (théoriquement) appliquer le schéma précédent à ce type d'impulsion.

4.2.5 Transitions vers un continuum et Harmoniques d'ordres élevés

La génération des harmoniques d'ordres élevés, HHG pour « High Harmonics Generation », est un champ de recherche grandissant incluant la nouvelle atto-physique [Krausz 09]. Les harmoniques ont été utilisées comme pompe [Strasser 06, Haber 09] ou comme sonde [Baker 06, Pfeifer 08] principalement dans des expériences de spectroscopie. Cette section ne représente pas un travail de spécialiste du domaine mais propose quelques idées d'utilisation des harmoniques pour le contrôle cohérent tel que nous l'avons vu précédemment.

L'idée est d'utiliser le champ harmonique comme étape sonde dans l'étude de dynamique femtoseconde. Comme le rayonnement harmonique est dans l'UV, il va le plus souvent ioniser l'atome ou la molécule. Nous allons donc d'abord montrer sous quelles conditions le schéma précédent, pompe courte et sonde chirpée, peut être mis en œuvre. Puis si le chirp intrinsèque des harmoniques [Mauritsson 04, Mairesse 05] ainsi que le transfert de phase permettent l'obtention de *transitoires cohérents*. Nous verrons ensuite une proposition de façonnage par saut de phase.

4.2.5.1 Transition vers un continuum

Le système pompe-sonde étudié est schématisé sur la figure 4.13. On considère le système classique mais avec une sonde qui ionise l'atome en portant l'électron dans un continuum d'état ε . L'ionisation est considérée comme une somme incohérente sur toutes

h. Phase opposée pour les ordres pairs et même phase pour les ordres impairs.

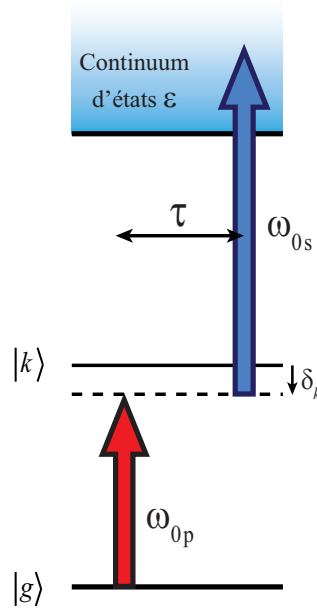


Figure 4.13 – Schéma de la transition à 2 photons avec une étape sonde ionisante vers un continuum.

les transitions possibles, il faut donc intégrer le résultat classique (état lié) sur toutes ces transitions c'est à dire sur le spectre de la sonde. Le signal total de photo-électron détecté en fonction de τ , $S(\tau)$, s'écrit :

$$S(\tau) = \int_0^\infty d\omega_\varepsilon |a_\varepsilon(\tau)|^2 \quad (4.64)$$

où $a_\varepsilon(\tau)$ est l'amplitude transférée sur un état ε d'énergie $\hbar\omega_\varepsilon$ et est semblable à l'équation 4.53a :

$$a_\varepsilon(\tau) = -\frac{\mu_{kg}\mu_{fk}\tilde{E}_p(\omega_{kg})e^{i\theta_p}\tilde{E}_s(\omega_\varepsilon)e^{i\theta_s}e^{-i\delta_s\tau}}{8\hbar^2} \left[1 - \operatorname{erf} \left(-\frac{(\tau - \tau_r + i\tau_i)}{\tau_0} \right) \right]. \quad (4.65)$$

Le signal de photo-électron est finalement proportionnel à :

$$S(\tau) \propto \int_0^\infty d\omega_\varepsilon \left| \tilde{E}_s(\omega_\varepsilon) \right|^2 \left| 1 - \operatorname{erf} \left(-\frac{(\tau - \tau_r + i\tau_i)}{\tau_0} \right) \right|^2. \quad (4.66)$$

Dans le cas d'une sonde courte limitée par TF, la dynamique de chaque transition est identique, ainsi le signal total de photoélectron donne un signal de *transitoires cohérents*. Ce genre de système pompe-sonde avec sonde courte ionisante a été utilisé dans notre groupe [Zamith 01a], et permet de faire un suivi de la dynamique. Nous allons maintenant voir l'effet d'une impulsion sonde chirpée.

4.2.5.2 Les harmoniques comme Sonde chirpée

Dans le cas d'une sonde chirpée, la somme précédente est une somme incohérente de *transitoires cohérents* dont :

- la valeur stationnaire décrit le spectre de la sonde
- Le désaccord à résonance $\delta_s = \omega_{0s} - \omega_\varepsilon$ variable induit un décalage temporel des transitoires à travers τ_r
- il induit aussi une asymétrie de la phase rendant les spirales asymétrique de part et d'autre de ω_{0s} .

L'équation 4.66 permet de prévoir l'allure de la dynamique mesurée. Si la sonde est chirpée et la pompe courte, alors il va y avoir un brouillage des différents *transitoires cohérents* dû à leur décalage temporel. La figure 4.14 représente deux cas de figure : en (a) pompe chirpée-sonde courte et en (b) pompe courte-sonde chirpée (encart). Le chirp appliqué vaut $\pm 1.10^5 \text{ fs}^2$ et les impulsions sont les mêmes que dans l'expérience précédente (section 4.2.4.3). En (a), la dynamique est bien un *transitoire cohérent* similaire à ceux

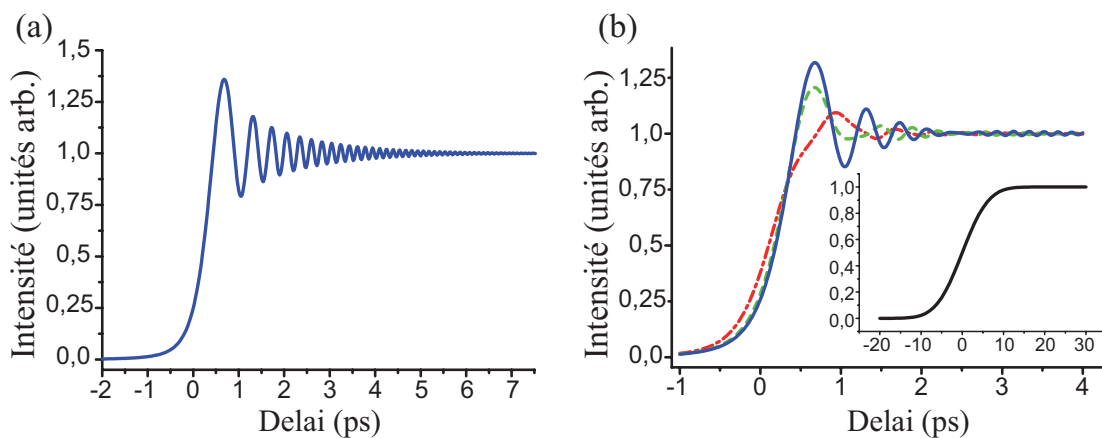


Figure 4.14 – Signal de photoélectron correspondant au schéma 4.13. En (a) la pompe est chirpée et la sonde est courte. En (b) on a le cas inverse pour différentes tranches de photo-électrons autour de la fréquence centrale. Avec tout le spectre (encart), une bande de 6,9 meV (courbe trait-point), une bande de 3,5 meV (courbe pointillée) et une bande de 1,7 meV (courbe continue).

obtenus par fluorescence d'un état final lié. Dans le second cas, la dynamique mesurée, due au décalage τ_r proportionnel à la phase quadratique, est très longue (plusieurs ps). On ne peut donc extraire aucune information sur le système ni le contrôler.

Cependant cela n'est plus vrai si on crée un état lié virtuel dans le continuum. En effet, si on sélectionne une tranche d'énergie autour de $\omega_{0s} - \text{IP}$ (avec IP le potentiel d'ionisation) dans le continuum alors on peut retrouver la dynamique habituelle. La figure 4.14(b) représente le signal de photo-électron obtenu en sélectionnant respectivement tout le spectre (encart), une bande de 6,9 meV (courbe trait-point), une bande de 3,5 meV (courbe pointillée) et une bande de 1,7 meV (courbe continue). On voit qu'avec un filtrage (résolution) suffisant, la dynamique est bien un *transitoire cohérent*. Il n'y a donc pas de limitation par rapport au cas classique avec état final lié.

La sonde ionisante peut alors être une impulsion de type HHG ou même attoseconde. Seule la résolution de l'état virtuel détermine la bonne reconstruction des transitoires. En

particulier il faut que le décalage temporel $\tau_r = \phi_s^{(2)}\delta_s$ (voir tableau 4.1) maximal soit petit devant la durée minimale de variation du signal, de l'ordre de Δt_0 , soit

$$\delta_s \ll \frac{\Delta t_0}{\phi_s^{(2)}} \quad (4.67)$$

ce qui fixe la résolution nécessaire du signal de photo-électron.

D'un point de vue expérimental la résolution des spectres de photo-électrons est de l'ordre de 60 meV pour un VMI [Thiré 10], « Velocity Map Imaging », et de l'ordre de 100 meV pour un TOF [Wiley 55], « Time of Flight Spectrometer ». Une résolution de 60 meV correspond à $\delta_{s\max} = 0.091 \text{ rad}\cdot\text{fs}^{-1}$ et donc

$$\phi^{(2)} \leq 11\Delta t_0 \quad (4.68)$$

soit $\phi^{(2)} \simeq 550 \text{ fs}^2$ pour une durée de 50 fs. Cette valeur ne donne malheureusement pas d'oscillations visibles.

Pour pouvoir utiliser l'ionisation comme étape sonde tout en gardant la résolution temporelle nécessaire à la mesure, il faut donc un détecteur ayant une résolution en énergie suffisante. Cela étant, les résultats démontrés avec un état lié restent valables. Regardons maintenant si il est possible de contrôler la phase des harmoniques, en particulier y appliquer un chirp.

4.2.5.3 La phase des harmoniques

On suppose ici que l'on a un détecteur ayant une résolution suffisante pour visualiser une dynamique transitoire. Pour que les oscillations soient visibles et donc que le contrôle par des harmoniques soit efficace, le chirp doit être suffisamment important. Reste à savoir comment produire des harmoniques chirpées.

On peut noter tout d'abord que les harmoniques ont un chirp intrinsèque dû au processus de génération. Mairesse et al. [Mairesse 05] ont par exemple mesuré un paramètre de chirp $\alpha = -4,8 \cdot 10^{-3} \text{ fs}^2$ sur l'harmonique 11 dans l'argon. De plus Mauritsson et al. [Mauritsson 04] ont montré le transfert de phase entre le fondamental et les harmoniques. Cependant la variation de durée des impulsions mesurée implique un chirp bien inférieur à celui nécessaire à la production de transitoires cohérents. De cette manière, il semble compromis de pouvoir avoir une phase suffisante pour modifier la dynamique de notre système. Cela s'explique par le processus de génération, si l'impulsion génératrice d'harmoniques est trop façonnée, elle n'aura plus l'intensité nécessaire à leur production. On ne peut donc pas appliquer une phase aussi importante qu'on le veut.

Une autre façon de mettre en forme le champ harmonique a été proposée par le groupe de Stephen Leone [Strasser 06]. Ils utilisent la dispersion induite par la propagation de l'harmonique 15 dans un milieu résonnant [Dudovich 02a], ici l'hélium, pour modifier sa phase spectrale. Ce façonnage induit alors une dynamique transitoire de l'état excité dans un autre gaz d'hélium. Cette dynamique est similaire aux transitoires cohérents et les mêmes résultats ont été obtenus dans le visible [Jacquey 03, Bouchene 04].

Le façonnage de l'impulsion génératrice a été utilisé pour maximiser la génération d'harmoniques [Boyko 07], de plus les expériences précédentes montrent qu'il est possible de façonner les harmoniques pour les utiliser dans des schémas de contrôle cohérent. Cependant, les valeurs de phases, en particulier quadratique, ne permettent pas encore de mettre en œuvre les schémas décrits dans la section précédente. Il n'est cependant pas interdit de songer à des façonnages différents tels que sauts de phase et ordres du développement de Taylor plus élevés.

L'obtention d'un saut de phase autour d'une fréquence de transition semble être envisageable. Une discussion (plusieurs en fait) avec Pascal Salières (SPAM, CEA Saclay) nous a donné deux pistes vers lesquels se tourner. La première est le transfert direct d'un saut de phase du fondamental vers les harmoniques. Nous pensons qu'il peut être intéressant de regarder l'effet d'un saut de phase π/q sur la $q^{\text{ième}}$ harmonique. Une autre solution consiste à utiliser deux impulsions de génération retardées donnant alors des harmoniques avec un délai qui peut être interférométrique [Salières 99]. Le délai interférométrique permet de faire varier continuellement la position du saut autour de la fréquence centraleⁱ. La mise en forme est alors en phase et en amplitude. Les harmoniques ainsi produites peuvent, a priori^j, contrôler la dynamique des systèmes à transitions vers un continuum. L'expérience correspondante serait alors similaire au contrôle du régime transitoire de Yaron Silberberg [Dudovich 02a] décrite sur la figure 4.2.

4.2.6 Conclusion

La technique pompe-sonde permet de mesurer à l'aide d'une impulsion sonde la dynamique créée par une impulsion pompe. Un grand nombre d'expériences l'utilise dans ce but. En particulier la femtochimie. Cependant, nous avons montré que dans le monde du façonnage d'impulsion, la sonde n'est pas forcément réduite à une position de spectateur mais peut jouer un rôle actif dans la dynamique. Son rôle a été mis en avant sur les expériences bien connues dans notre groupe de *transitoires cohérents*. Ainsi, l'expérience inverse des transitoires classiques et utilisant une pompe courte et une sonde chirpée a été présentée et décortiquée. La même dynamique est mesurée dans les deux cas, mais provenant de phénomènes différents. Enfin la prise en compte du système dans sa globalité a expliqué les différentes dynamiques possibles par l'utilisation de temps caractéristiques associés au système.

Parmi celles-ci, une a un comportement tout à fait intéressant. En effet, quand la pompe et la sonde ont la même phase quadratique mais de signes opposés, les oscillations de chaque sous-système à deux niveaux interfèrent destructivement ne laissant qu'une dynamique équivalente à celle obtenue par des impulsions limitées par Transformée de Fourier. Un résultat contre-intuitif qui permet de mesurer des dynamiques très rapides en utilisant des impulsions très longues. La condition étant que la largeur spectrale des impulsions soit

i. Ce type d'expériences avec double impulsions a été utilisée dans notre groupe pour l'holographie d'états quantiques [Monmayrant 06b]

j. Des simulations sont à faire avant de même songer aux expériences.

suffisamment large. La dynamique est ainsi reconstruite avec une résolution temporelle donnée par la durée limitée TF des impulsions. Une autre application est la caractérisation de la phase d'une impulsion inconnue par ce processus de compensation. A ce titre, des idées ont été avancées sur l'utilisation des harmoniques d'ordres élevés dans ce type de système. Elles pourraient être ainsi caractérisées et permettraient le contrôle dans des domaines de longueurs d'onde UV-VUV.

4.3 Absorption à deux photons

Jusqu'à présent, nous avons étudié un système à 3 niveaux en interaction avec deux impulsions Pompe et Sonde. Dans le cas général, elles permettent la sélection de transitions dans des gammes spectrales différentes. Or l'utilisation d'impulsions ultracourtes et donc de spectre très large permet dans certain cas de n'utiliser qu'une seule impulsion excitatrice pour les deux transitions. Ce type de système ne permet plus de suivre la dynamique d'un état intermédiaire, mais vise la maximisation de différents signaux atomiques ou moléculaires par le contrôle de l'amplitude et de la phase spectrale de l'impulsion. On parle alors d'absorption à deux photons que nous noterons TPA pour « Two Photon Absorption ».

Nous allons voir que le façonnage d'impulsion permet de contrôler cette absorption, comme la maximiser ou l'annuler. Plusieurs groupes ont étudié l'effet du façonnage sur la TPA. Celle-ci se classe en deux grand types : la TPA directe (sans état intermédiaire) [Broers 92a, Meshulach 98, Meshulach 99] et avec un [Broers 92b, Dudovich 01, Panek 06, Zhang 09] ou plusieurs états intermédiaires [Chatel 03, Chatel 04]. Les nombreux effets d'interférences obtenus via les différents chemins d'excitation directe ont été baptisés MII pour « Multiphoton Intrapulse Interferences » par le groupe de M. Dantus et ont donné lieu à un grand nombre de publications en phase condensée [Walowicz 02, Lozovoy 03, Comstock 04] et en imagerie [Ogilvie 06, Pillai 09]. Je me propose dans cette section de détailler les caractéristiques des deux grands type de TPA, de les comparer et de les illustrer par des expériences clés. Tous les schémas que nous allons voir sont à la base du contrôle cohérent et vont nous permettre d'introduire un certains nombres de notions. Cette section doit donc être considérée comme didactique et introductive sur le contrôle cohérent. Le cas de la TPA avec plusieurs états intermédiaires, me permettra de parler de l'expérience sur le contrôle de la précession de Spin-Orbite faite durant ma thèse [Chatel 08].

A noter, que le contrôle cohérent a d'abord été effectué dans le domaine temporel [Bellini 97, Blanchet 97, Prakelt 04, Barros 06], où des impulsions retardées et façonnées permettent un contrôle fin des mécanismes de l'absorption. Cependant avec le développement des outils de façonnage [Weiner 00], les possibilités de contrôle ont été multipliées. Nous nous restreindrons donc ici au contrôle par une unique impulsion mise en forme, les équations de la section 4.1 seront utilisées dans le cas dégénéré avec une seule impulsion $E(t)$ de pulsation ω_0 . Nous donnerons simplement quelques références et commentaires sur le contrôle temporel. A titre de rappel, l'équation donnant la population de l'état final en fonction des champ spectraux (équation 4.30) avec $\tau = 0$ s'écrit ici :

$$P_{\text{TPA}} \propto \left| \sum_k \mu_{fk} \mu_{kg} \tilde{E}(\omega_{kg}) \tilde{E}(\omega_{fk}) + i \mu_{fk} \mu_{kg} P \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \frac{\tilde{E}(\omega_0 + \Omega) \tilde{E}(\omega_0 - \Omega)}{\Omega + \delta_k} \right|^2 \quad (4.69)$$

4.3.1 TPA sans état intermédiaire

Le schéma le plus simple que l'on peut envisager est celui sans état intermédiaire. L'équation 4.69 se simplifie nettement ; en effet le terme à résonance est nul puisque tous les états intermédiaires sont supposés très loin de la résonance et on peut sortir le dénominateur de l'intégrale en notant que $\Omega \ll \delta_k$. Cela signifie que le désaccord est grand devant la largeur spectrale des impulsions, là où l'intégrale prend des valeurs non négligeables. La probabilité de TPA s'écrit alors :

$$P_{\text{TPA}}^{(0)} \propto \left| \sum_k \frac{\mu_{fk} \mu_{kg}}{\delta_k} \right|^2 \left| \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \tilde{E}(\omega_0 + \Omega) \tilde{E}(\omega_0 - \Omega) \right|^2 \quad (4.70)$$

avec la notation (0) pour une transition sans état intermédiaire. La probabilité est donc proportionnelle à l'auto-produit de convolution du champ \tilde{E} , ce qui correspond à la TF du carré du champ $E(t)$:

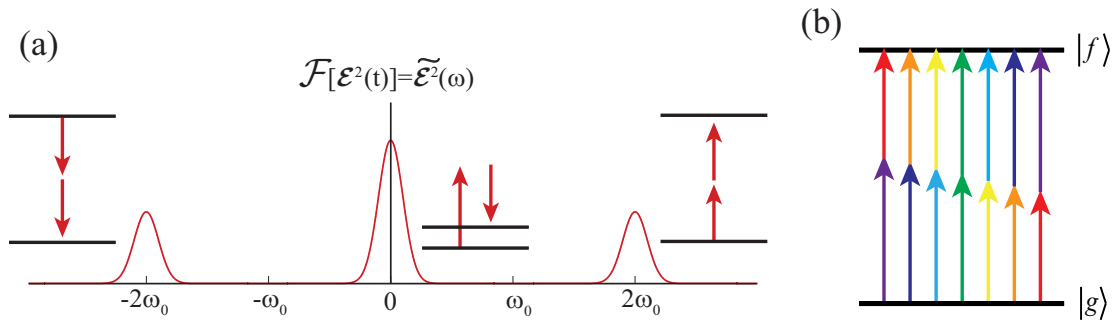


Figure 4.15 – Absorption à deux photons. La transformée de Fourier $\tilde{\mathcal{E}}^2(\omega)$ de $\mathcal{E}^2(t)$ est représentée en (a). Les possibilités en terme d'absorption et d'émission à deux photons sont schématisées à côté des différents lobes spectraux. Le dessin (b) schématise l'équation 4.71b en représentant tous les couples de fréquences permettant une absorption à deux photons.

On peut donc l'écrire indépendamment sous une des formes :

$$P_{\text{TPA}}^{(0)} \propto \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt E^2(t) e^{2i\omega_0 t} \right|^2 = \left| \tilde{E}^2(2\omega_0) \right|^2 = \left| \tilde{E}^{(2)}(2\omega_0) \right|^2 \quad (4.71a)$$

$$P_{\text{TPA}}^{(0)} \propto \left| \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \tilde{E}(\omega_0 + \Omega) \tilde{E}(\omega_0 - \Omega) \right|^2. \quad (4.71b)$$

La première expression (équation 4.71a) met en évidence le caractère « deux photons » et montre que la probabilité de TPA est proportionnelle à la TF de $E^2(t)$ à la fréquence somme $2\omega_0 : \tilde{E}^{(2)}(2\omega_0)$. Il est alors intéressant de regarder l'allure du spectre associé au carré du champ. Pour ça nous considérons un champ réel $\mathcal{E}^2(t)$ et sa TF : $\tilde{\mathcal{E}}^2(\omega)$ représenté sur la figure 4.15(a). Le spectre présente deux lobes centrés en $\pm 2\omega_0$ permettant la TPA ou l'émission de deux photons. Cependant un troisième lobe apparaît centré à la fréquence nulle, il correspond aux transitions dites « Raman » schématisées à côté. Les schémas de contrôle que nous allons voir dans la suite peuvent alors être appliqués à chacun de ces cas. La deuxième expression (éq. 4.71b) montre que tous les couples de fréquences (ω_1, ω_2) vérifiant $\omega_1 + \omega_2 = \omega_{fg} = 2\omega_0$ participent à la population finale ce qui est schématisé sur la figure 4.15(b). La grande largeur des impulsions femtosecondes donne de nombreux couples de fréquences possibles, ce qui représente autant de chemins d'excitations qui interfèrent. Une généralisation [Meshulach 99] peut être faite dans le cas d'une absorption à N photons, l'amplitude étant alors proportionnelle à la TF de $E^N(t)$.

Le développement de \tilde{E} en amplitude et en phase $\tilde{E}(\omega) = A(\omega)e^{i\phi(\omega)}$ donne cette équation :

$$P_{\text{TPA}}^{(0)} \propto \left| \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega A(\omega_0 + \Omega) e^{i\phi(\omega_0 + \Omega)} A(\omega_0 - \Omega) e^{i\phi(\omega_0 - \Omega)} \right|^2 \quad (4.72)$$

On note $\phi_S(\Omega) = \phi(\omega_0 + \Omega) + \phi(\omega_0 - \Omega)$. Une analyse rapide de cette équation montre que, pour une puissance spectrale donnée $A^2(\omega)$, les impulsions limitées par TF, c'est à dire avec une phase spectrale plate, impliquent $\phi_S = 0$. Ce qui maximise la probabilité. Avant d'étudier l'effet de diverses mises en formes, nous allons d'abord développer l'analogie avec la génération de second harmonique dans les cristaux.

4.3.1.1 Analogie avec la somme de fréquence dans les cristaux

Nous venons de voir que la TPA est proportionnelle à la TF du champ au carré à résonance $\tilde{E}^{(2)}(2\omega_0)$. Une autre façon d'obtenir ce champ harmonique, est d'utiliser la génération de seconde harmonique dans un cristal non-linéaire d'ordre 2. En effet le champ spectral associé à la génération de second harmonique s'écrit (voir section 2.1.1.1) :

$$\tilde{E}^{(2)}(2\omega) \propto D(2\omega) \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \tilde{E}(\omega + \Omega) \tilde{E}(\omega - \Omega) \quad (4.73)$$

avec

$$D(2\omega) \propto \text{sinc} \left[\frac{L}{2} (\Delta k + \alpha(2\omega - 2\omega_0)) \right] \quad (4.74)$$

où D est l'acceptance spectrale avec L l'épaisseur du cristal, Δk le désaccord de phase et $\alpha = \frac{1}{v_{g2}} - \frac{1}{v_{g1}}$ le désaccord de vitesse de groupe entre la deuxième harmonique et le fondamental aux fréquences $2\omega_0$ et ω_0 . Pour un cristal très fin, $L \ll \frac{2}{\alpha\Delta\omega}$ ^a, et à l'accord de

a. $\Delta\omega$ est la largeur spectrale du champ.

phase $\Delta kL \ll 1$, on a la relation

$$P_{\text{TPA}}^{(0)} \propto \left| \tilde{E}^{(2)}(2\omega_0) \right|^2. \quad (4.75)$$

La somme de fréquence est ainsi un moyen simple de mise en œuvre de la TPA pour tester l'influence d'une mise en forme. Elle est aussi plus générale dans le sens où toutes les sommes de fréquences sont possibles et pas uniquement celle à résonance. Inversement, le filtrage du spectre à une fréquence 2ω est identique à la TPA de fréquence $\omega_{fg} = 2\omega$. Ce filtrage peut être fait soit par la mesure à cette fréquence par un spectromètre soit en utilisant un cristal long rendant l'acceptance spectrale très piquée. Ainsi, de nombreuses études sur la TPA ont d'abord été faites à partir de la somme de fréquence [Broers 92a, Zheng 00, Wnuk 07] puis appliquées à un système atomique ou moléculaire. Le signal de second harmonique, dans le cas d'un cristal fin, permet de mesurer le spectre doublé et de prévoir le signal de TPA à toutes les fréquences.

A noter que cette notion de filtrage est identique à celle présentée pour retrouver la dynamique avec une sonde façonné qui ionise l'atome vers un continuum.

4.3.1.2 Phase anti-symétrique

De même que pour une impulsion limitée TF, toutes phases anti-symétriques par rapport à ω_0 , c'est à dire telles que $\phi(\omega_0 - \omega) = -\phi(\omega - \omega_0)$, donnent $\phi_S = 0$ et donc une probabilité de transition maximale [Meshulach 98]. Ce résultat est très contre-intuitif car habituellement, un façonnage en phase donne une intensité temporelle maximale très faible. Par exemple un train d'impulsions produit par une phase sinusoïdale anti-symétrique donnera quand même un signal maximal, tout à fait contraire à l'intuition que l'on se fait des effets non-linéaires. A l'extrême, une phase qui passe de 0 à π aléatoirement mais de manière anti-symétrique donnera un signal maximal de TPA alors que l'impulsion a perdu presque toute sa cohérence.

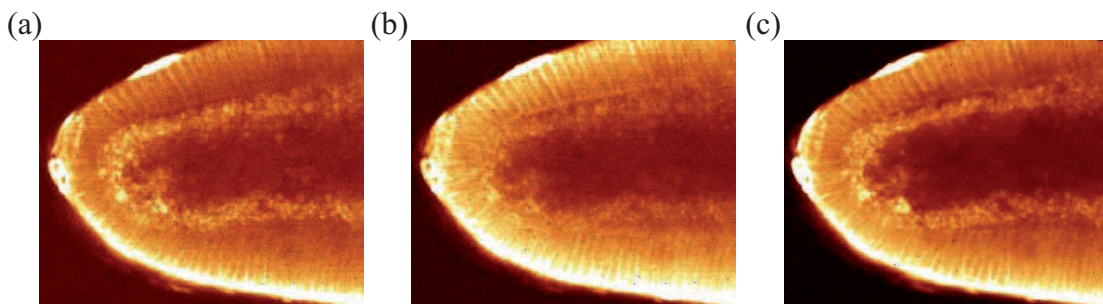


Figure 4.16 – Figure extraite de [Ogilvie 06]. Effet d'une phase anti-symétrique sinusoïdale sur la fluorescence de chromophores dans un embryon de *Drosophile*. En (a), la fluorescence de la protéine verte est favorisée, en (b) la fluorescence endogène et en (c) l'excitation des deux chromophores par une impulsion TF.

Ces schémas sont particulièrement intéressants car peuvent exciter sélectivement une seule transition à deux photons parmi une multitude. Ils ont ainsi été utilisés dans les mi-

lieux biologiques et particulièrement en imagerie où des molécules fluorescentes, les chromophores, peuvent être ainsi sélectivement excités. L'équipe de Manuel Joffre a ainsi utilisé une phase sinusoïdale [Ogilvie 06] et cubique [Pillai 09] pour obtenir des images d'embryons de *Drosophila*. La mise en forme permet de favoriser soit la fluorescence de la protéine fluorescente verte, GFP (exprimée chez l'individu par manipulation génétique), figure 4.16(a) soit la fluorescence endogène (b). Le cas (c) est obtenu par une impulsion non-mise en forme qui excite les deux chromophores.

4.3.1.3 Phase symétrique

A l'opposé, on peut façonner les impulsions avec une phase symétrique, ce qui aboutit aussi à des résultats surprenants. En effet pour une phase symétrique (on suppose l'amplitude spectrale aussi symétrique), la probabilité d'absorption s'écrit :

$$P_{\text{TPA}}^{(0)} \propto \left| \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega A^2(\omega_0 + \Omega) e^{2i\phi(\omega_0 + \Omega)} \right|^2 \quad (4.76)$$

$$(4.77)$$

Dans le cas particulier d'une phase quadratique, $\phi(\omega) = \frac{1}{2}\phi^{(2)}(\omega - \omega_0)^2$, cette équation

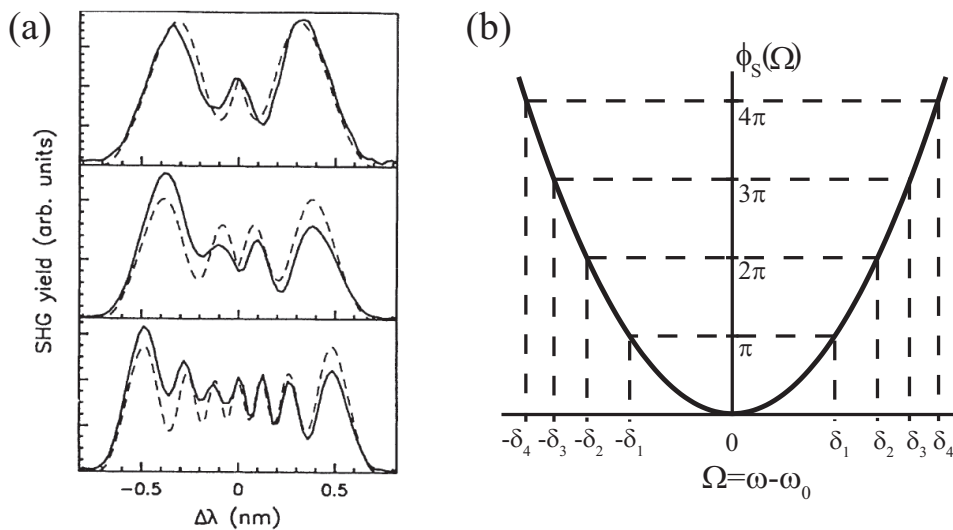


Figure 4.17 – (a) Figure tirée de référence [Broers 92a]. Puissance spectrale expérimentale (trait plein) et théorique (pointillé) d'une impulsion doublée en fréquence issue d'une impulsion façonnée par une puissance spectrale de forme rectangulaire et par une phase quadratique. Les spectres sont obtenus de haut en bas avec un chirp croissant. (b) Visualisation des zones de Fresnel pour une phase ϕ_S quadratique. Ces zones sont définies par une variation de phases inférieure à π .

devient une intégrale de Fresnel pondérée par la puissance spectrale. Une transposition des résultats connus sur les phases quadratiques dans le domaine spatial au domaine spectral

est alors possible. La diffraction dans l'approximation de Fresnel en est un exemple. En particulier, si l'amplitude $A(\omega)$ a un profil rectangulaire, elle modélise une fente rectangulaire donnant alors exactement la diffraction de Fresnel par une fente [Bruhat 92].

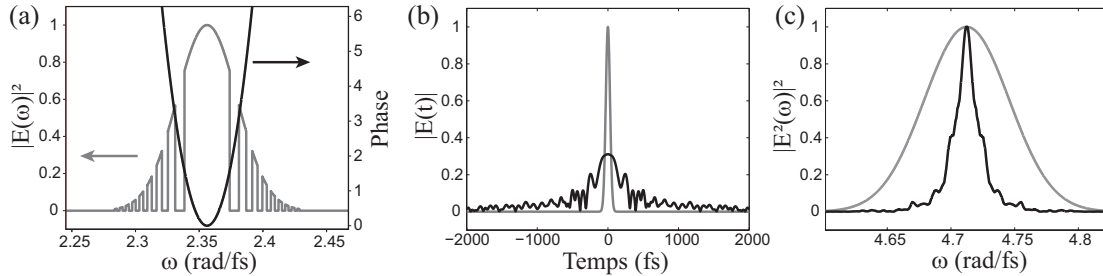


Figure 4.18 – (a) Spectre d'une impulsion dont les zones de Fresnel paires sont programmées à zéro pour une phase $\phi_d = 10\,000\text{ fs}^2$ quadratique. (b) Profil temporel correspondant en noir et non-modulé en gris pour la comparaison. (c) Puissance spectrale doublée du champ temporel représenté en (b).

En effet, le spectre de deuxième harmonique d'une impulsion façonnée par une amplitude rectangulaire et une phase quadratique donne les mêmes oscillations que la figure de diffraction de Fresnel par une fente. Ce résultat [Broers 92a, Broers 92c] est visible sur la figure 4.17(a) où le spectre du champ de seconde harmonique est tracé pour différents chirps. Les spectres sont obtenus de haut en bas avec un chirp croissant. La probabilité de TPA est alors égale à la diffraction au centre de l'écran. Broers et al. ont alors reproduit l'équivalent d'une lentille de Fresnel dans le domaine spectral.

Une lentille de Fresnel sert à focaliser la lumière quand les lentilles traditionnelles ne sont pas adaptées. La focalisation au centre de l'écran est alors obtenue en « découplant » la surface d'onde de manière à ce que les parties se propageant interfèrent constructivement au centre. On obtient la même chose avec la TPA. En utilisant un façonneur, l'amplitude est mise en forme de façon à ne conserver que les parties du spectre qui interfèrent constructivement. En effet comme la phase totale varie quadratiquement, $e^{i\phi_S(\Omega)}$ est une succession de valeurs positives et négatives qui interfèrent destructivement entre elles. Il ne faut alors garder que les parties du spectre où la phase ne varie pas plus de π . La figure 4.17(b) illustre ce découpage. La phase ϕ_S est représentée en fonction de Ω . Les zones de Fresnel sont délimitées par δ_i avec i variant de 1 à 4. On peut alors choisir de ne garder que les zones impaires ce qui correspond à une lentille de fresnel. La figure 4.18 simule ce comportement : une phase quadratique $\phi^{(2)} = 10\,000\text{ fs}^2$ est programmée et les zones de Fresnel paires sont mises à zéro dans l'amplitude (a). On obtient un profil temporel (b) (courbe noire) chahuté mais le spectre doublé est maximal à la fréquence centrale (c) (courbe noire). On a un spectre doublé qui est « focalisé » sur la fréquence centrale. La conséquence directe de ce façonnage est d'avoir une très bonne résolution et sélectivité spectrale partant d'impulsions large bande.

Ces résultats démontrés dans le cas d'une phase quadratique, sont valables pour toutes phases symétriques. La focalisation spectrale, qui a été développée dans le groupe

du Pr. Noordam [Broers 92a], est un des premiers résultats de contrôle de la transition à deux photons. L'analogie avec la diffraction de Fresnel les a guidés tout au long de leurs expériences. Pour illustrer cette focalisation, un ensemble de transitions à deux photons d'un atome de Rydberg a été excité par de telles impulsions. Sans focalisation spectrale, plusieurs niveaux de Rydberg sont excités par la bande spectrale du laser alors qu'avec la lentille de Fresnel, un unique niveau est excité de manière prépondérante.

Une autre façon d'avoir une focalisation spectrale est d'encoder la phase par une série binaire de 0 et de 1, la phase est alors égale à π pour un bit nul et 0 pour un bit égal à 1, soit $(1 + (-1)^{\text{bit}})\pi/2$. Comme la phase est symétrique en ω_0 , on a $\phi_S = 2\phi(\omega - \omega_0) = 0 [2\pi]$ soit l'équivalent d'une phase plate et donc une TPA maximale. Par contre aux autres fréquences, la symétrie est brisée et la phase est aléatoire donnant une puissance spectrale quasi-nulle. Ce façonnage, introduit par le groupe de A. Weiner [Zheng 00] pour les télécommunications, a été mis à profit par le groupe de Marcos Dantus [Comstock 04]. Ce codage binaire symétrique de la phase a ainsi été utilisé pour optimiser la puissance spectrale à une fréquence donnée et la minimiser aux autres fréquences. On obtient ainsi une bonne résolution spectrale par un façonnage simple tout en utilisant des impulsions très courtes de type femtoseconde.

4.3.1.4 Autres phases

Au contraire des phases anti-symétriques donnant un signal maximal, il est possible de jouer sur les interférences constructives et destructives pour moduler le signal de TPA entre « rien » et un signal maximal. En effet, nous avons vu que ce qui est important pour maximiser la TPA est d'avoir une puissance spectrale du champ doublé qui est maximale à la résonance. Au contraire, si la puissance spectrale devient nulle à cette fréquence, la TPA sera elle même nulle dues aux interférences destructives complètes entre les différents chemins d'absorption. Une telle impulsion a été baptisée impulsion « noire » [Meshulach 98] par Yaron Silberberg par analogie avec les états électroniques « noirs » qui ne sont pas couplés au niveau fondamental par le champ électrique (voir section 4.3.3). Une très grande variété de façonnages permet la création d'impulsions noires. Nous allons détailler le cas d'un façonnage sinusoïdal en phase.

La phase appliquée à l'impulsion s'écrit

$$\phi(\omega) = \alpha \cos(\beta(\omega - \omega_0) + \varphi) \quad (4.78)$$

avec α et β la profondeur et la fréquence de modulation et φ la phase de modulation. La probabilité de TPA est donnée par

$$P_{\text{TPA}}^{(0)} \propto \left| \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega A(\omega_0 + \Omega) A(\omega_0 - \Omega) \exp\{i\alpha [\cos(\beta\Omega + \varphi) + \cos(-\beta\Omega + \varphi)]\} \right|^2 \quad (4.79)$$

où l'on peut développer les cosinus

$$P_{\text{TPA}}^{(0)} \propto \left| \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega A(\omega_0 + \Omega) A(\omega_0 - \Omega) \exp\{2i\alpha \cos \beta\Omega \cos \varphi\} \right|^2. \quad (4.80)$$

En faisant le changement de variable $\beta\Omega = \theta$ et en supposant que la puissance spectrale est constante et égale à A sur une largeur $\Delta\omega$, on obtient

$$P_{\text{TPA}}^{(0)} \propto \left| \frac{A}{\beta} \int_{-\frac{\Delta\omega\beta}{2}}^{\frac{\Delta\omega\beta}{2}} d\theta \exp\{2i\alpha \cos\theta \cos\varphi\} \right|^2. \quad (4.81)$$

Enfin, en posant $\frac{\Delta\omega\beta}{2} = 2\pi$ la probabilité de TPA est proportionnelle à la fonction de Bessel J_0

$$P_{\text{TPA}}^{(0)} \propto \left| \frac{2A}{\beta} J_0(2\alpha \cos\varphi) \right|^2. \quad (4.82)$$

Dans le cadre de cette approximation, différentes impulsions noires peuvent être déterminées à partir des zéros de la fonction $J_0(z)$ soit $z_1 \simeq 2.40$, $z_2 \simeq 5.52$ pour les deux premiers. Pour un façonnage « cosinus » ($\varphi = 0$), on obtient :

$$\beta = \frac{4\pi}{\Delta\omega} \quad (4.83a)$$

$$\alpha_1 \simeq 1.2 \quad \text{ou} \quad \alpha_2 \simeq 2.76 \quad (4.83b)$$

Cet exemple, analytique, a permis de trouver deux exemples d'impulsions noires parmi une grande multitude possible.

Le développement de ce concept et la mise en œuvre expérimentale de ces impulsions noires a été proposée par le groupe de Yaron Silberberg [Meshulach 98, Meshulach 99]. Les figures 4.19(a) [Meshulach 98] et 4.19(b) [Meshulach 99] en donnent deux exemples. Elles représentent la fluorescence normalisée, proportionnelle à la probabilité d'absorption du niveau final aux temps longs, en fonction du façonnage. Le premier cas est une modulation de type sinusoïdale $\phi(\omega) = \alpha \cos(\beta\omega + \varphi)$ dont le paramètre α varie. Les cercles représentent une modulation de type cosinus avec $\varphi = 0$. On voit que pour des valeurs précises de α , la fluorescence est nulle, signature d'une absorption nulle. Une impulsion avec ces paramètres est alors une impulsion « noire ». A l'opposé, une phase anti-symétrique de type sinus ($\varphi = \pi/2$) donne une fluorescence quasiment constante (carrés). La légère diminution peut être attribuée à la résolution finie du façonneur ainsi qu'à sa discrétisation (pixels des cristaux liquides). La théorie est représentée en trait noir.

Dans le deuxième exemple, ils appliquent un saut de phase de π à l'impulsion. Les cercles représentent la fluorescence en fonction de la position du saut dans le spectre. Pour une phase purement anti-symétrique les cas $\delta = 0$ et $|\delta| \gg \Delta\omega$, avec $\Delta\omega$ la largeur spectrale des impulsions, la fluorescence est maximale. Par contre pour deux valeurs symétriques de δ cette fluorescence diminue pour tendre vers 0. L'encart représente l'intensité temporelle calculée pour une impulsion « noire » $\delta/\Delta\omega = 0.31$ en pointillé et pour l'impulsion limitée par transformée de Fourier de même puissance spectrale en trait plein.

Enfin, l'utilisation de cristaux non-linéaires a permis de reproduire ces mêmes résultats [Wnuk 07], montrant bien la grande versatilité du mélange de fréquence pour « simuler » la TPA.

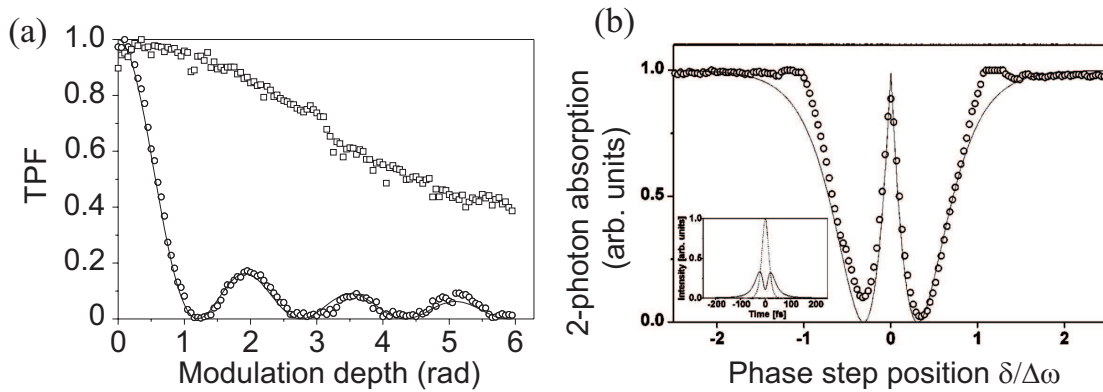


Figure 4.19 – Figures extraites de la référence [Meshulach 98] en (a) et [Meshulach 99] en (b). Elles représentent la mesure de fluorescence proportionnelle à la population de l'état final pour deux type de façonnage en phase. Dans le cas (a) $\phi(\omega) = \alpha \cos(\beta\omega + \varphi)$, la mesure en fonction de α donne pour une phase anti-symétrique, $\varphi = \pi/2$, les carrés et pour une phase symétrique, $\varphi = 0$, les ronds. Dans le cas (b) les ronds représentent la fluorescence produite par une impulsion ayant un saut de phase de π à différentes positions dans son spectre $\delta/\Delta\omega$ avec $\Delta\omega$ la largeur spectrale. L'encart représente l'intensité temporelle calculée pour une impulsion « noire » en pointillé et pour l'impulsion limitée par transformée de Fourier de même puissance spectrale. Les différents paramètres de phase permettent le contrôle du niveau de fluorescence. La théorie est représentée par une ligne noire.

4.3.1.5 Transition Raman

Comme le montre la figure 4.15(b), les transitions Raman dites stimulées sont un cas un peu particulier de la TPA. Leur contrôle par des impulsions façonnées a été introduit par Y. Silberberg [Oron 02, Dudovich 02b]. Pour avoir absorption, il faut que $\omega_{fg} = \omega_{\text{Raman}}$ soit inférieure à la largeur spectrale de l'impulsion $\Delta\omega$, ainsi tous les couples de fréquences (ω_1, ω_2) tels que $\omega_1 - \omega_2 = \omega_{\text{Raman}}$ participent à la transition. La probabilité de transition est alors donnée par :

$$P_{\text{TPA}}^{(0)} \propto \left| \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \tilde{E}(\omega) \tilde{E}^*(\omega - \omega_R) \right|^2. \quad (4.84)$$

On a donc un photon « absorbé » à ω et un photon « émis » à $\omega - \omega_R$. Le même type de contrôle que précédemment peut être fait sur ce type de transition. En particulier, une impulsion TF, ainsi que toute modulation de phase de période ω_R et produisant un train d'impulsions donnera un signal maximal.

Il a été montré que ces trains [Weiner 90] sont particulièrement adaptés pour ces transitions entre états vibrationnels : un signal maximal est obtenu et l'intensité réduite des impulsions, comparée à une unique impulsion limitée TF, limite les effets de champ fort. Cependant l'état final est un niveau « bas » en énergie, il n'y a donc pas systématiquement de fluorescence à détecter. C'est pourquoi les expérimentateurs utilisent plutôt des

schémas à quatre ondes de type CARS [Silberberg 09] pour « Coherent Anti-Stokes Raman Scattering ». Le système étant plus complexe qu'une simple transition à deux photons, je ne présenterai pas de résultats de contrôle de spectroscopie Raman dans cette thèse mais vous invite à lire ces références [Weiner 90, Oron 02, Dudovich 02b, Von Vacano 06] ainsi que la revue de Y. Silberberg [Silberberg 09] sur le contrôle appliqué à la spectroscopie non-linéaire .

4.3.1.6 Conclusion

Le façonnage d'impulsions permet de contrôler de différentes manières l'absorption directe à deux photons. Ce que l'on a vu avec une seule impulsion façonnée excitant la transition à deux photons peut être complexifié et le degré de contrôle amélioré. Ainsi, en mixant les schémas précédents et ceux de contrôle temporel [Blanchet 97], plusieurs groupes ont mis en évidence les différences subtiles entre interférences optiques et quantiques [Prakelt 04, Barros 06]. Le contrôle peut aussi être fait en polarisation [Brixner 01], ce qui permet de choisir la distribution de moment angulaire dans l'état final [Dudovich 04]. De plus, la TPA a permis de visualiser la cohérence mutuelle de photons jumeaux issus de la fluorescence paramétrique [Dayan 04]. Enfin, on peut noter que l'application de tels schémas de contrôle à des systèmes plus complexes de phase condensée telles des molécules d'intérêts biologiques [Ogilvie 05, Ogilvie 06, Walowicz 02, Lozovoy 03] a donné lieu à de très jolis résultats.

4.3.2 TPA avec un état intermédiaire

Considérons maintenant le cas de l'absorption avec un état intermédiaire. La richesse de ce type de système, que nous appellerons TPA résonnante, provient de la création de deux chemins quantiques principaux d'excitation. Le premier est l'excitation séquentielle à 1 + 1 photons par cet état intermédiaire, premier terme comprenant les champs spectraux aux résonances. Le second est l'excitation directe à deux photons. Ces deux chemins sont cohérents et leurs interférences vont enrichir les possibilités de contrôle. L'équation 4.69 appliquée à ce cas devient

$$P_{\text{TPA}}^{(1)} \propto \left| \pi \tilde{E}(\omega_{kg}) \tilde{E}(\omega_{fk}) + iP \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \frac{A(\omega_0 + \Omega) e^{i\phi(\omega_0 + \Omega)} A(\omega_0 - \Omega) e^{i\phi(\omega_0 - \Omega)}}{\Omega + \delta_k} \right|^2 \quad (4.85)$$

où l'exposant (1) signifie une absorption avec un seul état intermédiaire. Les transitions via les autres états non-résonnants sont négligeables devant celle-ci.

Premièrement il est facile de voir qu'une impulsion TF ne donnera pas, contrairement au cas précédent, l'absorption la plus importante. En effet, au passage par la résonance, $\Omega = -\delta_k$, le dénominateur de l'intégrale change de signe alors que son numérateur a un signe constant (phase plate) ainsi les contributions de chaque côté de la résonance s'annulent par interférences destructives et ne laissent que la contribution résonnante.

Ce constat simple permet d'envisager un façonnage maximisant les interférences constructives. Trois groupes se sont principalement intéressés à cela, celui de L. D. Noordam

[Balling 94, Maas 99], de Y. Silberberg (encore lui) [Dudovich 01] et le nôtre [Chatel 03, Chatel 04].

Comme la TPA directe, le contrôle temporel de la TPA résonnante est possible [Felinto 00] mais nous nous restreindrons au schéma de façonnage d'une impulsion unique.

4.3.2.1 Impulsions noires

Par analogie avec la TPA directe, Panek et al. [Panek 06] ont montré théoriquement qu'il est possible d'obtenir des impulsions noires. Au contraire de la TPA non-résonnante, un saut de phase de π ne permet pas de l'annuler. Pour trouver une famille d'impulsions noires, ils postulent que deux paramètres, variables et indépendants, sont nécessaires pour annuler la partie réelle et imaginaire de l'amplitude de transition. Ils étudient donc l'effet d'un saut de phase θ à un désaccord $\delta\omega$ variable, ce qui n'est qu'un exemple de paramètres indépendants parmi d'autres. Leur étude a permis de trouver un couple de valeur permettant l'obtention d'une impulsion noire.

4.3.2.2 Maximisation de la TPA

Pour ce qui est de la maximisation, différentes approches sont possibles. La figure

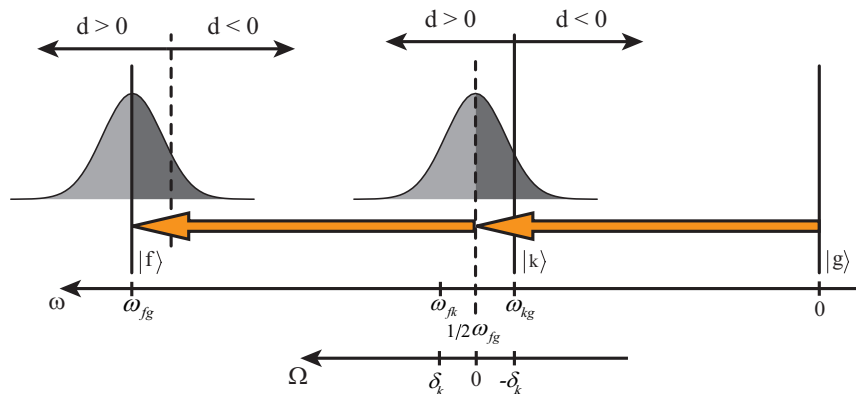


Figure 4.20 – Schéma modélisant la TPA avec un état relais et l'équation 4.85. L'axe horizontal (ω) représente les énergies des niveaux avec une origine sur l'état fondamental ainsi que la pulsation de l'impulsion gaussienne du centre. L'autre axe (Ω) représente la variable Ω de l'équation 4.85. Le niveau $|k\rangle$ est légèrement hors résonance. Les couleurs gris foncé et gris clair symbolisent respectivement les basses et les hautes fréquences de l'impulsion. Enfin $d > 0$ et $d < 0$ représentent le signe du dénominateur de l'équation 4.85, négatif pour $\Omega < -\delta_k$ et positif dans le cas inverse.

4.20 va nous permettre de mieux comprendre le résultat du façonnage. Elle représente le système : trois états $|g\rangle$, $|k\rangle$ et $|f\rangle$ ainsi que les deux champs électriques identiques. L'axe horizontal (ω) représente les énergies des niveaux avec une origine sur l'état fondamental. Cet axe représente aussi la pulsation pour l'impulsion gaussienne du centre qui a ainsi une pulsation centrale $\omega_{fg}/2$ correspondant à la moitié de la transition à deux photons. L'autre

axe (Ω) représente la variable Ω de l'équation 4.85. Le niveau $|k\rangle$ est légèrement hors résonance. Les couleurs gris foncé et gris clair symbolisent respectivement les basses et les hautes fréquences de l'impulsion. La condition de TPA est alors que les basses fréquences d'une impulsion se somment avec les hautes fréquences de l'autre impulsion pour arriver à l'état final et vice versa. Enfin $d > 0$ et $d < 0$ représentent le signe du dénominateur de l'équation 4.85, négatif pour $\Omega < -\delta_k$ et positif dans le cas inverse.

La première idée est de supprimer les composantes spectrales qui interfèrent destructivement par un façonnage en amplitude. En effet imaginons que le façonnage supprime les composantes pour $d < 0$, soient les plus basses fréquences dans le spectre. Dans ce cas, il ne reste que les interférences constructives pour $d > 0$. Ainsi bien que l'énergie de l'impulsion soit très diminuée, on augmente fortement la TPA. A noter que les fréquences symétriques de celles supprimées ne participent plus au signal de TPA. On peut donc aussi utiliser un façonnage en amplitude symétrique, de type fenêtrage qui a été appliqué par Dudovitch et al. [Dudovich 01]. Ils ont obtenus une augmentation de TPA de 200% par rapport au cas limité TF avec une impulsion 70% moins intense.

La deuxième approche est de ne faire qu'un façonnage en phase, pour rendre constructives toutes les interférences (ou presque). Il faut donc que le numérateur change de signe en même temps que le dénominateur. Pour cela, on peut utiliser des sauts de phase. Pour comprendre comment fonctionne ce façonnage, le tableau 4.3 explicite le signe du terme hors-résonance pour les différentes fréquences dans le cas d'une fenêtre de phase de $\pi/2$ pour $-\delta_k > \Omega > \delta_k$.

Ω	sg(d)	$\phi(\omega_0 + \Omega)$	ϕ_S	sg(n)	sg($\frac{n}{d}$)
$-\delta_k > \Omega$	< 0	0	0	> 0	< 0
$-\delta_k > \Omega > \delta_k$	> 0	$\pi/2$	π	< 0	< 0
$\Omega > \delta_k$	> 0	0	0	> 0	> 0

Table 4.3 – Tableau regroupant le signe (sg) du dénominateur (d) et du numérateur (n) en fonction de la pulsation Ω pour une fenêtre de phase de $\pi/2$. Les phases et les différents paramètres se réfèrent à l'équation 4.85 et à la figure 4.20

On obtient ainsi des interférences destructives (signe opposé) que pour $|\Omega| > \delta_k$. Ce façonnage [Dudovich 01] a été appliqué dans le rubidium. Quand la fenêtre est centrée, ils obtiennent une augmentation considérable du taux de TPA de l'ordre de 700%. De plus, pour un certain décalage de la fenêtre, une impulsion noire est presque obtenue. A noter qu'en utilisant deux impulsions différentes, il est possible de rendre toutes les interférences constructives [Zhang 08].

La dernière approche utilise des impulsions à dérive de fréquence. L'homothétie temps-fréquence des impulsions chirpées rend la représentation de l'atome habillé particulièrement intéressante [Cohen-Tannoudji 96] et utile à la compréhension des différentes interférences. En effet, la fréquence instantanée des impulsions variant linéairement avec le temps, on suit l'évolution temporelle du système en parcourant le diagramme des états

habillés. Dans cette représentation, le problème de l'interaction de l'atome avec l'impulsion lumineuse se ramène à un problème de croisement de ces niveaux visible sur la figure 4.21(a) dans le cas du Rubidium. Dans le cas d'une phase quadratique positive, la fréquence instantanée est donnée par $\omega(t) = \omega_0 + 2\alpha t$ avec α le paramètre de chirp (voir annexe). Elle croît donc linéairement si le chirp est positif (dérive du rouge au bleu), le diagramme se lit de gauche à droite. Partant de l'état non-perturbé fondamental $|1\rangle$, en bas à gauche sur la figure, l'atome va suivre les chemins (i) et (iii) correspondant respectivement à la transition directe $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ et séquentielle $|1\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |3\rangle$. Les interférences entre ces deux chemins produisent une modulation de la TPA en fonction du chirp.

Brièvement, la phase relative accumulée [Degert 02a] sur les deux chemins est égale à :

$$\phi = \frac{1}{2\alpha} \int_{\omega(t_1)}^{\omega(t_2)} \frac{d\omega}{\hbar} (E_{(iii)}(\omega) - E_{(i)}(\omega)) \quad (4.86)$$

où E_{chemin} représente l'énergie de l'état habillé le long du chemin considéré. Les instant t_1 et t_2 représentent les instants où les chemins se séparent et se recombinent. Qualitativement et en régime de champ faible, cela représente l'aire de la zone hachurée divisée par 2α . Le signal de TPA oscille donc pour des valeurs croissantes de chirp positif. En effet,

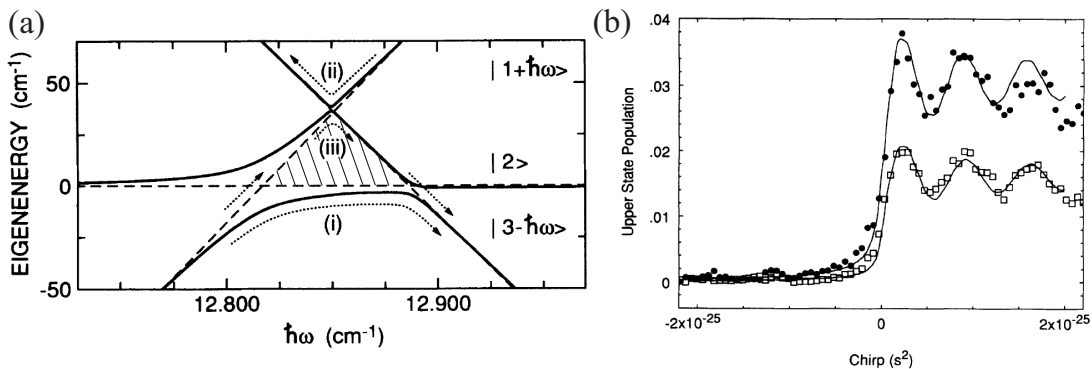


Figure 4.21 – Figures extraites de la référence [Balling 94]. (a) Diagramme des états habillés des niveaux (5s,5p,5d) du rubidium. (b) Signal d'ionisation de l'état final en fonction de la phase quadratique de l'impulsion.

pour un chirp négatif, seul le chemin (ii) est possible mais avec une très faible probabilité sauf en champ fort. Ces résultats sont visibles sur la figure 4.21(b), où sont tracées deux transferts de population en fonction du chirp pour deux valeurs de fluence ainsi que la théorie correspondante (ligne continue). Les oscillations sont clairement visibles.

L'étude de ces interférences peut aller encore plus loin dans le cas où l'état intermédiaire est un doublet de structure fine. Cette étude a été faite dans notre groupe [Chatel 03] sur l'atome de sodium et donne deux types d'oscillations. Le diagramme des états habillés et la variation de la TPA en fonction du chirp sont représentés sur la figure 4.22. Dans ce cas, l'atome peut parcourir un des trois premiers chemins du diagramme pour un chirp

négatif. A noter que si le chirp est positif, l'atome reste principalement sur l'état $|g + \hbar\omega\rangle$ et seule la transition directe à deux photons est possible (chemin 4) mais très faible en champ faible. Les oscillations entre les chemins 1 et 3 ainsi que 2 et 3 donnent des oscillations

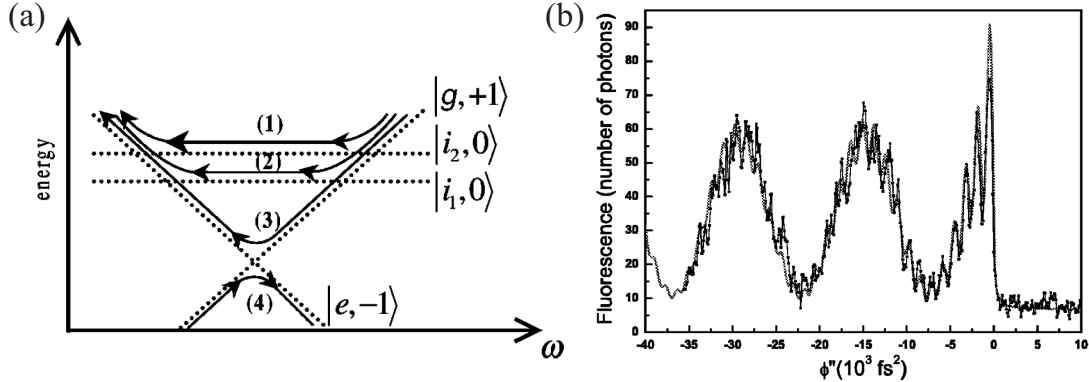


Figure 4.22 – Figures extraites de la référence [Chatel 03]. Cas (a), représentation des différents chemins quantiques d'excitation d'un système à quatre niveaux par une transition à deux photons dans la représentation des niveaux atomiques habillés du champ et cas (b), fluorescence du niveau final en fonction du chirp. Les flèches des chemins 1 à 3 indiquent le sens de parcours du diagramme des niveaux habillés pour une impulsion à dérive de fréquence négative $\omega(t) = \omega_0 + 2\alpha t$ ($\alpha < 0$) et pour un chirp positif pour le chemin 4. Les chemins 1 et 2 représentent les transitions séquentielles par les niveaux intermédiaires k_1 et k_2 alors que le chemin 3 et 4 correspondent à l'excitation directe à deux photons.

rapides de la population (la phase varie rapidement) alors qu'entre les chemins 1 et 2 les interférences produisent des oscillations lentes. Le résultat de leur somme est visible sur la figure 4.22(b). Pour un chirp positif, seul le chemin 4 contribue, la fluorescence due à la transition directe est nulle dans le régime perturbatif. Pour un chirp négatif, le signal oscille avec deux périodes, une petite et une grande dues aux différentes interférences. On peut noter le très bon contraste obtenu dans les oscillations ainsi qu'un maximum aux faibles valeurs de chirp, représentant 3 fois le signal obtenu par une impulsion limitée par TF.

Pour finir, en régime de champ fort, Broers et al. [Broers 92b] ont démontré qu'il était possible de transférer toute la population de l'état fondamental vers l'état final par passage adiabatique, en utilisant une impulsion chirpée. Ils montrent que si la fréquence de la première transition arrive en premier dans l'impulsion alors le transfert, via une excitation séquentielle, de la population est maximum. Cependant et de manière contre-intuitive, ils montrent aussi qu'en faisant l'inverse, la population peut aussi être entièrement transférée en empruntant le chemin (*ii*) de la figure 4.21. Ils réalisent ainsi un équivalent du STIRAP [Gaubatz 90] « Stimulated Raman Adiabatic Passage ».

La structure fine de l'état intermédiaire, aussi appelée couplage Spin-Orbite, rajoute ici un degré de complexité supplémentaire à la TPA. L'étude de ce couplage, en particulier la mesure de la précession de Spin-Orbite, a été précédemment effectuée dans notre

groupe [Zamith 00]. Celle-ci correspond aux oscillations d'un paquet d'onde, superposition cohérente du doublet de structure fine, et a été mesurée par la technique pompe-sonde. Au cours de ma thèse je me suis intéressé à la manipulation de ce couplage par des impulsions mises en forme.

4.3.3 Mesure et contrôle de la précession de Spin-Orbite

On considère donc un système à quatre niveaux dont deux intermédiaires. Ces deux niveaux sont excités par une impulsion pompe. Elle est suffisamment large spectralement pour pouvoir exciter une superposition cohérente de ces deux états. La dynamique de ce couplage est sondée via une transition vers un état final grâce à une impulsion courte. L'étude de la dynamique de ces oscillations a été effectuée en détail durant la thèse de Sébastien Zamith [Zamith 01a]. Je me suis intéressé pour ma part à la façon de manipuler ces oscillations par le façonnage de la pompe. A cette fin, je rappellerai d'abord les expressions théoriques de l'interaction dans la base stationnaire puis dans le formalisme des états brillant et noir.

4.3.3.1 Théorie

Base stationnaire

Les durées des impulsions pompe et sonde sont notées respectivement Δt_p et Δt_s et leur fréquence centrale ω_{0p} et ω_{0s} . Dans le cas d'impulsions limitées par TF, on a $\Delta t_p = \Delta t_{0p}$ et $\Delta t_s = \Delta t_{0s}$. La fonction d'onde après excitation par la pompe est une superposition cohérente des deux niveaux intermédiaires que nous notons $|a\rangle$ et $|b\rangle$. En utilisant les équations 4.3 et 4.19b elle s'exprime par

$$|\psi(t)\rangle = \frac{i}{2\hbar} \sum_{k=a,b} \mu_{kg} e^{-i\omega_k t} \int_{-\infty}^t dt' E_p(t') e^{i\omega_{kg} t'} |k\rangle \quad (4.87)$$

Pour un temps $t \geq \Delta t_p$ correspondant au régime stationnaire, l'intégrale est égale à la TF du champ pompe en ω_{kg} (ce qui correspond à la partie résonnante dans l'écriture spectrale des amplitudes, équation 4.30). On a alors

$$|\psi(t)\rangle = \frac{i}{2\hbar} \sum_{k=a,b} \mu_{kg} \tilde{E}_p(\omega_{kg}) e^{-i\omega_k t} |k\rangle \quad (4.88)$$

que l'on peut écrire de manière générale

$$|\psi(t)\rangle = i\Omega_p \Delta t_p \sum_{k=a,b} a_{pk} e^{-i\omega_k t} |k\rangle \quad (4.89)$$

où Ω_p est la pulsation de Rabi généralisée pour la pompe définie par

$$\Omega_p = \frac{1}{2\hbar \Delta t_p} \sqrt{\sum_{k=a,b} |\mu_{kg} \tilde{E}_p(\omega_{kg})|^2} \quad (4.90)$$

de manière à ce que les coefficients a_{pk} soient normalisés ($|a_{pa}|^2 + |a_{pb}|^2 = 1$) avec

$$a_{pk} = \frac{\mu_{kg} \tilde{E}_p(\omega_{kg})}{\sqrt{\sum_k' |\mu_{k'g} \tilde{E}_p(\omega_{k'g})|^2}} \quad (4.91)$$

L'équation 4.89 est valable pour tout type d'impulsion façonnée tant que l'on reste dans le régime perturbatif $\Omega_p \Delta t_p \ll 1$. Si l'impulsion pompe est façonnée, la phase et l'amplitude du champ $\tilde{E}_p(\omega)$ sont modifiées donnant un régime transitoire et stationnaire différents. En effet, le régime transitoire est dépendant du champ spectral dans son ensemble et le régime stationnaire est proportionnel au champ à résonance ($a_{pk} \propto \tilde{E}_p(\omega_{kg})$). De plus, la durée des impulsions est changée en cas de façonnage. En particulier l'instant d'arrivée de la fréquence de résonance est différent et décale d'autant la transition.

Si on rajoute maintenant l'étape de mesure, équation 4.30, on obtient l'amplitude de l'état final en fonction du délai

$$a_f(\tau) = -\frac{1}{2} \Omega_p \Delta t_p \Omega_s \Delta t_p \sum_{k=a,b} a_{pk} a_{sk} e^{i\omega_{fk}\tau} \quad (4.92)$$

avec

$$a_{sk} = \frac{\mu_{fk} \tilde{E}_s(\omega_{fk})}{\sqrt{\sum_k' |\mu_{fk'} \tilde{E}_s(\omega_{fk'})|^2}} \quad (4.93)$$

l'amplitude de probabilité de transition de l'état $|k\rangle$ à $|f\rangle$ et Ω_s la pulsation de Rabi pour la sonde. Enfin la probabilité de trouver l'atome dans l'état final est donnée par

$$P_f(\tau) = \frac{1}{4} \Omega_p^2 \Delta t_p^2 \Omega_s^2 \Delta t_p^2 [|a_{pa} a_{sa}|^2 + |a_{pb} a_{sb}|^2 + 2 |a_{pa} a_{pb}^* a_{sa} a_{sb}^*| e^{i\theta} \cos \omega_{ba} \tau] \quad (4.94)$$

avec

$$\theta = \arg(a_{pa} a_{pb}^* a_{sa} a_{sb}^*) \quad (4.95)$$

qui correspond ainsi à la phase à l'origine, sa valeur est donnée par la phase des champs spectraux et des éléments de transitions. La population est la contribution de trois termes, dont un présentant une oscillation à la fréquence $\omega_{ba} = \omega_b - \omega_a$. Les oscillations de la population du niveau final se font donc autour d'une population moyenne. Le contraste des oscillations C dépend de l'amplitude des coefficients a_{pk} et a_{sk} par :

$$C = \frac{P_{f \max} - P_{f \min}}{P_{f \max} + P_{f \min}} = \frac{2 |a_{pa} a_{pb}^* a_{sa} a_{sb}^*|}{|a_{pa} a_{sa}|^2 + |a_{pb} a_{sb}|^2}. \quad (4.96)$$

Toutes les informations sur la dynamique dans le régime stationnaire sont ainsi obtenues. A noter que si l'impulsion est courte devant la dynamique du doublet, c'est à dire $\Delta t_{0p} \ll \frac{2\pi}{\omega_{ba}}$, alors l'impulsion pompe connecte l'état fondamental à un état excité ayant la même orientation de spin. Puis le couplage donne la précession. Pour obtenir une signification plus physique de ces phénomènes, nous allons maintenant utiliser la description en terme d'états brillants et d'états noirs.

Description par les états brillants et noirs

Un état brillant est défini de manière générale par

$$|\psi_B\rangle = \frac{1}{\sqrt{\sum_k |\mu_{kg}|^2}} \sum_k \mu_{kg} |k\rangle \quad (4.97)$$

Les états noirs sont alors toutes combinaisons linéaires d'états orthogonaux à l'état brillant [Zamith 01a] $\langle \psi_N | \psi_B \rangle = 0$. En effet, on montre que

$$|\psi_B\rangle \propto \sum_k \mu_{kg} |k\rangle = \sum_k |k\rangle \langle k | \mu | g \rangle = \mu |g\rangle \quad (4.98a)$$

et

$$\langle \psi_N | \mu | g \rangle \propto \langle \psi_N | \psi_B \rangle = 0 \quad (4.98b)$$

Avec cette définition et N niveaux intermédiaires, on a $N - 1$ états noirs qui ne sont pas couplés au niveau fondamental, d'où leur nom. Les états brillant et noirs sont couplés par l'hamiltonien, ainsi après transition du fondamental à l'état brillant on obtient une oscillation du paquet d'ondes entre ces deux états. On peut modifier la définition de l'état brillant dans le cas d'une impulsion limitée par transformée de Fourier (phase plate) large bande ($\Delta\omega_p \gg \omega_{k'k}$), on a alors $\tilde{E}(\omega_{kg}) \simeq \tilde{E}(\omega_{0p})$ et

$$|\psi_B\rangle = \sum_k a_{pk} |k\rangle \quad (4.99)$$

avec a_{pk} défini à l'équation 4.91. Cette définition correspond spécifiquement à une impulsion avec phase plate (limitée TF). Dans le cas du doublet $|a\rangle$ et $|b\rangle$ et d'une impulsion centrée entre les deux transitions $\tilde{E}(\omega_a) = \tilde{E}(\omega_b)$, on obtient un état noir et un état brillant défini par

$$\begin{cases} |\psi_B\rangle = a_a |a\rangle + a_b |b\rangle \\ |\psi_N\rangle = a_b |a\rangle - a_a |b\rangle \end{cases} \quad (4.100)$$

avec $a_{pa} = a_a$ et $a_{pb} = a_b$ réels^b et vérifiant $|a_a|^2 + |a_b|^2 = 1$. Inversement, les états stationnaires s'expriment par

$$\begin{cases} |a\rangle = a_a |\psi_B\rangle + a_b |\psi_N\rangle \\ |b\rangle = a_b |\psi_B\rangle - a_a |\psi_N\rangle \end{cases} \quad (4.101)$$

La fonction d'onde excitée par la pompe s'écrit :

$$|\psi^{FT}(t)\rangle = i\Omega_p \Delta t_p e^{-i\frac{\omega_a + \omega_b}{2}t} \left(a_a e^{i\frac{\omega_b - \omega_a}{2}t} |a\rangle + a_b e^{-i\frac{\omega_b - \omega_a}{2}t} |b\rangle \right) \quad (4.102)$$

b. Cette condition est nécessaire à la clarté des calculs mais ne change rien à la physique du problème. Pour l'obtenir, il suffit de rajouter une phase absolue au champ limité TF.

soit en fonction des états noir et brillant

$$|\psi^{FT}(t)\rangle = i\Omega_p \Delta t_p e^{-i\bar{\omega}t} \left(\left[a_a^2 e^{i\frac{\omega_{ba}}{2}t} + a_b^2 e^{-i\frac{\omega_{ba}}{2}t} \right] |\psi_B\rangle + \left[a_a a_b e^{i\frac{\omega_{ba}}{2}t} - a_a a_b e^{-i\frac{\omega_{ba}}{2}t} \right] |\psi_N\rangle \right) \quad (4.103)$$

avec $\bar{\omega} = \frac{\omega_a + \omega_b}{2}$. On peut faire apparaître explicitement les oscillations en écrivant : $a_a^2 = 1/2(a_a^2 + a_b^2) + 1/2(a_a^2 - a_b^2)$ et de même pour a_b^2 , ce qui donne

$$|\psi^{FT}(t)\rangle = i\Omega_p \Delta t_p e^{-i\bar{\omega}t} \left(\left[\cos \frac{\omega_{ba}}{2}t + i(a_a^2 - a_b^2) \sin \frac{\omega_{ba}}{2}t \right] |\psi_B\rangle + 2i a_a a_b \sin \frac{\omega_{ba}}{2}t |\psi_N\rangle \right) \quad (4.104)$$

Les probabilités de trouver le système dans l'état brillant ou noir sont alors respectivement

$$P_B(t) = |\langle \psi_B | \psi^{FT}(t) \rangle|^2 = \Omega^2 \Delta t_p^2 \left(1 - 4a_a^2 a_b^2 \sin^2 \frac{\omega_{ba}}{2}t \right) \quad (4.105a)$$

$$P_N(t) = |\langle \psi_N | \psi^{FT}(t) \rangle|^2 = \Omega^2 \Delta t_p^2 \left(4a_a^2 a_b^2 \sin^2 \frac{\omega_{ba}}{2}t \right) \quad (4.105b)$$

Ces expressions (équations 4.104 et 4.105) correspondent à une oscillation entre l'état

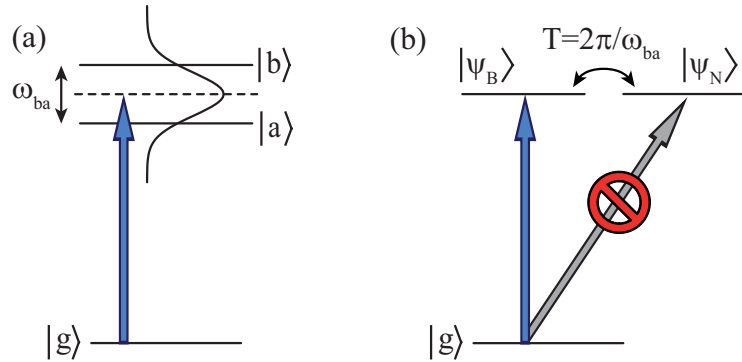


Figure 4.23 – Schéma d'excitation d'un doublet de structure fine. (a) dans la base stationnaire et (b) dans la base des états brillant $|\psi_B\rangle$ et noir $|\psi_N\rangle$.

brillant et l'état noir à la fréquence ω_{ba} , voir figure 4.23. Pour les temps $t = \frac{2\pi p}{\omega_{ba}}$, $p \in \mathbb{N}$, la population toute entière se trouve dans l'état brillant ($|\psi^{FT}(t)\rangle \propto |\psi_B\rangle$). Aux temps $t = \frac{2\pi(p+1)}{\omega_{ba}}$ la population de l'état noir est maximale, cependant la population de l'état brillant n'est pas nulle pour autant et dépend du poids relatif entre a_a^2 et a_b^2 dépendant eux-mêmes des moments dipolaires. La population oscille de manière complète entre les deux états uniquement si $a_a^2 = a_b^2$ ^c.

Dans le cas d'états de Spin-Orbite de type $P_{3/2} - P_{1/2}$ excités depuis un état fondamental $S_{1/2}$ ^d, on a le rapport $\mu_{bg}/\mu_{ag} = \sqrt{2}$. De plus avec $\tilde{E}(\omega_a) = \tilde{E}(\omega_b)$, les coefficients

c. Nous verrons plus loin que la détection des oscillations va dépendre des éléments de transition de l'étape sonde.

d. Cas des atomes alcalins avec lesquels les expériences de contrôle sont le plus souvent effectuées.

a_k sont égaux à $a_a = 1/\sqrt{3}$ et $a_b = \sqrt{2/3}$ et la population de l'état brillant, normalisée à $\Omega^2 \Delta t_p^2$ oscille alors entre 1 et 1/9 alors que la population de l'état noir, aussi normalisée, oscille entre 0 et 8/9 avec une phase opposée.

Façonnage de l'impulsion pompe

Si on considère maintenant une impulsion mise en forme, alors l'évolution stationnaire correspond aussi à une oscillation entre deux états du moment que l'on crée une superposition d'états stationnaires ($\tilde{E}(\omega_{ag}) \neq 0$ et $\tilde{E}(\omega_{bg}) \neq 0$). Ces deux états sont en général différents des états brillants et noirs définis à l'équation 4.100.

On s'intéresse ici au cas particulier d'une impulsion pompe dans laquelle un saut de phase de π est appliqué entre les deux états stationnaires et avec une amplitude inchangée. La fonction d'onde est alors la combinaison linéaire des états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ avec des coefficients respectifs a_a et $-a_b$. Il y a alors oscillations entre les mêmes états que précédemment mais déphasées de π . La nouvelle fonction d'onde dans le régime stationnaire est donnée par

$$|\psi^\pi(t)\rangle = i\Omega_p \Delta t_p e^{-i\bar{\omega}t} \left(a_a e^{i\frac{\omega_{ba}t}{2}} |a\rangle - a_b e^{-i\frac{\omega_{ba}t}{2}} |b\rangle \right) \quad (4.106)$$

soit dans la base des états brillants et noirs définie à l'équation 4.100

$$\boxed{|\psi^\pi(t)\rangle = i\Omega_p \Delta t_p e^{-i\bar{\omega}t} \left(\left[i \sin \frac{\omega_{ba}t}{2} + (a_a^2 - a_b^2) \cos \frac{\omega_{ba}t}{2} \right] |\psi_B\rangle + 2a_a a_b \cos \frac{\omega_{ba}t}{2} |\psi_N\rangle \right)} \quad (4.107)$$

qui est la même dynamique que celle produite par l'impulsion limitée TF mais décalée de $T/2$. Les populations sont données respectivement par

$$P_B(t) = |\langle \psi_B | \psi^\pi(t) \rangle|^2 = \Omega^2 \Delta t_p^2 \left(1 - 4a_a^2 a_b^2 \cos^2 \frac{\omega_{ba}t}{2} \right) \quad (4.108a)$$

$$P_N(t) = |\langle \psi_N | \psi^\pi(t) \rangle|^2 = \Omega^2 \Delta t_p^2 \left(4a_a^2 a_b^2 \cos^2 \frac{\omega_{ba}t}{2} \right) \quad (4.108b)$$

D'après ces expressions, le déphasage du champ électrique sur l'état $|b\rangle$ se traduit dans le régime stationnaire par un déphasage de π dans la dynamique des populations par rapport au cas pompe limitée TF.

Détection des oscillations

Pour pouvoir observer ces oscillations, l'impulsion sonde doit connecter les états brillants et noirs et l'état final avec des probabilités différentes. Autrement dit, si la probabilité de transition $|\psi_B\rangle \rightarrow |f\rangle$ est plus importante que la probabilité de $|\psi_N\rangle \rightarrow |f\rangle$ alors quand le paquet d'onde est sur l'état brillant, la population finale est maximale et quand le paquet d'onde est majoritairement sur l'état noir la population finale est minimale. Le contraste dépend donc du poids relatif de a_a^2 et a_b^2 comme on l'a déjà dit mais aussi des amplitudes de transition de l'étape sonde et donc de \tilde{E}_s , μ_{fa} et μ_{fb} . Pour obtenir le meilleur contraste, il faudrait que l'état noir le soit aussi pour l'étape sonde.

Simulations

La figure 4.24 présente le calcul théorique à partir de l'équation 4.87 des populations dans le rubidium avec une impulsion pompe de 30 fs. Les états brillants (courbes grises) et noirs (courbes noires) sont représentés en fonction du temps pour : cas (a) une impulsion limitée par TF, et cas (b) avec un saut de phase de π . On observe effectivement un fort

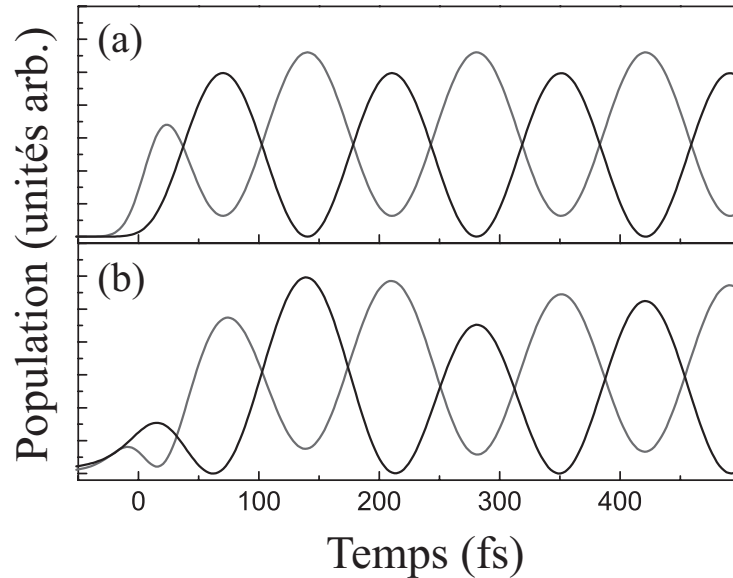


Figure 4.24 – Évolution temporelle théorique dans le rubidium des population des états brillants (courbes grises) et noirs (courbes noires) en fonction du temps pour : cas (a) une impulsion limitée par TF, et cas (b) avec un saut de phase de π .

contraste ($\simeq 90\%$) des oscillations, un déphasage de π entre les états brillants et noirs et un autre déphasage de π entre les cas avec impulsion pompe limitée TF et avec impulsion avec saut de phase. Le régime transitoire met en évidence, dans le cas de la pompe limitée TF, que l'état brillant est peuplé en premier (cas (a) courbe noire) alors que la population de l'état noir n'est maximale qu'après une demi période. Dans le cas avec la pompe façonnée, l'état noir est cette fois significativement peuplé avant que l'état brillant ne soit maximal. Avec le façonnage de la pompe, nous sommes capable de contrôler la dynamique mais aussi de coupler l'état noir au niveau fondamental. Il s'agit en fait de l'état noir défini pour une impulsion limitée TF, qui n'est alors plus un vrai état noir dans le cas d'une impulsion façonnée. A noter enfin, que le régime stationnaire dure environ une période, ce qui correspond à la durée de l'impulsion pompe. La population est transférée de l'état brillant vers l'état noir alors que l'état brillant continue d'être peuplé via la transition depuis l'état fondamental, ce qui ne serait pas le cas pour une impulsion plus courte.

4.3.3.2 Expérience

Les expériences sur le couplage Spin-Orbite ont été effectuées sur l'atome de Rubidium avec un schéma pompe-sonde identique à celui de la section 4.2.4.3, c'est à dire

un atome de Rubidium avec un état fondamental $5s$ ($^1S_{1/2}$) et deux niveaux intermédiaires constitués du doublet de structure fine $5p$ ($^2P_{1/2} - ^2P_{3/2}$ ayant un écart en énergie $\omega_{ba} = 4,48$ rad/fs = 14,73 nm soit $T = 140$ fs. La pompe est mise en forme en amplitude de manière à couper la fréquence de transition directe à deux photons et en phase par un façonneur haute résolution [Monmayrant 04]. Les seules interférences possibles sont celles entre les chemins d'excitations via le doublet de structure fine. La sonde connecte alors ces niveaux avec les états finaux (majoritairement l'état $8s$ et un peu l'état $6d$). Les éléments de transition sont tels que la probabilité de transition depuis l'état brillant est plus important. Le dispositif expérimental est celui de la figure 4.10 excepté pour la sonde qui n'est pas étirée par la paire de réseaux mais compressée à sa durée limitée TF de l'ordre de 25 fs par un compresseur à prismes et la pompe a une durée TF de 50 fs. Les résultats

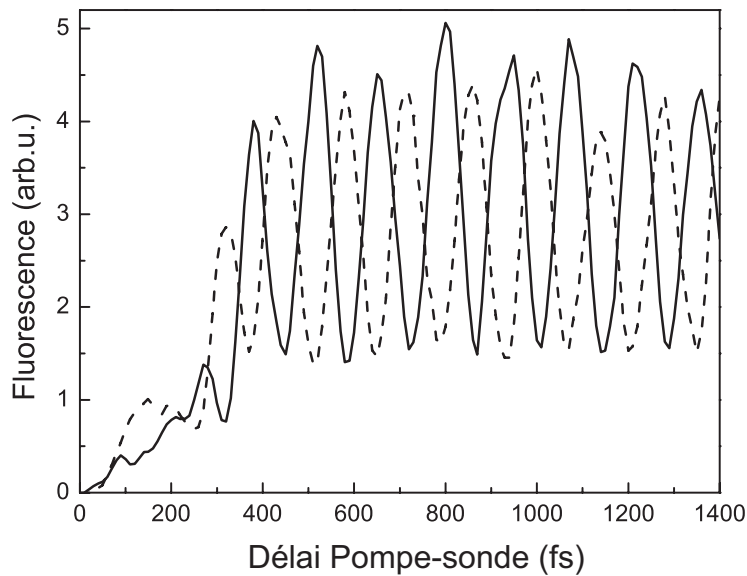


Figure 4.25 – Évolution temporelle expérimentale de la fluorescence de l'état final en fonction du délai pompe-sonde. La courbe en tiret représente la dynamique de la population dans le cas d'une impulsion pompe limitée par TF et la courbe noire pour une impulsion présentant un saut de phase de π entre les niveaux du doublet. L'origine des temps est arbitraire.

Pompe-Sonde expérimentaux sont présentés sur la figure 4.25. La fluorescence de l'état final, proportionnelle à sa population, est tracée en fonction du délai pompe-sonde, avec une origine arbitraire. Les deux oscillations sont déphasées de π conformément aux prévisions théoriques. Dans le cas de l'impulsion limitée par TF, le premier maximum est plus faible que prévu car la durée de l'impulsion (60 fs) n'est pas beaucoup plus courte que la période des oscillations (140 fs). Ainsi, l'état noir commence à être peuplé avant la fin de l'impulsion.

Il est clair que la dynamique de précession de Spin-Orbite (oscillations entre états brillant et noir) est contrôlée par le façonnage de la pompe. De même qu'un délai T a été induit sur la dynamique par un saut de phase de $\theta = \pi$ sur la pompe, un délai arbitraire $T' = \theta' / \Delta\omega$ peut être induit par un saut de phase θ' . Cette approche, relativement simple

dans le cas d'un doublet, peut être étendue à des systèmes avec de multiples niveaux telle qu'une molécule diatomique afin de contrôler la création et les oscillations d'un paquet d'ondes vibrationnelles.

4.3.3.3 Ouverture

Il est possible de généraliser le contrôle par saut de phase vu précédemment à N états vibrationnels d'une molécule. En particulier, la transition Franck-Condon directe peut être modifiée. Une étude théorique de Garraway et al. [Garraway 98] a montré que le décalage par effet Stark de potentiels moléculaires donnait lieu à des transitions non Franck-Condon. Des calculs effectués sur I_2^e par Chris Meier (LCAR) ont montré une analogie complète avec notre expérience sur le Spin-Orbite.

L'idée est de créer une superposition cohérente de plusieurs niveaux vibrationnels $|v_k\rangle$ d'un état excité d'une molécule. Dans le formalisme des états brillant et noirs, cette superposition donne un état brillant et $N - 1$ états noirs. Les fonctions d'onde de l'état brillant et d'un des états noirs sont données par

$$|\psi_B\rangle = \sum_k a_k e^{i\omega_k t} |v_k\rangle \quad (4.109a)$$

$$|\psi_N\rangle = \sum_k (-1)^k a_k e^{i\omega_k t} |v_k\rangle. \quad (4.109b)$$

Il est alors possible de coupler le fondamental à cet état noir en appliquant des sauts de phases de π entre chaque niveau vibrationnel comme schématisé sur la figure 4.26(b). Cette approche est similaire à celle du Spin-Orbite, ainsi l'état précédemment noir devient brillant. A noter que cet état noir correspond à une fonction d'onde localisée au départ sur l'aile droite du potentiel moléculaire. La transition obtenue serait donc, théoriquement, non Franck-Condon.

La figure 4.26 montre l'évolution du paquet d'onde créé par la superposition cohérente des niveaux excités par l'impulsion femtoseconde en fonction du temps. Ce paquet d'onde oscille dans le puit de potentiel mais est créé à différents endroits selon le façonnage. En (a), l'impulsion pompe est limitée TF et en (b) elle est façonnée par des sauts de phase de π comme schématisé sur le dessus. On voit que dans le cas limité TF, on a un paquet d'onde transféré sur l'aile interne (gauche) du potentiel (à environ 4 ps) suivant les règles Franck-Condon. Le paquet oscille ensuite dans le puit de potentiel. Dans le cas avec façonnage, il est plus difficile de dire ce qu'il se passe. On peut tout de même noter que le paquet d'onde semble être majoritairement transféré à droite du potentiel, ce qui suggère une transition non Franck-Condon. Cependant, le façonnage important de la pompe la rend très longue temporellement. Il n'est alors pas vraiment possible de dire quand a réellement lieu la transition. Il est plus probable que l'état excité est alimenté dès le délai 3,8 ps (et du côté gauche du potentiel) et ce pendant au moins une picoseconde.

e. Le choix de cette molécule a été fait suite aux travaux précédents sur la mesure de paquets d'ondes [Katsuki 06, Katsuki 09].

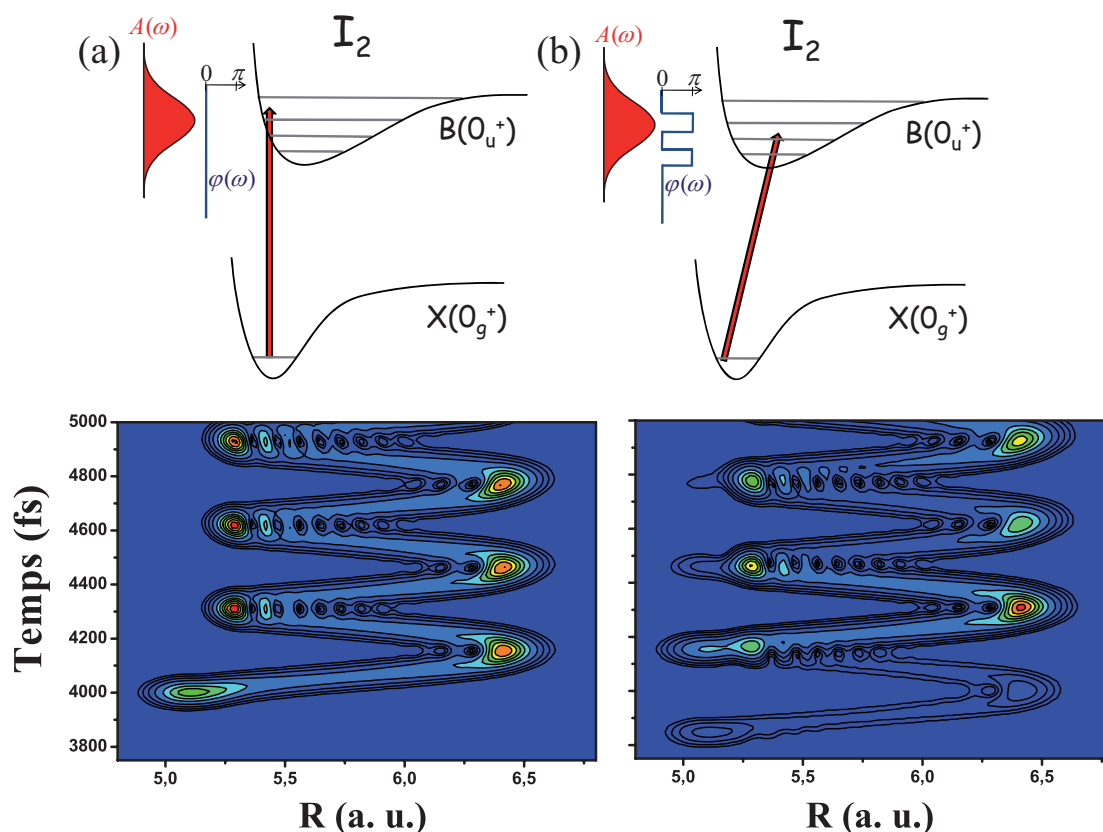


Figure 4.26 – Évolution d'un paquet d'ondes vibrationnelles dans un potentiel moléculaire. Cette superposition est créée par une impulsion limitée TF, en (a), ou façonnée par des sauts de phase de π en (b). L'évolution est représentée en fonction du rayon atomique et du temps. Les schémas au-dessus représentent le type d'interaction, le façonnage et la direction de la transition.

Une façon de voir cela est de noter que l'impulsion façonnée a une phase quasi-périodique et donc est en fait une succession d'impulsions dans le domaine temporel. Chaque impulsion va alors contribuer à la population de l'état excité, et les interférences tendent à refocaliser le paquet d'onde sur la droite.

4.3.4 Conclusion

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés aux transitions à deux photons n'utilisant qu'une impulsion femtoseconde. De telles transitions, appelées « Absorption à deux photons » dans notre cas, sont alors contrôlées par la mise en forme de l'impulsion. Les capacités de modulation de la phase et de l'amplitude des façonneurs modernes permettent ainsi un degré de contrôle très important. Nous en avons montrés quelques exemples sur deux systèmes principaux.

Le premier est la transition directe à deux photons. Dans ce cas, une grande variété d'impulsions permettent de maximiser la probabilité de transition voire même de l'annuler

créant ainsi une impulsion « noire ». Un grand nombre d'expériences en phase condensée ont utilisés ce contrôle pour sélectionner différents signaux voir même faire de l'imagerie sélective sur des embryons vivants.

Le second système est la transition avec un état intermédiaire résonnant avec le champ laser. Dans ce cas, la physique est très différentes et les impulsions maximisant ou annulant la probabilité ne sont plus les mêmes. Un effet supplémentaire vient, de plus, complexifier le système. En effet, l'état final est atteint via deux chemins quantiques possibles. La transition directe à 2 photons ou résonnante à 1+1 photons. Leurs interférences diversifient les phénomènes observés et un grand nombre d'expériences de contrôle jouant sur la phase entre les deux chemins sont possibles.

Un phénomène d'interférences particulier nous a intéressé, il s'agit du contrôle de la précession de Spin-Orbite, superposition cohérente d'un doublet de structure fine. En particulier, nous montrons que le façonnage en phase de l'impulsion excitatrice permet de coupler l'état noir du système atomique au niveau fondamental et ainsi de piloter la dynamique électronique de l'atome.

Toutes ces études ont été faites dans le régime perturbatif. Il est alors possible d'utiliser des expressions analytiques pour postuler et prévoir les phénomènes ensuite mesurés. Cela reste vrai dans le régime intermédiaire, où les perturbations sont prises à des ordres supérieurs. Cependant, les mathématiques ne sont plus vraiment possibles en régime de champ fort où l'intuition et les simulations sont nos seules armes. Il reste ainsi une grande variété de systèmes et de possibilités de contrôle à découvrir et à explorer.

4.4 Contrôle du refroidissement vibrationnel de molécules froides

Les travaux présentés dans cette section constituent le résultat d'une collaboration avec l'équipe de Pierre Pillet du Laboratoire Aimé Cotton (LAC). Nous avons apporté notre savoir faire sur la mise en forme d'impulsion^a et eux la production de molécules froides par photo-association d'atomes froids de Césium.

La production de molécules froides est un champ de recherche très actif en propositions théoriques et expérimentales. Leur production ouvre des perspectives d'applications pour des mesures de précision, production d'horloge moléculaire, les tests fondamentaux comme la variation de constantes ou encore pour l'information et le calcul quantique [Doyle 04, Krems 08, Hutson 06, Dulieu 06]. Différents schémas permettent leur obtention par photo-association [Fioretti 98], résonance magnétique de Feshbach [Theis 04] ou encore par collision [Jochim 03]. Les molécules obtenues par ces techniques sont froides d'un point de vue translationnel mais ont de nombreux niveaux vibrationnels peuplés. D'autres

a. Ainsi qu'un voyage pour notre façonneur infrarouge jusqu'à Orsay dans le 806 de ma chère directrice de thèse.

techniques sont alors utilisées pour porter les molécules dans leur niveau le plus bas.

Une de ces techniques a été proposée dans une publication antérieure à ces travaux [Viteau 08] et propose l'obtention de molécules froides dans le niveau vibrationnel $v = 0$ du niveau fondamental. Ce résultat est obtenu par pompage optique (processus incohérent) utilisant quelques centaines d'impulsion large bande femtosecondes. La possibilité de mettre en forme en amplitude ces impulsions, par notre façonneur, a alors ouvert la voie au choix de l'état vibrationnel cible du pompage optique. Cette technique de contrôle incohérent a alors permis de peupler sélectivement les niveaux $v = 0, 1, 2, 7$ [Sofikitis 09].

Je vais présenter le fonctionnement de l'expérience en détaillant les trois étapes que sont : la photo-association d'atomes froids, le pompage vers un niveau vibrationnel cible et enfin le schéma de détection.

4.4.1 La photo-association

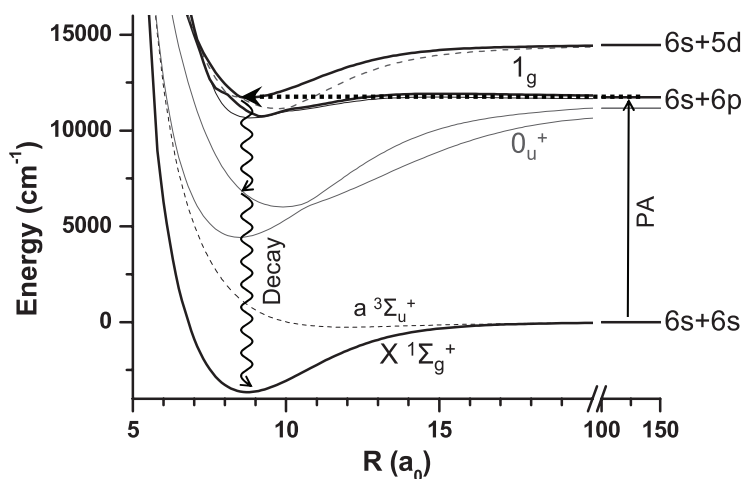


Figure 4.27 – Schéma de la photo-association de molécules de Cs_2 extrait de [Viteau 08]. Courbes de potentiels moléculaires principales utilisées dans le processus de photo-association. La formation débute par la collision de deux atomes de Cs dans leur niveau fondamental (asymptote du potentiel moléculaire fondamental) puis par absorption d'un photon légèrement désaccordé sur la transition $6s - 6p$. Par conversion interne puis cascade radiative, une molécule est formée dans l'état fondamental.

Les molécules de Cs_2 sont préparées à partir d'une vapeur d'atomes de Césium refroidis et piégés dans un MOT « Magneto Optical Trap » [Metcalf 99]. Les atomes doivent vérifier deux conditions pour être photo-associés [Fioretti 98]. Deux atomes doivent d'abord rentrer en collisions et en même temps absorber un photon (issu d'un laser continu) dont la fréquence est légèrement désaccordée par rapport à la transition $6s_{1/2} - 6p_{3/2}$. Le schéma de photo-association est visible sur la figure 4.27. Ce photon crée une molécule sur la branche asymptotique d'un potentiel moléculaire électronique excité. Par couplage interne puis par émission spontanée en cascade via les potentiel 0_u^+ , une molécule est obtenue dans son

état électronique fondamental $X^1\Sigma_g^+$. L'émission spontanée implique que plusieurs niveaux vibrationnels sont peuplés.

4.4.2 La détection

Le processus de détection doit discriminer les différents niveaux vibrationnels peuplés. Pour cela, on utilise une ionisation résonnante multiphotonique REMPI par un laser pulsé picoseconde (voir figure 4.28). Sa fréquence est accordée sur la transition depuis un état vibrationnel fondamental vers l'état moléculaire excité $C^1\Pi_u$. On mesure alors les ions produits en scannant la fréquence du laser. Les spectres obtenus représentent les états vibrationnels peuplés du niveau fondamental.

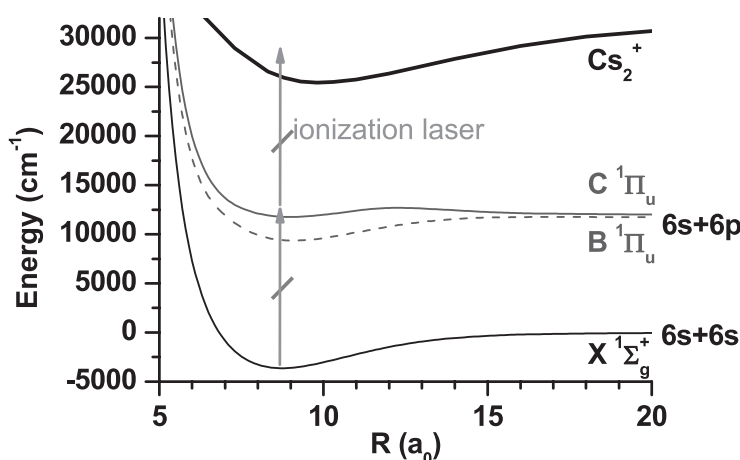


Figure 4.28 – Schéma de détection par ionisation REMPI extrait de [Viteau 08]. Un laser picoseconde est accordé sur la transition du fondamental vers le potentiel $C^1\Pi_u$. Les ions sont détectés en fonction de la longueur d'onde du laser. Les spectres obtenus reflètent la population vibrationnelle de l'état fondamental.

4.4.3 Le pompage optique

Le pompage consiste en un schéma incohérent, séquence d'absorption et de désexcitation. Une impulsion femtoseconde excite les molécules depuis l'état fondamental, noté X par simplicité vers l'état excité $B^1\Pi_u$ ^b, noté B par simplicité. Cependant, un façonnage en amplitude rend un des états vibrationnels cible noir. L'exemple de la figure 4.29 rend l'état $v_X = 0$ noir. En effet, les hautes fréquences sont mises à zéro de manière à interdire toutes transitions depuis $v_X = 0$ (cycle 1). Après l'excitation, les molécules se désexcitent spontanément vers les différents niveaux vibrationnels fondamentaux (cycle 1'). Une partie de ces molécules s'accumulent alors en $v_X = 0$. En répétant, ce cycle un grand nombre de fois on obtient une distribution de molécules majoritairement centrée sur $v_X = 0$ (cycle n), les molécules sont froides vibrationnellement. L'exemple de $v_X = 0$ peut être répété pour tout autre niveau vibrationnel, le façonnage est alors plus complexe.

b. La courbe de potentiel de cet état est représentée sur la figure 4.28.

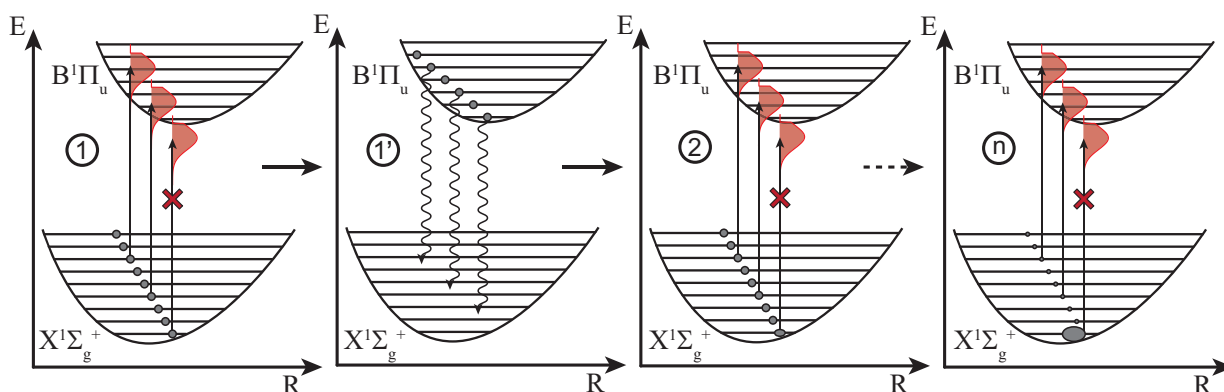


Figure 4.29 – Schéma de pompage optique. Une impulsion femtoseconde large bande excite les molécules de l'état fondamental $X^1\Sigma_g^+$ vers l'état $B^1\Pi_u$. L'état vibrationnel cible, $v_X = 0$ sur la figure, est noir pour cette transition. Les hautes fréquences du spectre sont mises à zéro et ce niveau n'est pas couplé aux niveaux v_B . La désexcitation spontanée des molécules les redistribue dans les différents niveaux v_X , et donc un peu dans $v_X = 0$. On répète le cycle un grand nombre de fois, ce qui accumule les molécules dans $v_X = 0$ comme schématisé au cycle n.

4.4.4 Résultats expérimentaux

4.4.4.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est présenté schématiquement sur la figure 4.30. Les atomes de Césium sont piégés dans un MOT constitué de 6 lasers et deux bobines produisant un piège pour les atomes de Césium. Le laser de photo-association est un Titane-Saphir continu, alors que celui pour la détection REMPI est un laser pulsé picoseconde à colorant. Les molécules ionisées sont détectées par une paire de plaques à micro-canaux à travers un spectromètre de masse à temps de vol. La longueur d'onde de ce laser est scannée pour reconstruire les spectres vibrationnels des molécules. Enfin un laser femtoseconde (oscillateur Titane-saphir) de taux de répétition 80 MHz et de fréquence centrale 773 nm passe par notre façonneur haute résolution. Il est utilisé ici en géométrie repliée et on ne se sert que du façonnage en amplitude. Une fois mis en forme, il pompe les molécules dans le niveau vibrationnel cible.

4.4.4.2 Résultats

La mise en forme adéquate pour peupler les niveaux 0, 1 2 et 7 a été calculée puis appliquée par le façonneur aux impulsions femtoseconde. Les spectres correspondants à ces mises en formes ainsi que les spectres d'ions détectés par REMPI sont présentés sur la figure 4.31. En (a) les hautes fréquences ont été éteintes interdisant le pompage des molécules déjà dans le niveau $v = 0$, le spectre d'ions correspondant est représenté à droite et les transitions depuis les niveaux vibrationnels de l'état électronique X vers ceux de l'état B sont précisés. 0 – 1 signifie, par exemple, une transition depuis l'état X, du niveau $v_X = 0$, vers l'état B, du niveau $v_B = 1$. On remarque que dans les cas (a) et (b) le signal est très bon, seules les transitions depuis l'état cible sont présentes. Cependant pour le spectre

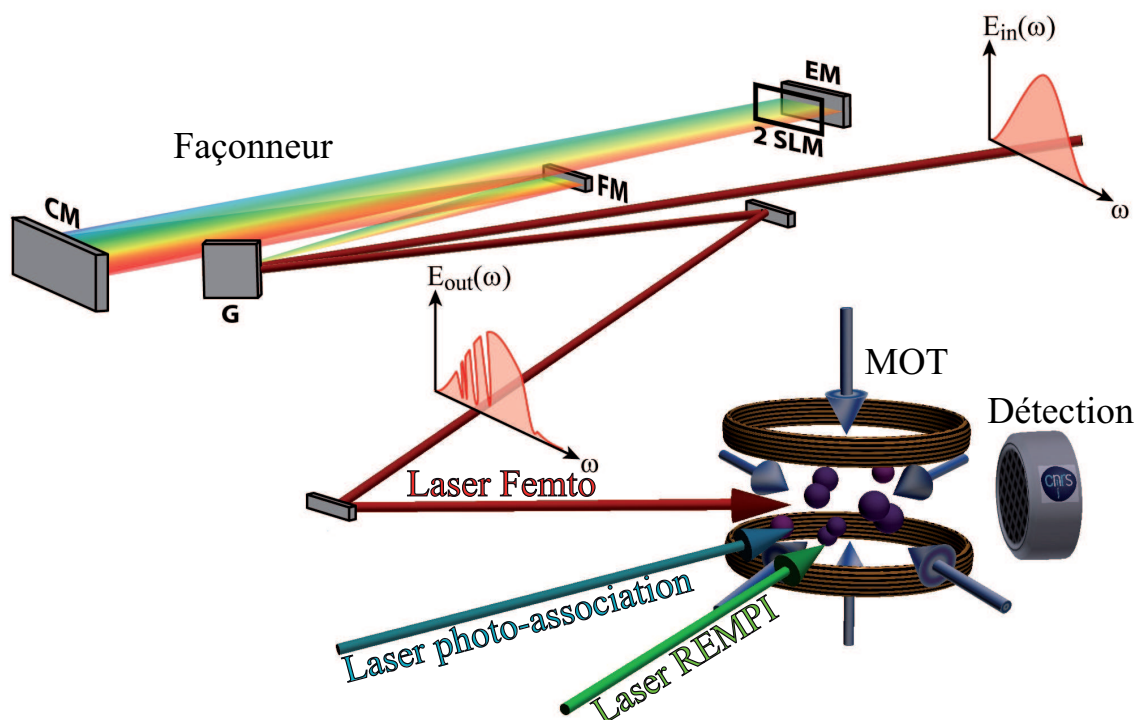


Figure 4.30 – Dispositif expérimental. Les atomes de Césium sont piégés dans un MOT constitué de 6 lasers et deux bobines produisant un champ magnétique. Le laser de photo-association est un Titane-Saphir continu, celui pour la détection REMPI est un laser pulsé picoseconde à colorant. Les molécules ionisées sont détectées par une paire de plaques à micro-canaux à travers un spectromètre de masse à temps de vol. Un laser femtoseconde (oscillateur Titane-saphir) de taux de répétition 80 MHz et de fréquence centrale 773 nm passe par le façonneur haute résolution utilisé en géométrie repliée.

(c) on note la présence d'un léger signal correspondant aux transitions depuis $v_X = 0$ et dans le spectre (d) la présence des transitions $v_X = 0$ et $v_X = 1$. Ceci est probablement dû à la complexité de la mise en forme. En effet, le spectre femtoseconde doit avoir des extinctions très bonnes sur une faible largeur spectrale. Or la pixellisation empêche d'avoir une résolution parfaite, d'où une extinction non-totale.

Une autre approche consiste à n'autoriser que les transitions ayant les coefficients Franck-Condon les plus importants. Le résultat correspondant à l'accumulation des molécules dans $v_X = 1$ est représenté sur la figure 4.32. Le spectre femtoseconde est une succession de pics mais le spectre d'ions est bien identique à celui de la figure 4.31(b). Des simulations ont montré que ce cas permet une dynamique de population plus rapide et plus efficace. Ces simulations donnent une population de 57% accumulée dans $v_X = 1$ après 10^5 impulsions. La variation expérimentale de la population en fonction du nombre d'impulsions^c est qualitativement en bon accord avec la simulation mais les mesures ne donnent pas de valeurs quantitatives [Sofikitis 09].

c. Le nombre d'impulsions est réglé par un filtre acousto-optique.

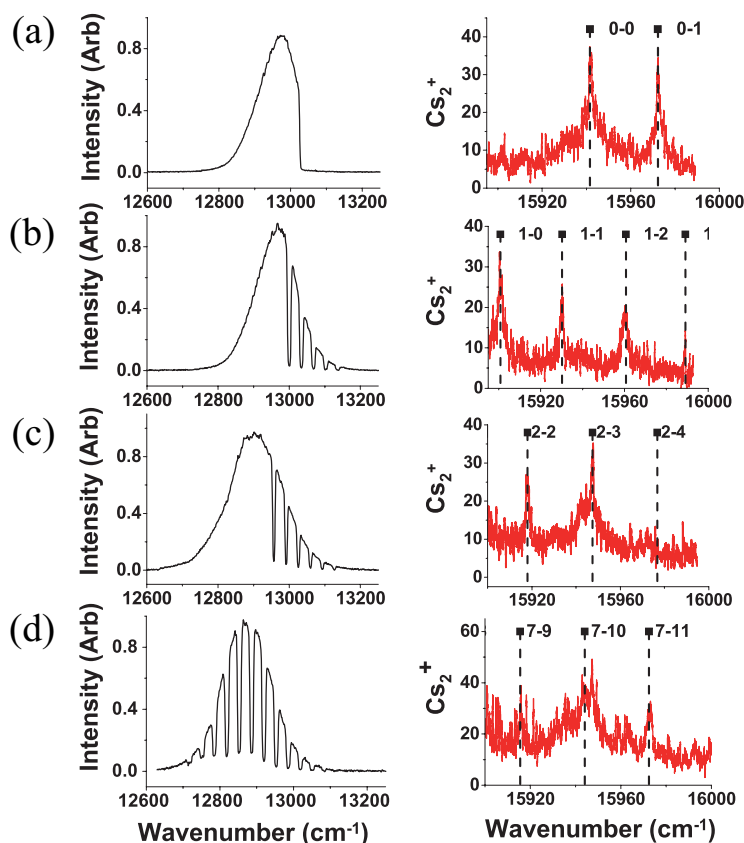


Figure 4.31 – Résultats expérimentaux. A gauche sont tracés les spectres des impulsions femtosecondes façonnées et à droite la spectre de détection REMPI correspondant. Chaque trou dans le spectre femtoseconde correspond à une transition interdite depuis le niveau cible. Ce niveau vibrationnel est : $v_X = 0$ en (a), $v_X = 1$ en (b), $v_X = 2$ en (c) et $v_X = 7$ en (d).

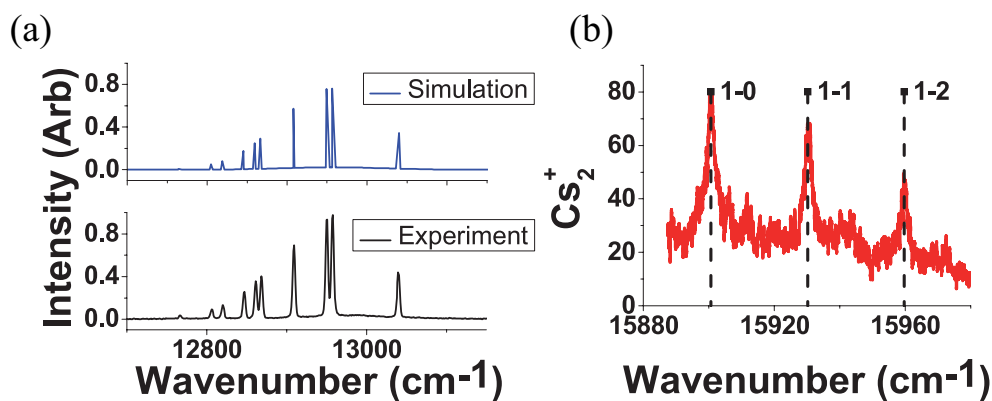


Figure 4.32 – Un façonnage théorique et expérimental est représenté en (a) sous forme de « pics ». Il permet d'exciter uniquement les transitions ayant les coefficients Franck-Condon les plus importants depuis $v_X \neq 1$. Le spectre d'ions est représenté en (b) et est similaire à celui à « trou » de la figure 4.31(b).

4.4.5 Conclusion

Le contrôle, ici incohérent, par le façonnage d'impulsions femtosecondes a été étendu avec succès à la physique des molécules froides. En particulier, nous avons produit sélectivement des molécules de Cs_2 dans leur état électronique fondamental et dans le niveau vibrationnel de notre choix. Il s'agit ici d'un processus d'excitation et de désexcitation radiative permettant d'accumuler les molécules dans le niveau désiré. Différentes mises en formes aboutissant au même résultat ont été envisagées et mises en œuvre.

Le taux de population atteint est limité par la bande du laser femtoseconde, en effet les niveaux vibrationnels les plus hauts ne sont pas excités par le laser vers l'état B. De plus l'extinction par le façonneur n'étant pas totale, une partie des molécules dans $v_X = 0$ sont excitées vers d'autres niveaux.

Enfin, les perspectives sont de deux ordres. Il faut d'abord améliorer le taux de population par un meilleur façonnage et une bande spectrale plus large et une extension de cette technique au refroidissement rotationnel est envisagée. Enfin, il faut noter que ce schéma de refroidissement est difficilement adaptable à d'autres molécules. En effet, dans le cas du Césium les différentes courbes de potentiels s'arrangent idéalement pour permettre le refroidissement selon le schéma proposé, ce qui n'est pas forcément le cas dans d'autres molécules. Pour finir, des schémas de contrôle cohérent ont été proposés par plusieurs groupes mais sans succès pour l'instant [[Bartana 01](#)].

CONCLUSION

Cette thèse m'a introduit dans le monde de l'interaction ultra-rapide entre la lumière et la matière. Le champ d'étude couvert par cette problématique s'est avéré beaucoup plus large que prévu initialement, en particulier pour la factorisation de nombres et le refroidissement de molécules. Outre les notions de contrôle abordées, il a fallu m'intéresser aux techniques de plus en plus variées de façonnage et de caractérisation. Cette étude a donné lieu à un tutoriel co-écrit avec Béatrice Chatel et Antoine Monmayrant, où les notions de bases (voire même un peu plus) sont passées en revue.

Pendant mes trois années au laboratoire LCAR, je me suis intéressé au façonnage dans l'UV en utilisant un AOPDF. Cet outil utilise la diffraction acousto-optique pour façonner les impulsions. Nous avons démontré ses capacités de mise en forme pour des phases « classiques », par exemple pour différents ordres du développement de Taylor ou des trains complexes d'impulsions. Outre le façonnage, nous en avons testé l'accordabilité. Pour cela, trois sources ont été construites dans l'UV. Elles utilisent diverses sommes de fréquences entre un amplificateur visible (NOPA) et le rayonnement fondamental.

La problématique de la génération de sources accordables est toujours associée à un problème d'accordabilité de la caractérisation. Différents dispositifs ont alors été mis en place, cross-corrélation et mesures XFROG par somme ou différence de fréquences. J'ai pu par la mise en œuvre de ces différentes techniques me familiariser avec l'optique non-linéaire et ses richesses. Une étude en efficacité a ensuite montré une valeur de l'ordre de 30% dépendante de la longueur d'onde et de l'énergie à l'entrée. Des impulsions façonnées ayant une énergie d'environ 5 μJ (au maximum) à 270 nm ont été obtenues. Nous avons aussi mesuré un début d'absorption à deux photons à cette longueur d'onde limitant l'énergie en entrée.

L'utilisation de l'AOPDF a alors été envisagée et testée pour produire des impulsions accordables et façonnables dans l'UV. Pour cela, une étude de la génération de continuum dans des fibres photoniques micro-structurées a été débutée. Des résultats encourageants, avec notamment l'obtention d'un continuum dans la zone des 330 nm, sont malheureusement confrontés à de gros problèmes de stabilité. Leur utilisation comme signal d'une amplification paramétrique semble donc compromise.

L'AOPDF a aussi été utilisé pour démontrer les propriétés d'accordabilité des mesures de cross-corrélation dans le diamant. Nous avons (re)-démontré que l'absorption différentielle d'une sonde façonnée dans le diamant est proportionnelle à la cross-corrélation de la sonde par la pompe. Des mesures de mises en formes diverses ont alors corroboré ce résultat. La technique demande aujourd'hui une étude plus approfondie afin de détailler, entre autre, la gamme de longueur d'onde mesurable ou encore l'effet d'une trop haute intensité. En effet, il semblerait qu'une trop haute intensité crée des porteurs de charges augmentant alors l'absorption linéaire.

Enfin, nous avons commencé une campagne de mesures spatio-temporelles (mon successeur en présentera les conclusions dans la prochaine thèse de l'équipe). Elles permettront de comprendre et peut être de compenser les différents couplages entre les profils spatial et temporel de l'impulsion diffractée par l'onde acoustique. La caractérisation est

basée sur l'interférométrie spectrale encodée spatialement, équivalent à référence de la technique SEA-Spider. Cette mesure permet de mesurer exactement la fonction de transfert de l'AOPDF et donc de visualiser les effets introduits sur les impulsions façonnées.

Après ce volet plutôt technique, je me suis intéressé à l'application du façonnage pour la factorisation de grands nombres par les sommes de Gauss. Ce sont des sommes de termes de phases quadratiques dites de Gauss. La présence de ces sommes dans de nombreux systèmes physiques et leur comportement périodique en a fait un outil remarquable pour la factorisation dans le domaine classique (au contraire des algorithmes quantiques). Nous avons développé un schéma de factorisation qui utilise nos compétences en façonnage et contrôle. Ainsi l'étude des limites de notre façonneur haute résolution a permis de générer un train d'une trentaine d'impulsions dont la phase relative est contrôlée. La programmation de la phase de Gauss adéquate et la mesure du train donne alors un interférogramme dont la valeur à la fréquence centrale est proportionnelle à la somme de Gauss. On obtient par cette méthode la factorisation de nombres à plusieurs chiffres.

Le nombre de chiffre est limité par l'existence de *fantômes*, artefact dû à la troncature de la somme et donc au nombre limité d'impulsions dans le train. Cet effet a été contrecarré par l'utilisation de sommes dites aléatoires. Un nombre de 13 chiffres a alors été factorisé par nos 30 impulsions. Il faut noter que toutes les expériences faites à ce jour nécessitent un calcul préalable des phases de Gauss. Elles sont alors programmées dans leurs systèmes, pour nous il s'agit de la phase relative des impulsions. Les démonstrations expérimentales ne sont donc que des expériences de principes démontrant les possibilités de factorisation par un système physique.

Cette dernière considération n'est plus entièrement vraie à la vue de notre dernière proposition théorique. Il s'agit de la somme de fréquences entre un train d'impulsions et une longue impulsion à dérive de fréquence. La phase quadratique de l'impulsion chirpée est transférée au train dont le spectre se transforme à la fréquence centrale en une somme de Gauss. La phase de Gauss est alors encodée par le délai entre impulsions du train ainsi que par la valeur de la phase quadratique. Une mise en œuvre expérimentale est prévue pour bientôt.

Le dernier thème abordé utilise les compétences acquises dans le façonnage pour développer des expériences de contrôle cohérent. Nous avons en effet présenté les résultats de mesure et de contrôle d'une dynamique transitoire dans le Rubidium. Le rôle de l'impulsion sonde a été étudié en détail sur l'exemple des *transitoires cohérents*. Nous avons montré que les rôles de la pompe et de la sonde sont en fait symétriques : la dynamique mesurée dans le cas d'une pompe chirpée et d'une sonde courte est identique à celle du cas opposé pompe courte et sonde chirpée. Nous avons détaillé les origines physiques différentes qui donnent malgré tout le même résultat. Le rôle équivalent entre pompe et sonde a alors été poussé jusqu'à mettre en forme les deux impulsions. Un résultat étonnant a été obtenu quand les deux impulsions sont façonnées par des chirps opposés. La dynamique obtenue est alors similaire à celle donnée par deux impulsions limitées TF. Les applications d'un tel résultat pour les expériences de contrôle et de caractérisation ont alors été discutés.

Cette dernière expérience peut en fait se classer sous l'appellation de transition à

deux photons, dans lequel se range aussi l'absorption directe à deux photons. Nous avons passé en revue les différents techniques de façonnage pour le contrôle de cette absorption et introduit notre expérience de contrôle des oscillations de Spin-Orbite dans le Rubidium. Il s'agit de l'excitation d'une superposition cohérente d'états de structure fine. Le formalisme des états brillant et noir a alors montré que l'état noir du système peut être connecté à l'état fondamental. Ce résultat contre-intuitif est obtenu par l'excitation du niveau fondamental par une impulsion façonnée présentant un saut de phase de π à une fréquence comprise entre les deux niveaux de structure fine.

Enfin, une collaboration riche en nouveauté nous a introduit dans le monde des molécules et des atomes froids. Par la réunion de nos savoirs faire réciproques, une expérience de contrôle de l'état vibrationnel de molécules froides a été effectuée. Le résultat est obtenu par pompage optique utilisant une impulsion femtoseconde façonnée en amplitude. Les molécules sont pompées dans un état vibrationnel cible. Le pompage vers les états $v=0, 1, 2$ et 7 de l'état fondamental de molécules de Césium a été mis en œuvre.

Annexe A

Formalisme et notations

A.1 Champ électrique

A.1.1 Définitions - Notations

Le champ électrique est une quantité réelle, que nous noterons $\mathcal{E}(t)$ et que nous décomposerons comme :

$$\mathcal{E}(t) = \frac{1}{2} [E(t) + E^*(t)] = \Re[E(t)] \quad (\text{A.1})$$

$E(t)$ est le champ complexe correspondant à sa partie de fréquence positive, il se met sous la forme :

$$E(t) = A(t)e^{-i\varphi(t)} \quad (\text{A.2})$$

avec $\varphi(t) = \omega_0 t + \varphi_f(t)$ où ω_0 est la pulsation centrale du champ électrique, $A(t)$ son enveloppe et $\varphi(t)$ sa phase temporelle, $\varphi_f(t)$ étant une phase temporelle supplémentaire due à un façonnage.

On note $\tilde{E}(\omega)$ la transformée de Fourier directe de $E(t)$, que l'on décompose en amplitude et phase spectrale :

$$\tilde{E}(\omega) = A(\omega)e^{i\phi(\omega)} \quad (\text{A.3})$$

Attention, il ne faut pas se laisser abuser par les notations prises dans les équations [A.2](#) et [A.3](#) : $A(t)$ et $A(\omega)$ ne sont pas liées par transformée de Fourier. De même, $\varphi(t)$ et $\phi(\omega)$ n'ont pas de lien direct. Ces notations traduisent juste la séparation habituelle en enveloppe réelle lentement variable et phase.

A.1.2 Durée - largeur spectrale

Pour avoir des durées et des largeurs spectrales d'impulsions dont la définition ne dépend pas de la forme, on utilise la définition RMS pour « Root Mean Square ». On note

Δt la durée RMS et $\Delta\omega$ la largeur spectrale RMS, elles sont définies par :

$$\Delta t = \sqrt{\langle t^2 \rangle - \langle t \rangle^2} \quad (\text{A.4a})$$

$$\Delta\omega = \sqrt{\langle (\omega - \omega_0)^2 \rangle - \langle (\omega - \omega_0) \rangle^2} \quad (\text{A.4b})$$

$$(\text{A.4c})$$

où les moyennes sont définies par :

$$\langle t \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} dt t |E(t)|^2 \quad \text{et} \quad \langle \omega - \omega_0 \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega (\omega - \omega_0) |\tilde{E}(\omega)|^2 \quad (\text{A.5a})$$

$$\langle t^2 \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} dt t^2 |E(t)|^2 \quad \text{et} \quad \langle (\omega - \omega_0)^2 \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega (\omega - \omega_0)^2 |\tilde{E}(\omega)|^2 \quad (\text{A.5b})$$

Dans le cas particulier d'une Gaussienne limitée par Transformée de Fourier, on obtient ces expressions pour le champ électrique :

$$E(t) = E_0 e^{-\frac{t^2}{4\Delta t^2}} e^{-i\omega_0 t} \quad (\text{A.6a})$$

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}_0 e^{-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4\Delta\omega^2}} \quad (\text{A.6b})$$

Cependant les expérimentateurs le savent bien : on ne mesure que des largeurs à mi-hauteur (ou presque). Le plus souvent même, on mesure la largeur à mi-hauteur d'une intensité. Il est en effet très rare que l'on arrive à mesurer une largeur RMS ou à $1/e$ d'un simple coup d'œil sur un signal expérimental. Nous appellerons donc durées et largeur spectrale les quantités $\Delta t_{1/2}$ et $\Delta\omega_{1/2}$. Je présente ici le lien entre les largeurs à mi-hauteur en intensité dite FWHM et les grandeurs RMS.

Le champ électrique s'écrit avec ces notations :

$$E(t) = E_0 e^{-2 \ln(2) \frac{t^2}{\Delta t_{1/2}^2}} e^{-i\omega_0 t} \quad (\text{A.7a})$$

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}_0 e^{-2 \ln(2) \frac{(\omega - \omega_0)^2}{\Delta\omega_{1/2}^2}} \quad (\text{A.7b})$$

Ces grandeurs FWHM sont reliées aux valeurs RMS par :

$$\Delta t_{1/2} = \sqrt{8 \ln(2)} \Delta t \simeq 2,35 \Delta t \quad (\text{A.8a})$$

$$\Delta\omega_{1/2} = \sqrt{8 \ln(2)} \Delta\omega \simeq 2,35 \Delta\omega \quad (\text{A.8b})$$

Ainsi définies, les largeurs spectrales et les durées de ce champ limité par transformée de Fourier sont liées par les relations :

$$\Delta t_{1/2} \cdot \Delta\omega_{1/2} = 4 \ln(2) \simeq 2,8 \quad (\text{A.9a})$$

$$\Delta t \cdot \Delta\omega = 1/2 \quad (\text{A.9b})$$

Pour des raisons de commodité de calcul, nous utiliserons dans cette thèse les valeurs RMS, les applications numériques ou les mesures expérimentales seront alors données implicitement en FWHM.

A.1.3 Fréquence instantanée-Temps de groupe

A partir de l'expression des champs, en particulier leur phase spectrale et temporelle, deux quantités importantes pour le contrôle peuvent être définies.

La première est la fréquence instantanée, elle est définie par :

$$\omega(t) = -\frac{d\phi(t)}{dt} \quad (\text{A.10})$$

et correspond à la fréquence dite « instantanée » à laquelle le champ $E(t)$ oscille à l'instant t .

La deuxième s'appelle le temps de groupe, il est défini par :

$$\tau(\omega) = \frac{d\phi(\omega)}{d\omega} \quad (\text{A.11})$$

et correspond à l'instant d'arrivée de la fréquence ω dans l'impulsion. Ces deux grandeurs permettent de connaître, par exemple, à quel moment l'impulsion est résonnante avec une transition électronique ou la structure fréquentielle d'une impulsion mise en forme.

A.2 Transformée de Fourier

A.2.1 Définitions

\mathcal{F} désigne la transformée de Fourier directe et on notera $\tilde{E}(\omega)$ la transformée de Fourier de $E(t)$. Celle-ci est définie par :

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) e^{i\omega t} = \mathcal{F}[E(t)](\omega) \quad (\text{A.12})$$

La transformée de Fourier inverse est notée \mathcal{F}^{-1} et est définie par :

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \tilde{E}(\omega) e^{-i\omega t} = \mathcal{F}^{-1}[\tilde{E}(\omega)](t) \quad (\text{A.13})$$

A.2.2 Propriétés et transformées de Fourier usuelles... ou non

Un pic de Dirac temporel, centré en t_0 a pour transformée de Fourier :

$$\mathcal{F}[\delta(t - t_0)](\omega) = e^{i\omega t_0} \quad (\text{A.14})$$

Une impulsion monochromatique, centrée en ω_0 s'écrit dans le domaine temporel comme :

$$\mathcal{F}^{-1}[\delta(\omega - \omega_0)](t) = \frac{1}{2\pi} e^{-i\omega_0 t} \quad (\text{A.15})$$

La distribution de Heaviside notée $\mathcal{H}(t)$ et définie par :

$$\mathcal{H}(t) = \begin{cases} 1 & \text{pour } t > 0 \\ 0 & \text{pour } t < 0 \end{cases} \quad (\text{A.16})$$

s'exprime dans le domaine spectral par :

$$\tilde{\mathcal{H}}(\omega) = \pi\delta(\omega) + iP \left(\frac{1}{\omega} \right) \quad (\text{A.17})$$

avec P désignant la partie principale de Cauchy.

De plus, on a les relations suivantes entre produit et produit de convolution (noté \otimes) :

$$\mathcal{F}[f.g] = \frac{1}{4\pi^2} \mathcal{F}[f] \otimes \mathcal{F}[g] \quad (\text{A.18})$$

$$\mathcal{F}[f \otimes g] = \mathcal{F}[f] . \mathcal{F}[g] \quad (\text{A.19})$$

En combinant ces différents résultats, on obtient la relation suivante dans le domaine spectral pour un décalage temporel de t_0 :

$$\mathcal{F}[E(t - t_0)](\omega) = \mathcal{F}[E(t)](\omega) e^{i\omega t_0} \quad (\text{A.20})$$

A.2.3 TF d'une impulsion limitée par transformée de Fourier

On considère le champ électrique complexe $\tilde{E}(\omega)$ dans le domaine spectral :

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}_0 e^{-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4\Delta\omega^2}} \quad (\text{A.21})$$

avec $\Delta\omega$ la largeur spectrale RMS et \tilde{E}_0 un coefficient de normalisation défini par :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega |\tilde{E}(\omega)|^2 = 1 \quad (\text{A.22})$$

soit en utilisant l'intégrale d'une Gaussienne ^a [Gradshteyn 80]

$$\tilde{E}_0^2 = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\Delta\omega}. \quad (\text{A.23})$$

Sa transformée de Fourier inverse, correspondant au champ dans le domaine temporel, est donnée par :

$$E(t) = \mathcal{F}^{-1}[\tilde{E}(\omega)] = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \tilde{E}(\omega) e^{-i\omega t} \quad (\text{A.24a})$$

$$= \frac{\tilde{E}_0}{2\pi} e^{-i\omega_0 t} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega e^{-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4\Delta\omega^2} - i(\omega - \omega_0)t} \quad (\text{A.24b})$$

a. $\int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{-a^2 t^2 + bt} = \frac{\sqrt{\pi}}{a} e^{\frac{b^2}{4a^2}}$

En utilisant l'intégrale d'une gaussienne, on obtient :

$$E(t) = \frac{\tilde{E}_0 \Delta\omega}{\sqrt{\pi}} e^{-i\omega_0 t} e^{-\Delta\omega^2 t^2} \quad (\text{A.25a})$$

$$= E_0 e^{-\frac{t^2}{4\Delta t_0^2}} e^{-i\omega_0 t} \quad (\text{A.25b})$$

avec

$$\Delta t_0 \Delta\omega = \frac{1}{2} \quad \text{et} \quad E_0 = \frac{\tilde{E}_0}{2\Delta t_0 \sqrt{\pi}}. \quad (\text{A.26})$$

A.2.4 TF d'une impulsion avec une phase quadratique

On considère maintenant un champ électrique avec une phase quadratique \tilde{E}_c dans le domaine spectral, avec c pour « chirpé » :

$$\tilde{E}_c(\omega) = \tilde{E}_0 e^{-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{4\Delta\omega^2}} e^{i\frac{\phi^{(2)}}{2}(\omega-\omega_0)^2} \quad (\text{A.27})$$

Le champ électrique temporel correspondant est donné par :

$$E_c(t) = \mathcal{F}^{-1} [\tilde{E}_c(\omega)] = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \tilde{E}_c(\omega) e^{-i\omega t} \quad (\text{A.28a})$$

$$= \frac{\tilde{E}_0}{2\pi} e^{-i\omega_0 t} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega e^{-\gamma(\omega-\omega_0)^2 - i(\omega-\omega_0)t} \quad (\text{A.28b})$$

Avec $\gamma = \frac{1}{4\Delta\omega^2} - i\frac{\phi^{(2)}}{2}$. En exprimant l'intégrale de la gaussienne on obtient :

$$E_c(t) = \frac{\tilde{E}_0}{2\sqrt{\pi\gamma}} e^{-i\omega_0 t} e^{-\frac{t^2}{4\gamma}} \quad (\text{A.29a})$$

$$\text{et} \quad \frac{1}{\gamma} = \frac{1}{\Delta t_c^2} + i\alpha = \frac{1}{\Delta t_0 \Delta t_c} e^{-i\theta_c} \quad (\text{A.29b})$$

avec Δt_c le temps « chirpé », α le paramètre de chirp et θ_c une phase relative comparée à l'impulsion limitée par TF donnés par :

$$\Delta t_c = \Delta t_0 \sqrt{1 + \frac{\phi^{(2)^2}}{4\Delta t_0^4}} \quad (\text{A.30a})$$

$$\alpha = \frac{\phi^{(2)}}{2\Delta t_0^4 + \frac{\phi^{(2)^2}}{2}} = \frac{\phi^{(2)}}{2\Delta t_0^2 \Delta t_c^2} \quad (\text{A.30b})$$

$$\theta_c = \arctan \left(-\frac{\phi^{(2)}}{2\Delta t_0^2} \right) \quad (\text{A.30c})$$

On obtient finalement pour le champ électrique :

$$E_c(t) = \frac{\tilde{E}_0}{2\sqrt{\pi\Delta t_0\Delta t_c}} e^{-i\frac{\theta_c}{2}} e^{-\frac{t^2}{4\Delta t_c^2}} e^{-i\omega_0 t - i\alpha t^2} \quad (\text{A.31a})$$

$$E_c(t) = E_{0c} e^{-\frac{t^2}{4\Delta t_c^2}} e^{-i\omega_0 t - i\alpha t^2} \quad (\text{A.31b})$$

où $E_{0c} = \frac{\tilde{E}_0 e^{-i\frac{\theta_c}{2}}}{2\sqrt{\pi\Delta t_0\Delta t_c}}$.

Annexe B

Marche aléatoire

La marche aléatoire a été utilisée pour donner une estimation de la troncature de la somme de Gauss en fonction du nombre N . Pour cela, nous avons utilisé l'expression approchée de la distribution de probabilité du marcheur ivre dans l'approximation des grands nombres. Cette annexe est l'occasion de présenter la théorie et d'obtenir les expressions exactes. Enfin nous verrons que la limite des grands nombres est très rapidement atteinte, d'où la validité de nos calculs.

B.1 Expression exacte

On note \mathbf{R}_n , le rayon vecteur donnant la position d'un marcheur complètement « ivre » après n pas. La marche commençant à l'origine on a :

$$\mathbf{R}_n = \sum_{j=1}^n \mathbf{Y}_j \quad (\text{B.1})$$

où le vecteur \mathbf{Y}_j représente le déplacement du j -ième pas. Ces vecteurs sont un ensemble de variables aléatoires indépendantes (le pas $j+1$ ne dépend pas du pas j) et de même densité de probabilité notée $p_n(\mathbf{r}) = p(\mathbf{r})$. La probabilité de trouver notre marcheur dans une surface $d\tau$ autour de la position \mathbf{r} est notée $P_n(\mathbf{r})d\tau$ où $P_n(\mathbf{r})$ est la densité de probabilité pour la position \mathbf{R}_n du marcheur. La position du marcheur au pas $n+1$ est égale à :

$$\mathbf{R}_{n+1} = \mathbf{R}_n + \mathbf{Y}_{n+1} \quad (\text{B.2})$$

soit la somme de deux variables indépendantes qui correspond du point de vue des probabilités à leur produit de convolution [Hughes 95] :

$$P_{n+1}(\mathbf{r}) = \int p_{n+1}(\mathbf{r} - \mathbf{r}')P_n(\mathbf{r}')d\mathbf{r}' \quad (\text{B.3})$$

avec une intégrale sur les deux dimensions. En introduisant $\tilde{p}(\mathbf{k}) = \int e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}\tilde{p}(\mathbf{r})d\mathbf{r}$ la transformée de Fourier de $p(\mathbf{r})$, et en l'appliquant à l'équation B.3, on obtient :

$$\tilde{P}_{n+1}(\mathbf{k}) = \tilde{p}_{n+1}(\mathbf{k})\tilde{P}_n(\mathbf{k}). \quad (\text{B.4})$$

Soit $P_0(\mathbf{r})$ la densité de probabilité au départ et $\tilde{P}_0(\mathbf{k})$ sa transformée de Fourier, la marche débutant à l'origine des coordonnées on a :

$$P_0(\mathbf{r}) = \delta(\mathbf{r}) \text{ et } \tilde{P}_0(\mathbf{k}) = 1. \quad (\text{B.5})$$

On obtient par récurrence :

$$\tilde{P}_n(\mathbf{k}) = \tilde{P}_0(\mathbf{k}) \tilde{p}^n(\mathbf{k}). \quad (\text{B.6})$$

En prenant la transformée de Fourier inverse de l'équation B.6 , on obtient la densité de probabilité après n pas :

$$P_n(\mathbf{r}) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \tilde{p}^n(\mathbf{k}) d\mathbf{k} \quad (\text{B.7})$$

On peut maintenant déterminer la densité de probabilité de chaque pas. Pour cela, on note que la distribution est isotrope et que les pas sont de longueurs constantes a ainsi [Hughes 95] :

$$p(\mathbf{r}) = \frac{1}{2\pi r} \delta(r - a) \quad (\text{B.8})$$

où $r = |\mathbf{r}|$ est la norme de \mathbf{r} . Sa transformée de Fourier se calcule en introduisant les coordonnées polaires (ρ, θ) . On prend le vecteur \mathbf{k} comme origine des angles soit $\mathbf{r} \cdot \mathbf{k} = r|\mathbf{k}| \cos \theta$ et $r = \rho$ ce qui donne

$$\tilde{p}(\mathbf{k}) = \int_0^{+\infty} d\rho \int_0^{2\pi} \rho d\theta e^{i\mathbf{r}\cdot\mathbf{k}} p(\mathbf{r}) \quad (\text{B.9a})$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} d\theta \int_0^{+\infty} d\rho e^{i\rho|\mathbf{k}| \cos \theta} \delta(\rho - a) \quad (\text{B.9b})$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} d\theta e^{i|\mathbf{k}|a \cos \theta} \quad (\text{B.9c})$$

$$= J_0(|\mathbf{k}|a). \quad (\text{B.9d})$$

On obtient une expression simple en fonction d'une fonction de Bessel [Gradshteyn 80] du premier type et à l'ordre 0. Le même genre de calcul permet alors d'exprimer la densité de probabilité du marcheur :

$$P_n(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi^2} \int e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} J_0^n(|\mathbf{k}|a) d\mathbf{k} \quad (\text{B.10})$$

qui en utilisant les coordonnées polaires (u, ϕ) dans le plan des vecteurs \mathbf{k} , se réduit à

$$P_n(\mathbf{r}) = \psi(r) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{+\infty} u J_0(ur) J_0^n(ua) du. \quad (\text{B.11})$$

La probabilité associée à la norme de \mathbf{r} est alors donnée par :

$$P'_n(r) = 2\pi r \psi(r) = r \int_0^{+\infty} u J_0(ur) J_0^n(ua) du. \quad (\text{B.12})$$

Cette expression, bien que complexe, permet d'obtenir des informations précises sur la marche aléatoire. Par l'analogie que l'on a fait avec la somme de Gauss, on peut obtenir une expression de ses différentes probabilités. Cependant le résultat ne s'exprime pas de manière simple, or à partir d'un certain nombre de pas, on peut faire l'approximation des grands nombres que nous allons détailler.

B.2 Calcul approché

Jusqu'à présent les calculs sont exacts et sont utiles pour faire des simulations numériques cependant on ne peut pas prévoir de comportement particulier des différentes probabilités. Dans ce but, on va faire un passage à la limite qui correspond à un grand nombre de pas $n \gg 1$ et démontrer le théorème centrale limite dans notre cas. Quand n devient grand^a, l'intégrande de l'équation B.11 prend des valeurs non négligeables seulement pour des petites valeurs de u . On peut donc faire un développement limité de $J_0(z)$:

$$J_0(z) = 1 - \frac{1}{4}z^2 + O(z^4) \quad (\text{B.13})$$

que l'on peut remplacer dans l'équation modifiée B.11

$$P_n(\mathbf{r}) = \psi(r) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{+\infty} u J_0(ur) \exp\{n \log(J_0(ua))\} du \quad (\text{B.14})$$

et en notant que

$$\log(1 + \epsilon) = \epsilon + O(\epsilon^2), \quad (\text{B.15})$$

on obtient

$$P_n(\mathbf{r}) = \psi(r) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{+\infty} u J_0(ur) \exp\left\{-\frac{1}{4}nu^2a^2\right\} du \quad (\text{B.16})$$

En utilisant cette identité [Gradshteyn 80]

$$\int_0^{\infty} du u^{\nu+1} J_{\nu}(\beta u) e^{-\alpha^2 u^2} = \frac{\beta^{\nu}}{(2\alpha^2)^{\nu+1}} \exp\left\{-\frac{\beta^2}{4\alpha^2}\right\} \quad (\nu > -1) \quad (\text{B.17})$$

et en posant $\nu = 0$, $\beta = r$ et $\alpha = \frac{1}{4}na^2$, on obtient l'expression Gaussienne très connue des probabilités dans l'approximation des grands nombres

$$P_n(\mathbf{r}) = \psi(r) \simeq \frac{1}{\pi na^2} \exp\left\{-\frac{r^2}{na^2}\right\} \quad (\text{B.18})$$

a. Des simulations viendront dans la suite estimer la valeur de n nécessaire aux approximations.

et la densité de probabilité associée à la norme de \mathbf{r} est donnée par

$$P'_n(r) = 2\pi r \psi(r) = \frac{2r}{na^2} \exp\left\{-\frac{r^2}{na^2}\right\} \quad (\text{B.19})$$

On peut alors calculer la moyenne et la variance des différents paramètres du problème définies par :

$$\langle \mathbf{R}_n^k \rangle = \int d\mathbf{r} \, r^k P_n(\mathbf{r}) \quad (\text{B.20a})$$

$$\langle R_n^k \rangle = \int dr \, r^k P'_n(r) \quad (\text{B.20b})$$

$$\sigma^2(X) = \langle X^2 \rangle - \langle X \rangle^2 \quad (\text{B.20c})$$

et qui sont présentés dans le tableau B.1.

Variable	X	\mathbf{R}_n	R_n	R_n^2
Valeur moyenne $\langle \rangle$	$\langle X \rangle$	$\mathbf{0}$	$\sqrt{\pi n} \frac{a}{2}$	na^2
Écart type σ^2	$\langle X^2 \rangle - \langle X \rangle^2$	na^2	$na^2 \left(1 - \frac{\pi}{4}\right)$	$n^2 a^4$

Table B.1 – Statistiques de différentes variables de la marche aléatoire. La première ligne indique ces variables, le rayon vecteur, sa norme et sa norme au carré; la deuxième ligne donne l'expression de leur valeur moyenne et la dernière ligne de leur écart type.

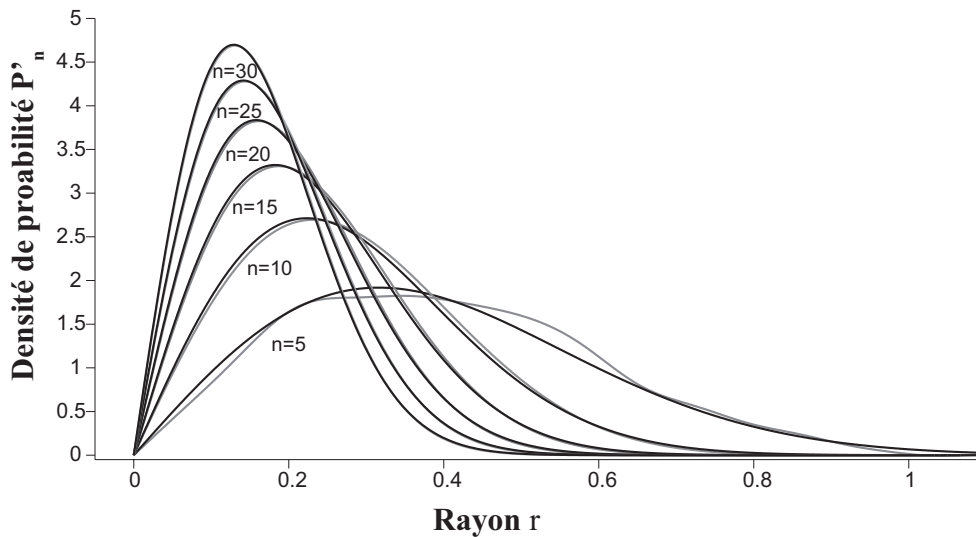


Figure B.1 – Densité de probabilité P'_n en fonction de la norme du rayon vecteur pour différents nombres de pas n . Les courbes noires sont calculées par l'équation approchée B.19 et les grises sont celles calculées numériquement à partir de l'équation B.12

Pour vérifier la validité de nos expressions, la figure B.1 montre la distribution de probabilité P'_n en fonction de la norme du rayon vecteur pour différents nombres de pas n .

Les courbes noires sont calculées par l'équation approchée [B.19](#) et les grises sont celles calculées numériquement à partir de l'équation [B.12](#). On voit que dès $n = 10$ l'approximation des grands nombres est tout à fait valable, on peut donc parfaitement utiliser les résultats précédents à partir de $n = 10$. Pour $n < 5$ les différences sont trop grandes, cependant on peut trouver des expressions littérales simples pour les cas $n = 1, 2$ et 3 [[Hughes 95](#)]. De plus, on voit que la densité de probabilité pour $n > 15$ prend des valeurs non-négligeables pour un rayon $r < 0.7$ qui est le seuil des somme de Gauss, il semble donc que $n=15$ soit suffisant pour éliminer tous les fantômes dans la factorisation.

Bibliographie

- [Alfano 05] R. R. Alfano et al. *The Supercontinuum Laser Source*. Springer, New York, 2005.
- [Amitay 01] Z. Amitay, J. B. Ballard, H. U. Stauffer et S. R. Leone. *Phase-tailoring molecular wave packets to time shift their dynamics*. Chemical Physics, vol. 267, n. 1-3, [141](#), 2001.
- [Arbouet 04] A. Arbouet. *Réponse optique ultrarapide de nano-objets métalliques : effets de taille*. Thèse, Université Bordeaux I, 2004.
- [Assion 98] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle et G. Gerber. *Control of Chemical Reactions by Feedback-Optimized Phase-Shaped Femtosecond Laser Pulses*. Science, vol. 282, n. 5390, [919–922](#), 1998.
- [Baker 06] S. Baker, J. S. Robinson, C. A. Haworth, H. Teng, R. A. Smith, C. C. Chirila, M. Lein, J. W. G. Tisch et J. P. Marangos. *Probing Proton Dynamics in Molecules on an Attosecond Time Scale*. Science, vol. 312, n. 5772, [424–427](#), 2006.
- [Balling 94] P. Balling, D. J. Maas et L. D. Noordam. *Interference in climbing a quantum ladder system with frequency-chirped laser pulses*. Physical Review A, vol. 50, n. 5, [4276](#), 1994.
- [Barros 06] H. G. Barros, J. Ferraz, W. Lozano B, L. H. Acioli et S. S. Vianna. *Coherent control of quantum interference in two-photon absorption*. Physical Review A, vol. 74, n. 5, [055402–4](#), 2006.
- [Bartana 01] A. Bartana, R. Kosloff et D. J. Tannor. *Laser cooling of molecules by dynamically trapped states*. Chemical Physics, vol. 267, n. 1-3, [195–207](#), 2001.
- [Baum 04] P. Baum, S. Lochbrunner et E. Riedle. *Generation of tunable 7-fs ultraviolet pulses : achromatic phase matching and chirp management*. Applied Physics B, vol. 79, n. 8, [1027–1032](#), 2004.
- [Belabas 01] N. Belabas, J. P. Likforman, L. Canioni, B. Bousquet et M. Joffre. *Coherent broadband pulse shaping in the mid infrared*. Optics Letters, vol. 26, n. 10, [743](#), 2001.
- [Bellini 97] M. Bellini, A. Bartoli et T. W. Hänsch. *Two-photon Fourier spectroscopy with femtosecond light pulses*. Optics Letters, vol. 22, n. 8, [540–542](#), 1997.

- [Bergt 99] M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, M. Strehle et G. Gerber. *Controlling the Femtochemistry of Fe(CO)₅*. The Journal of Physical Chemistry A, vol. 103, n. 49, [10381–10387](#), 1999.
- [Berman 65] R. Berman. *Physical properties of diamond*. 1965.
- [Bigourd 08] D. Bigourd, B. Chatel, W. P. Schleich et B. Girard. *Factorization of numbers with the temporal Talbot effect : optical implementation by a sequence of shaped ultrashort pulses*. Physical Review Letters, vol. 100, n. 3, [030202](#), 2008.
- [Blanchet 97] V. Blanchet, C. Nicole, M. A. Bouchene et B. Girard. *Temporal coherent control in two-photon transitions : from optical interferences to quantum interferences*. Physical Review Letters, vol. 78, n. 14, [2716](#), 1997.
- [Bouchene 04] M. A. Bouchene, J. C. Delagnes, M. Jacquy, S. Bonhommeau, P. Zahariev, A. Monmayrant, B. Chatel et B. Girard. *Propagation of ultra-short pulses in resonant atomic systems : Observation and control*. Journal de Physique IV France, vol. 119, [13–18](#), 2004.
- [Boyko 07] O. Boyko, C. Valentin, B. Mercier, Ch Coquelet, V. Pascal, E. Papalazarou, G. Rey et P. Balcou. *Systematic study of high-order harmonic optimal control by temporal pulse shaping of laser pulses*. Physical Review A, vol. 76, n. 6, [063811](#), 2007.
- [Brixner 01] T. Brixner et G. Gerber. *Femtosecond polarization pulse shaping*. Optics Letters, vol. 26, n. 8, [557–559](#), 2001.
- [Broers 92a] B. Broers, L. D. Noordam et H. B. van Linden van den Heuvell. *Diffraction and focusing of spectral energy in multiphoton processes*. Physical Review A, vol. 46, n. 5, [2749](#), 1992.
- [Broers 92b] B. Broers, H. B. van Linden van den Heuvell et L. D. Noordam. *Efficient population transfer in a three-level ladder system by frequency-swept ultrashort laser pulses*. Physical Review Letters, vol. 69, [2062–2065](#), 1992.
- [Broers 92c] B. Broers, H. B. van Linden van den Heuvell et L. D. Noordam. *Large interference effects of small chirp observed in two-photon absorption*. Optics Communications, vol. 91, n. 1-2, [57–61](#), 1992.
- [Bruhat 92] G. Bruhat. *Optique : cours de physique générale*. 1992.
- [Cerullo 03] G. Cerullo et S. De Silvestri. *Ultrafast optical parametric amplifiers*. Review of Scientific Instruments, vol. 74, n. 1, [1–18](#), 2003.
- [Chatel 03] B. Chatel, J. Degert, S. Stock et B. Girard. *Competition between sequential and direct paths in a two-photon transition*. Physical Review A, vol. 68, n. 4, [041402](#), 2003.
- [Chatel 04] J. Chatel B. and Degert et B. Girard. *Role of quadratic and cubic spectral phases in ladder climbing with ultrashort pulses*. Physical Review A, vol. 70, n. 5, [053414](#), 2004.
- [Chatel 08] B. Chatel, D. Bigourd, S. Weber et B. Girard. *Coherent control of spin-orbit precession with shaped laser pulses*. Journal of Physics B, vol. 41, n. 7, [074023](#), 2008.

- [Clauser 96] J. F. Clauser et J. P. Dowling. *Factoring integers with Young's N-slit interferometer*. Physical Review A, vol. 53, n. 6, [4587](#), 1996.
- [Cohen-Tannoudji 96] C. Cohen-Tannoudji, G. Dupont-Roc et G. Grynberg. *Processus d'interaction entre photons et atomes*. 1996.
- [Comstock 04] M. Comstock, V. Lozovoy, I. Pastirk et M. Dantus. *Multiphoton intrapulse interference 6; binary phase shaping*. Optics Express, vol. 12, n. 6, [1061–1066](#), 2004.
- [Coudreau 06] S. Coudreau, D. Kaplan et P. Tournois. *Ultraviolet acousto-optic programmable dispersive filter laser pulse shaping in KDP*. Optics Letters, vol. 31, n. 12, [1899](#), 2006.
- [Dadap 91] J. I. Dadap, G. B. Focht, D. H. Reitze et M. C. Downer. *Two-photon absorption in diamond and its application to ultraviolet femtosecond pulse-width measurement*. Optics Letters, vol. 16, n. 7, [499–501](#), 1991.
- [Dai 07] X. Dai et S. Leone. *Control of wave packets in Li₂ by shaping the pump and probe pulses for a state-selected pump-probe analysis of the ionization continuum*. Journal of Chemical Physics, vol. 127, [014312](#), 2007.
- [Daniel 03] C. Daniel, J. Full, L. Gonzalez, C. Lupulescu, J. Manz, A. Merli, S. Vajda et L. Wöste. *Deciphering the reaction dynamics underlying Ooptymal control laser fields*. Science, vol. 299, n. 5606, [536–539](#), 2003.
- [Davenport 80] H. Davenport. *Multiplicative Number Theory*. Springer, 1980.
- [Dayan 04] B. Dayan, A. Pe'er, A. A. Friesem et Y. Silberberg. *Two Photon Absorption and Coherent Control with Broadband Down-Converted Light*. Physical Review Letters, vol. 93, n. 2, [023005](#), 2004.
- [Degert 02a] J. Degert. *Manipulation cohérente d'atomes et de molécules diatomiques avec des impulsions mises en forme*. [Thèse](#), Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2002.
- [Degert 02b] J. Degert, W. Wohlleben, B. Chatel, M. Motzkus et B. Girard. *Realization of a time-domain Fresnel lens with coherent control*. Physical Review Letters, vol. 89, n. 20, [203003](#), 2002.
- [Divall 05] M. Divall, K. Osvay, G. Kurdi, E. J. Divall, J. Klebniczki, J. Bohus, Á Péter et K. Polgár. *Two-photon-absorption of frequency converter crystals at 248 nm*. Applied Physics B, vol. 81, n. 8, [1123–1126](#), 2005.
- [Dixon 67] R. Dixon. *Acoustic diffraction of light in anisotropic media*. IEEE Journal of Quantum Electronics, vol. 3, n. 2, [85–93](#), 1967.
- [Dmitriev 99] V.G. Dmitriev et G.G. Gurzadyan. *Handbook of non-linear optical crystals*. 1999.
- [Doyle 04] J. Doyle, B. Friedrich, R. V. Krems et F. Masnou-Seeuws. *Editorial : Quo vadis, cold molecules ?* Eur. Phys. J. D, vol. 31, n. 2, [149–164](#), 2004.
- [Dudley 06] J. M. Dudley, G. Genty et S. Coen. *Supercontinuum generation in photonic crystal fiber*. Review of Modern Physics, vol. 78, [1135](#), 2006.

- [Dudovich 01] N. Dudovich, B. Dayan, S. M. Gallagher Faeder et Y. Silberberg. *Transform-limited pulses are not optimal for resonant multiphoton transitions*. Physical Review Letters, vol. 86, n. 1, 47–50, 2001.
- [Dudovich 02a] N. Dudovich, D. Oron et Y. Silberberg. *Coherent transient enhancement of optically induced resonant transitions*. Physical Review Letters, vol. 88, n. 12, 123004, 2002.
- [Dudovich 02b] N. Dudovich, D. Oron et Y. Silberberg. *Single-pulse coherently controlled nonlinear Raman spectroscopy and microscopy*. Nature, vol. 418, 512, 2002.
- [Dudovich 04] N. Dudovich, D. Oron et Y. Silberberg. *Quantum control of the angular momentum distribution in multiphoton absorption processes*. Physical Review Letters, vol. 92, n. 10, 103003, 2004.
- [Dugan 97] M. A. Dugan, J. X. Tull et W. S. Warren. *High-resolution acousto-optic shaping of unamplified and amplified femtosecond laser pulses*. Journal of the Optical Society of America B, vol. 14, n. 9, 2348, 1997.
- [Dulieu 06] O. Dulieu, M. Raoult et E. Tiemann. *Cold molecules : a chemistry kitchen for physicists ?* Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, vol. 39, n. 19, 2006.
- [Felinto 00] D. Felinto, L. H. Acioli et S. S. Vianna. *Temporal coherent control of a sequential transition in Rubidium atoms*. Optics Letters, vol. 25, n. 12, 917–919, 2000.
- [Fioretti 98] A. Fioretti, D. Comparat, A. Crubellier, O. Dulieu, F. Masnou-Seeuws et P. Pillet. *Formation of cold Cs₂ molecules through photoassociation*. Physical Review Letters, vol. 80, n. 20, 4402, 1998.
- [Form 08] N. T. Form, R. Burbidge, J. Ramon et B. J. Whitaker. *Parameterization of an acousto-optic programmable dispersive filter for closed-loop learning experiments*. Journal of Modern Optics, vol. 55, n. 1, 197 – 209, 2008.
- [Françon 66] M. Françon. *Optical interferometry*. Academic Press, 1966.
- [Froehly 73] C. Froehly, A. Lacourt et J. Ch. Viénot. *Time impulse response and time frequency response of optical pupils : Experimental confirmations and applications*. Nouvelle Revue d’Optique, vol. 4, n. 4, 183, 1973.
- [Froehly 83] C. Froehly, B. Colombeau et M. Vampouille. *Shaping and analysis of picosecond light pulses*. Progress in optics, vol. 20, 65–153, 1983.
- [Garraway 98] B. Garraway et K.-A. Suominen. *Adiabatic Passage by Light-Induced Potentials in Molecules*. Physical Review Letters, vol. 80, n. 5, 932, 1998.
- [Gaubatz 90] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann et K. Bergmann. *Population transfer between molecular vibrational levels by stimulated Raman scattering with partially overlapping laser fields. A new concept and experimental results*. The Journal of Chemical Physics, vol. 92, n. 9, 5363–5376, 1990.
- [Gilowski 08] M. Gilowski, T. Wendrich, T. Müller, Ch Jentsch, W. Ertmer, E. M. Rasel et W. P. Schleich. *Gauss sum factorization with cold atoms*. Physical Review Letters, vol. 100, n. 3, 030201, 2008.

- [Goulielmakis 04] E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuska, V. Yakovlev, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher et F. Krausz. *Direct Measurement of Light Waves*. Science, vol. 305, n. 5688, [1267–1269](#), 2004.
- [Gradshteyn 80] I. S. Gradshteyn et I. M. Ryzhik. *Table of integrals, series and product*. Academic press, San Diego, 1980.
- [Haber 09] L. H. Haber, B. Doughty et S. R. Leone. *Continuum phase shifts and partial cross sections for photoionization from excited states of atomic helium measured by high-order harmonic optical pump-probe velocity map imaging*. Physical Review A, vol. 79, n. 3, [031401](#), 2009.
- [Hacker 01a] M. Hacker, T. Feurer, R. Sauerbrey, T. Lucza et G. Szabo. *Programmable femtosecond laser pulses in the ultraviolet*. Journal of the Optical Society of America B, vol. 18, n. 6, [866–871](#), 2001.
- [Hacker 01b] M. Hacker, R. Netz, M. Roth, G. Stobrawa, T. Feurer et R. Sauerbrey. *Frequency doubling of phase-modulated, ultrashort laser pulses*. Applied Physics B, vol. 73, n. 3, [273–277](#), 2001.
- [Hacker 03] M. Hacker, G. Stobrawa, R. Sauerbrey, T. Buckup, M. Motzkus, M. Wildenhain et A. Gehner. *Micromirror SLM for femtosecond pulse shaping in the ultraviolet*. Applied Physics B, vol. 76, n. 6, [711–714](#), 2003.
- [Hertel 06] I. V. Hertel et W. Radloff. *Ultrafast dynamics in isolated molecules and molecular clusters*. Reports on Progress in Physics, vol. 69, 1897, 2006.
- [Hillegas 94] C. W. Hillegas, J. X. Tull, D. Goswami, D. Strickland et W. S. Warren. *Femtosecond laser pulse shaping by use of microsecond radio-frequency pulses*. Optics Letters, vol. 19, n. 10, [737](#), 1994.
- [Hughes 95] Barry D. Hughes. *Random walks and random environments vol1*. 1995.
- [Hutson 06] J. M. Hutson et P. Soldan. *Molecule formation in ultracold atomic gases*. International Reviews in Physical Chemistry, vol. 25, n. 4, [497 – 526](#), 2006.
- [Iaconis 98] C. Iaconis et I. A. Walmsley. *Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses*. Optics Letters, vol. 23, n. 10, [792–794](#), 1998.
- [Jacquey 03] M. Jacquey, S. Bonhommeau et M. A. Bouchene. *Experimental demonstration of phase control of dispersion effects for an ultrashort pulse train propagating in a resonant medium*. Optics Letters, vol. 28, n. 14, [1272–1274](#), 2003.
- [Jochim 03] S. Jochim, M. Bartenstein, A. Altmeyer, G. Hendl, S. Riedl, C. Chin, J. Hecker Denschlag et R. Grimm. *Bose-Einstein condensation of molecules*. Science, vol. 302, n. 5653, [2101–2103](#), 2003.
- [Kaindl 00] R. A. Kaindl, M. Wurm, K. Reimann, P. Hamm, A. M. Weiner et M. Woerner. *Generation, shaping, and characterization of intense femtosecond pulses tunable from 3 to 20 μm* . Journal of the Optical Society of America B, vol. 17, n. 12, [2086–2094](#), 2000.

- [Kane 99] D. J. Kane. *Recent progress toward real-time measurement of ultrashort laser pulses*. IEEE Journal of Quantum Electronics, vol. 35, n. 4, [421](#), 1999. 0018-9197.
- [Kaplan 02] D. Kaplan et P. Tournois. *Theory and performance of the acousto optic programmable dispersive filter used for femtosecond laser pulse shaping*. Journal de Physique IV France, vol. 12, n. 5, [69–75](#), 2002.
- [Katsuki 06] H. Katsuki, H. Chiba, B. Girard, C. Meier et K. Ohmori. *Visualizing picometric quantum ripples of ultrafast wave-packet interference*. Science, vol. 311, [1589](#), 2006.
- [Katsuki 09] H. Katsuki, H. Chiba, C. Meier, B. Girard et K. Ohmori. *Actively tailored spatiotemporal images of quantum interference on the picometer and femtosecond scales*. Physical Review Letters, vol. 102, [103602](#), 2009.
- [Kleinjung 10] T. Kleinjung, K. Aoki, J. Franke, A. K. Lenstra, E. Thomé, J. W. Bos, P. Gaudry, A. Kruppa, P. L. Montgomery, D. A. Osvik, H. Riele, A. Timofeev et P. Zimmermann. *Factorization of a 768-bit RSA modulus*. [Pas encore publié](#), 2010.
- [Kotur 09] M. Kotur, T. Weinacht, B. J. Pearson et S. Matsika. *Closed-loop learning control of isomerization using shaped ultrafast laser pulses in the deep ultraviolet*. The Journal of Chemical Physics, vol. 130, n. 13, [134311–5](#), 2009.
- [Krausz 09] F. Krausz et M. Ivanov. *Attosecond physics*. Reviews of Modern Physics, vol. 81, n. 1, [163](#), 2009.
- [Krebs 10] N. Krebs, R. A. Probst et E. Riedle. *Sub-20 fs pulses shaped directly in the UV by an acousto-optic programmable dispersive filter*. Optics Express, vol. 18, n. 6, [6164–6171](#), 2010.
- [Krems 08] R. V. Krems. *Cold controlled chemistry*. Physical Chemistry Chemical Physics, vol. 10, n. 28, [4079–4092](#), 2008.
- [Kurdi 04] G. Kurdi, K. Osvay, M. Csatari, I. N. Ross et J. Klebniczki. *Optical parametric amplification of femtosecond ultraviolet laser pulses*. Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of, vol. 10, n. 6, [1259–1267](#), 2004.
- [Lang 70] S. Lang. *Algebraic Number Theory*. Addison Wesley, 1970.
- [Laude 03] Vincent Laude. *General solution of the coupled-wave equations of acousto-optics*. Journal of the Optical Society of America A, vol. 20, n. 12, [2307–2314](#), 2003.
- [Le Blanc 93] C. Le Blanc. *Principes et réalisation d'une source laser terawatt femtoseconde basée sur le saphir dopé au titane. Caractérisation des impulsions produites et démonstration du régime d'intensité au niveau de 10^{18} W/cm²*. Thèse, Ecole Polytechnique, 1993.
- [Lepetit 95] L. Lepetit, G. Chériaux et M. Joffre. *Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy*. Journal of the Optical Society of America B, vol. 12, n. 12, [2467–2474](#), 1995.

- [Lim 05] S. Lim, A. G. Caster et S. R. Leone. *Single-pulse phase-control interferometric coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy*. Physical Review A, vol. 72, n. 4, [041803](#), 2005.
- [Linden 99] S. Linden, J. Kuhl et H. Giessen. *Amplitude and phase characterization of weak blue ultrashort pulses by downconversion*. Optics Letters, vol. 24, [569](#), 1999.
- [Lozovoy 03] V. V. Lozovoy, I. Pastirk, K. A. Walowicz et M. Dantus. *Multiphoton intrapulse interference. II. Control of two- and three-photon laser induced fluorescence with shaped pulses*. Journal of Chemical Physics, vol. 118, n. 7, [3187–96](#), 2003.
- [Maas 99] D. J. Maas, M. J. J. Vrakking et L. D. Noordam. *Rotational interference in vibrational ladder climbing in NO by chirped infrared laser pulses*. Physical Review A, vol. 60, n. 2, [1351](#), 1999.
- [Mahesh 07] T. S. Mahesh, Nageswaran Rajendran, Xinhua Peng et Dieter Suter. *Factorizing numbers with the Gauss sum technique : NMR implementations*. Physical Review A, vol. 75, n. 6, [062303](#), 2007.
- [Mairesse 05] Y. Mairesse, O. Gobert, P. Breger, H. Merdji, P. Meynadier, P. Monchicourt, M. Perdrix, P. Salières et B. Carré. *High harmonic XUV spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction*. Physical Review Letters, vol. 94, n. 17, [173903](#), 2005.
- [Martinez 87] O. Martinez. *3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion : Application to fiber compensation in 1.3-1.6 μm region*. Quantum Electronics, IEEE Journal of, vol. 23, n. 1, [59–64](#), 1987.
- [Mauritsson 04] J. Mauritsson, P. Johnsson, R. López-Martens, K. Varjú, W. Kornelis, J. Biegert, U. Keller, M. B. Gaarde, K. J. Schafer et A. L’Huillier. *Measurement and control of the frequency chirp rate of high-order harmonic pulses*. Physical Review A, vol. 70, n. 2, [021801](#), 2004.
- [Mehring 07] M. Mehring, K. Müller, I. S. Averbukh, W. Merkel et W. P. Schleich. *NMR experiment factors numbers with Gauss sums*. Physical Review Letters, vol. 98, n. 12, [120502](#), 2007.
- [Menezes 01] Alfred J. Menezes, Paul C. van Oorschot et Scott A. Vanstone. *Handbook of applied cryptography*. CRC Press, 2001.
- [Merkel 06a] W. Merkel, I. Sh. Averbukh, B. Girard, G. G. Paulus et W. P. Schleich. *Factorization of numbers with physical systems*. Fortschritte der Physik, vol. 54, [856–865](#), 2006.
- [Merkel 06b] W. Merkel, O. Crasser, F. Haug, E. Lutz, H. Mack, M. Freyberger, W. P. Schleich, I. S. Averbukh, M. Bienert, B. Girard, H. Maier et G. G. Paulus. *Chirped pulses, Gauss sums and the factorization of numbers*. International Journal of Modern Physics B, vol. 20, [1893](#), 2006.
- [Merkel 07] W. Merkel, H. Mack, W. P. Schleich, E. Lutz, G. G. Paulus et B. Girard. *Chirping a two-photon transition in a multistate ladder*. Physical Review A, vol. 76, n. 2, [023417](#), 2007.

- [Meshulach 97] D. Meshulach, D. Yelin et Y. Silberberg. *Real-time spatial-spectral interference measurements of ultrashort optical pulses*. Journal of the Optical Society of America B, vol. 14, n. 8, [2095–2098](#), 1997.
- [Meshulach 98] D. Meshulach et Y. Silberberg. *Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse*. Nature, vol. 396, n. 6708, [239–242](#), 1998.
- [Meshulach 99] D. Meshulach et Y. Silberberg. *Coherent quantum control of multiphoton transitions by shaped ultrashort optical pulses*. Physical Review A, vol. 60, n. 2, [1287](#), 1999.
- [Metcalf 99] H.J. Metcalf et P. Van Der Straten. *Laser Cooling and Trapping*. 1999.
- [Metiu 90] H. Metiu et V. Engel. *A theoretical study of I₂ vibrational motion after excitation with an ultrashort pulse*. Journal of Chemical Physics, vol. 93, [5693](#), 1990.
- [Möhring 09] J. Möhring, T. Buckup, C. S. Lehmann et M. Motzkus. *Generation of phase-controlled ultraviolet pulses and characterization by a simple autocorrelator setup*. Journal of the Optical Society of America B, vol. 26, n. 8, [1538–1544](#), 2009.
- [Monmayrant 04] A. Monmayrant et B. Chatel. *A new phase and amplitude high resolution pulse shaper*. Review of Scientific Instruments, vol. 75, [2668](#), 2004.
- [Monmayrant 05a] A. Monmayrant. *Façonnage et caractérisation d'impulsions ultracourtes. Contrôle cohérent de systèmes simples*. Thèse, Université Paul Sabatier, Toulouse III, 2005.
- [Monmayrant 05b] A. Monmayrant, A. Arbouet, B. Girard, B. Chatel, A. Barman, B. J. Whitaker et D. Kaplan. *AOPDF-shaped optical parametric amplifier output in the visible*. Applied Physics B, vol. 81, n. 2, [177–180](#), 2005.
- [Monmayrant 06a] A. Monmayrant, B. Chatel et B. Girard. *Quantum state measurement using coherent transients*. Physical Review Letters, vol. 96, n. 10, [103002](#), 2006.
- [Monmayrant 06b] A. Monmayrant, B. Chatel et B. Girard. *Real time quantum state holography using coherent transients*. Optics Communications, vol. 264, n. 2, [256–263](#), 2006.
- [Monmayrant 10] A. Monmayrant, S. Weber et B. Chatel. *A newcomer's guide to ultrashort pulse shaping and characterization*. Journal of Physics B, vol. 43, n. 10, [103001](#), 2010.
- [Nabekawa 03] Y. Nabekawa et K. Midorikawa. *Broadband sum frequency mixing using noncollinear angularly dispersed geometry for indirect phase control of sub-20-femtosecond UV pulses*. Optics Express, vol. 11, n. 4, [324–338](#), 2003.
- [Nicole 99] C. Nicole, M. A. Bouchene, C. Meier, S. Magnier, E. Schreiber et B. Girard. *Competition of different ionization pathways in K₂ studied by ultrafast pump-probe spectroscopy : A comparison between theory and experiment*. Journal of Chemical Physics, vol. 111, [7857](#), 1999.

- [Nuernberger 07] P. Nuernberger, G. Vogt, R. Selle, S. Fechner, T. Brixner et G. Gerber. *Generation of shaped ultraviolet pulses at the third harmonic of titanium-sapphire femtosecond laser radiation*. Applied Physics B, vol. 88, n. 4, [519–526](#), 2007.
- [Ogilvie 05] J. P. Ogilvie, K. J. Kubarych, A. Alexandrou et M. Joffre. *Fourier transform measurement of two-photon excitation spectra : applications to microscopy and optimal control*. Optics Letters, vol. 30, n. 8, [911–913](#), 2005.
- [Ogilvie 06] J.P. Ogilvie, D. Debarre, X. Solinas, J.L. Martin, E. Beaurepaire et M. Joffre. *Use of coherent control for selective two-photon fluorescence microscopy in live organisms*. Optics Express, vol. 14, [759](#), 2006.
- [Oron 02] D. Oron, N. Dudovich, D. Yelin et Y. Silberberg. *Narrow-band coherent anti-Stokes Raman signals from broad-band pulses*. Physical Review Letters, vol. 88, n. 6, [063004](#), 2002.
- [Panek 06] P. Panek et A. Becker. *Dark pulses for resonant two-photon transitions*. Physical Review A, vol. 74, n. 2, [023408](#), 2006.
- [Papadopoulos 08] D. N. Papadopoulos, I. Martial, M. Hanna, F. Druon et P. Georges. *Active spectral phase control by use of an acousto-optic programmable filter in high-repetition-rate sub-80 fs nonlinear fiber amplifiers*. Opt. Lett., vol. 33, n. 13, [1431–1433](#), 2008.
- [Paye 92] J Paye. *The Chronocyclic Representation of Ultrashort Light Pulses*. I.E.E.E. Journal of Quantum Electronics, vol. 28, n. 10, [2262–2273](#), october 1992.
- [Pearson 07] B. J. Pearson et T. C. Weinacht. *Shaped ultrafast laser pulses in the deep ultraviolet*. Optics Express, vol. 15, n. 7, [4385](#), 2007.
- [Peng 08] X. Peng et D. Suter. *NMR implementation of factoring large numbers with Gauss sums : suppression of ghost factors*. Europhysics Letters, vol. 84, n. 4, [40006](#), 2008.
- [Pfeifer 08] T. Pfeifer, M. J. Abel, P. M. Nagel, A. Jullien, Z. Loh, M. Bell, D. M. Neumark et S. R. Leone. *Time-resolved spectroscopy of attosecond quantum dynamics*. Chemical Physics Letters, vol. 463, n. 1-3, [11–24](#), 2008.
- [Pillai 09] R. S. Pillai, C. Boudoux, G. Labroille, N. Olivier, I. Veilleux, E. Farge, M. Joffre et E. Beaurepaire. *Multiplexed two-photon microscopy of dynamic biological samples with shaped broadband pulses*. Optics Express, vol. 17, n. 15, [12741–12752](#), 2009.
- [Polli 09] D. Polli, D. Brida, G. Lanzani et G. Cerullo. *Observation of high-frequency coherent vibrations with strongly chirped probe pulses*. In CLEO/IQEC, 2009.
- [Prakelt 04] A. Prakelt, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran et T. Baumert. *Phase control of a two-photon transition with shaped femtosecond laser-pulse sequences*. Physical Review A, vol. 70, n. 6, [063407](#), 2004.
- [Raybaut 05] P Raybaut, F Balembois, F Druon et P Georges. *Numerical and experimental study of gain narrowing in ytterbium-based regenerative amplifiers*. IEEE J. Quantum. Electron., vol. 41, n. 3, [415–425](#), MAR 2005.

- [Rivest 78] R. L. Rivest, A. Shamir et L. Adleman. *A method for obtaining digital signatures and public-key cryptosystems*. Communications of the ACM, vol. 21, 120–126, 1978.
- [Rondi 09] A. Rondi, J. Extermann, L. Bonacina, S. Weber et J.-P. Wolf. *Characterization of a MEMS-based pulse-shaping device in the deep ultraviolet*. Applied Physics B, vol. 96, n. 4, [757–761](#), 2009.
- [Rosca-Pruna 01] F. Rosca-Pruna et M. J. J. Vrakking. *Experimental observation of revival structures in picosecond laser-induced alignment of I₂*. Physical Review Letters, vol. 87, n. 15, [153902](#), 2001.
- [Roth 01] T. Roth et R. Laenen. *Absorption of free carriers in diamond determined from the visible to the mid-infrared by femtosecond two-photon absorption spectroscopy*. Optics Communications, vol. 189, n. 4-6, [289–296](#), 2001.
- [Roth 05] M. Roth, M. Mehendale, A. Bartelt et H. Rabitz. *Acousto-optical shaping of ultraviolet femtosecond pulses*. Applied Physics B, vol. 80, n. 4, [441–444](#), 2005.
- [Royer 96] D. Royer et E. Dieulesaint. *Ondes élastiques dans les solides (tome 1)*. Enseignement de la physique, 1996.
- [Royer 99] D. Royer et E. Dieulesaint. *Ondes élastiques dans les solides (tome 2)*. Enseignement de la physique, 1999.
- [Sadgrove 08] M. Sadgrove, S. Kumar et K. Nakagawa. *Enhanced Factoring with a Bose-Einstein condensate*. Physical Review Letters, vol. 101, n. 18, [180502](#), 2008.
- [Salières 99] P. Salières, L. Le Déroff, T. Auguste, P. Monot, P. d’Oliveira, D. Campo, J. F. Hergott, H. Merdji et B. Carré. *Frequency-domain interferometry in the XUV with high-order harmonics*. Physical Review Letters, vol. 83, n. 26, [5483](#), 1999.
- [Schriever 06] C. Schriever, S. Lochbrunner, M. Optiz et E. Riedle. *19 fs shaped ultraviolet pulses*. Optics Letters, vol. 31, n. 4, [543–545](#), 2006.
- [Seres 03] J. Seres, A. Müller, E. Seres, K. O’Keeffe, M. Lenner, R. F. Herzog, D. Kaplan, C. Spielmann et F. Krausz. *Sub-10-fs, terawatt-scale Ti:sapphire laser system*. Optics Letters, vol. 28, n. 19, [1832–1834](#), 2003.
- [Shim 06] S. Shim, D. B. Strasfeld, E. C. Fulmer et M. T. Zanni. *Femtosecond pulse shaping directly in the mid-IR using acousto-optic modulation*. Optics Letters, vol. 31, n. 6, [838–840](#), 2006.
- [Shimizu 05] S. Shimizu, Y. Nabekawa, M. Obara et K. Midorikawa. *Spectral phase transfer for indirect phase control of sub-20-fs deep UV pulses*. Optics Express, vol. 13, n. 17, [6345–6353](#), 2005.
- [Shirakawa 98] A. Shirakawa, I. Sakane et T. Kobayashi. *Pulse-front-matched optical parametric amplification for sub-10-fs pulse generation tunable in the visible and near infrared*. Optics Letters, vol. 23, n. 16, [1292](#), 1998.
- [Shor 94] P. W. Shor. *Algorithms for quantum computation : discrete logarithms and factoring*. In 35th Annual Symposium on Foundations of Computer Science, 124–134, 1994.

- [Sidick 95] E. Sidick, A. Dienes et A. Knoesen. *Ultrashort-pulse second-harmonic generation. II. Non-transform-limited fundamental pulses*. Journal of the Optical Society of America B, vol. 12, n. 9, [1713–1722](#), 1995.
- [Silberberg 09] Y. Silberberg. *Quantum Coherent Control for Nonlinear Spectroscopy and Microscopy*. Annual Review of Physical Chemistry, vol. 60, n. 1, [277](#), 2009.
- [Sofikitis 09] D. Sofikitis, S. Weber, A. Fioretti, R. Horchani, M. Allegrini, B. Chatel, D. Comparat et P. Pillet. *Molecular vibrational cooling by optical pumping with shaped femtosecond pulses*. New Journal of Physics, vol. 11, n. 5, [055037](#), 2009.
- [Strasfeld 07] David B. Strasfeld, Sang-Hee Shim et Martin T. Zanni. *Controlling vibrational excitation with shaped Mid-IR pulses*. Physical Review Letters, vol. 99, n. 3, [038102](#), 2007.
- [Strasser 06] D. Strasser, T. Pfeifer, B. J. Hom, A. M. Müller, J. Plenge et S. R. Leone. *Coherent interaction of femtosecond extreme-uv light with He atoms*. Physical Review A, vol. 73, n. 2, [021805](#), 2006.
- [Suda 01] A. Suda, Y. Oishi, K. Nagasaka, P. Wang et K. Midorikawa. *A spatial light modulator based on fused-silica plates for adaptive feedback control of intense femtosecond laser pulses*. Optics Express, vol. 9, n. 1, [2–6](#), 2001.
- [Szabó 90] G. Szabó et Z. Bor. *Broadband frequency doubler for femtosecond pulses*. Applied Physics B, vol. 50, n. 1, [51–54](#), 1990.
- [Talbot 36] H. F. Talbot. *Facts Relating to Optical Science*. Philos. Mag., vol. 9, 401, 1836.
- [Tanabe 02] T. Tanabe, H. Tanabe, Y. Teramura et F. Kannari. *Spatiotemporal measurements based on spatial spectral interferometry for ultrashort optical pulses shaped by a Fourier pulse shaper*. Journal of the Optical Society of America B, vol. 19, n. 11, [2795–2802](#), 2002.
- [Tannor 86] D. J. Tannor, R. Kosloff et S. A. Rice. *Coherent pulse sequence induced control of selectivity of reactions : Exact quantum mechanical calculations*. The Journal of Chemical Physics, vol. 85, n. 10, [5805–5820](#), 1986.
- [Theis 04] M. Theis, G. Thalhammer, K. Winkler, M. Hellwig, G. Ruff, R. Grimm et J. Hecker Denschlag. *Tuning the Scattering Length with an Optically Induced Feshbach Resonance*. Physical Review Letters, vol. 93, n. 12, [123001](#), 2004.
- [Thiré 10] N. Thiré, R. Cireasa, S. Pratt et V. Blanchet. *Time-resolved photoelectron spectroscopy of the $CH_3I B^1E 6s [2]$ state*. Physical Chemistry Chemical Physics, accepted 2010.
- [Tournois 97a] P. Tournois. *Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems*. Optics Communications, vol. 140, n. 4-6, [245–249](#), 1997.
- [Tournois 97b] P. Tournois. *Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems*. Optics Communications, vol. 140, n. 4-6, [245](#), 1997.

- [Tournois 08] P. Tournois. *Design of acousto-optic programmable filters in mercury halides for mid-infrared laser pulse shaping*. Optics Communications, vol. 281, n. 15-16, [4054–4056](#), 2008.
- [Trebino 00] R. Trebino. *Frequency-resolved optical gating : The measurement of ultrashort laser pulses*. Kluwer Academic, 2000.
- [Tsang 96] T. Y. F. Tsang, M. A. Krumbugel, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff et R. Trebino. *Frequency-resolved optical-gating measurements of ultrashort pulses using surface third-harmonic generation*. Optics Letters, vol. 21, n. 17, [1381–1383](#), 1996.
- [Verluisse 00a] F. Verluisse, V. Laude, Z. Cheng, Ch Spielmann et P. Tournois. *Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter : pulse compression and shaping*. Optics Letters, vol. 25, n. 8, [575–577](#), 2000.
- [Verluisse 00b] F. Verluisse, V. Laude, J. Huignard, P. Tournois et A. Migus. *Arbitrary dispersion control of ultrashort optical pulses with acoustic waves*. Journal of the Optical Society of America B, vol. 17, n. 1, [138–145](#), 2000.
- [Vidal 10] S. Vidal, J. Degert, J. Oberlé et E. Freysz. *Femtosecond optical pulse shaping for tunable terahertz pulse generation*. Journal of the Optical Society of America B, vol. 27, n. 5, [1044–1050](#), 2010.
- [Viteau 08] M. Viteau, A. Chotia, M. Allegrini, N. Bouloufa, O. Dulieu, D. Comparat et P. Pillet. *Optical Pumping and Vibrational Cooling of Molecules*. Science, vol. 321, n. 5886, [232–234](#), 2008.
- [Vogt 05] G. Vogt, G. Krampert, P. Niklaus, P. Nuernberger et G. Gerber. *Optimal control of photoisomerization*. Physical Review Letters, vol. 94, n. 6, [068305](#), 2005.
- [Von Vacano 06] B. Von Vacano, W. Wohlleben et M. Motzkus. *Actively shaped supercontinuum from a photonic crystal fiber for nonlinear coherent microspectroscopy*. Optics Letters, vol. 31, n. 3, [413–415](#), 2006.
- [Štefaňák 07] M. Štefaňák, W. Merkel, W. P. Schleich, D. Haase et H. Maier. *Factorization with Gauss sums : scaling properties of ghost factors*. New Journal of Physics, vol. 9, n. 10, [370](#), 2007.
- [Štefaňák 08] M. Štefaňák, D. Haase, W. Merkel, M. S. Zubairy et W. P. Schleich. *Factorization with exponential sums*. Journal of Physics A, n. 30, [304024](#), 2008.
- [Walmsley 01] I. Walmsley, L. Waxer et C. Dorrer. *The role of dispersion in ultrafast optics*. Review of Scientific Instruments, vol. 72, n. 1, [1–29](#), 2001.
- [Walowicz 02] K. A. Walowicz, I. Pastirk, V. V. Lozovoy et M. Dantus. *Multiphoton intrapulse interference. I. Control of multiphoton processes in condensed phases*. Journal of Physical Chemistry A, vol. 106, n. 41, [9369–73](#), 2002.
- [Wang 04] H. Wang et A. M. Weiner. *A femtosecond waveform transfer technique using type II second harmonic generation*. IEEE Journal of Quantum Electronics, vol. 40, n. 7, [937–945](#), 2004.

- [Warren 93] Warren S. Warren, Herschel Rabitz et Mohammed Dahleh. *Coherent Control of Quantum Dynamics : The Dream Is Alive*. Science, vol. 259, n. 5101, [1581–1589](#), 1993.
- [Weber 08] S. Weber, B. Chatel et B. Girard. *Factoring numbers with interfering random waves*. Europhysics Letters, vol. 83, n. 3, [34008](#), 2008.
- [Weber 09] S. Weber, J. Bonnet, A. Besse, A. Arbouet et B. Chatel. *Shaping and characterization of tunable UV ultrashort pulses*. UVX 2008, [15–19](#), 2009.
- [Weber 10a] S. Weber, M. Barthélemy et B. Chatel. *Direct shaping of tunable UV ultrashort pulses*. Applied Physics B, vol. 98, n. 2, [323–326](#), 2010.
- [Weber 10b] S. Weber, B. Girard et B. Chatel. *Chirping the probe pulse in a coherent transients experiment*. Physical Review A, vol. 81, n. 2, [023415](#), 2010.
- [Wefers 93] M. M. Wefers et K. A. Nelson. *Programmable phase and amplitude femtosecond pulse shaping*. Optics Letters, vol. 18, n. 23, [2032](#), 1993.
- [Weiner 88] A. M. Weiner, J. P. Heritage et E. M. Kirschner. *High-resolution femtosecond pulse shaping*. Journal of the Optical Society of America B, vol. 5, n. 8, [1563](#), 1988.
- [Weiner 90] D. E. Weiner A. M. and Leaird, G. P. Wiederrecht et K. A. Nelson. *Femtosecond pulse sequences used for optical manipulation of molecular motion*. Science, vol. 247, [1317](#), 1990.
- [Weiner 00] A. M. Weiner. *Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators*. Review of Scientific Instruments, vol. 71, n. 5, [1929](#), 2000.
- [Wiley 55] W. C. Wiley et I. H. McLaren. *Time-of-flight mass spectrometer with improved resolution*. Review of Scientific Instruments, vol. 26, n. 12, [1150–1157](#), 1955.
- [Wilhelm 97] T. Wilhelm, J. Piel et E. Riedle. *Sub-20-fs pulses tunable across the visible from a blue-pumped single-pass noncollinear parametric converter*. Optics Letters, vol. 22, n. 19, [1494–1496](#), 1997.
- [Wnuk 07] P. Wnuk et C. Radzewicz. *Coherent control and dark pulses in second harmonic generation*. Optics Communications, vol. 272, n. 2, [496–502](#), 2007.
- [Wohlleben 04] W. Wohlleben, J. Degert, A. Monmayrant, B. Chatel, M. Motzkus et B. Girard. *Coherent transients as a highly sensitive probe for femtosecond pulse shaper*. Applied Physics B, vol. 79, n. 4, [435 – 439](#), 2004.
- [Yamada 05] H Yamada, K Yokoyama, Y Teranishi, A Sugita, T Shirai, M Aoyama, Y Akahane, N Inoue, H Ueda, K Yamakawa, A Yokoyama, M Kawasaki et H Nakamura. *Selective transition to the closely-lying states Cs ($7D_{3/2}$) and Cs ($7D_{5/2}$) by femtosecond laser pulses*. Physical Review A, vol. 72, n. 6, [063404](#), 2005.
- [Yariv 84] A. Yariv et Y. Pochi. *Optical waves in crystal*. Wiley-Interscience, 1984.
- [Zamith 00] S. Zamith, M. A. Bouchene, E. Sokell, C. Nicole, V. Blanchet et B. Girard. *Pump probe experiment in atomic fine structure levels : Observation of the oscillation of an angular wavepacket*. The European Physical Journal D, vol. 12, n. 2, [255–261](#), 2000.

- [Zamith 01a] S. Zamith. *Dynamique femtoseconde dans des atomes et molécules : précession de spin et dynamique de photoélectrons, transitoires cohérents, dynamique des états excités de l'acétylène*. Thèse, Université Paul Sabatier, 2001.
- [Zamith 01b] S. Zamith, J. Degert, S. Stock, B. de Beauvoir, V. Blanchet, M. A. Bouchene et B. Girard. *Observation of coherent transients in ultrashort chirped excitation of an undamped two-level system*. Physical Review Letters, vol. 87, n. 3, [033001](#), 2001.
- [Zamith 04] S. Zamith, T. Martchenko, Y. Ni, S. A. Aseyev, H. G. Muller et M. J. J. Vrakking. *Control of the production of highly charged ions in femtosecond-laser cluster fragmentation*. Physical Review A, vol. 70, n. 1, [011201](#), 2004.
- [Zeek 99] E. Zeek, K. Maginnis, S. Backus, U. Russek, M. Murnane, G. Mourou, H. Kapteyn et G. Vdovin. *Pulse compression by use of deformable mirrors*. Optics Letters, vol. 24, n. 7, [493–495](#), 1999.
- [Zewail 94] A. H. Zewail. *Femtochemistry : Ultrafast Dynamics of the Chemical Bond*, volume I and II. World Scientific, Singapore, 1994.
- [Zhang 08] S Zhang et al. *Theoretical investigation of coherent enhancement for resonant two-photon transitions*. Chinese Physics Letters, vol. 25, n. 6, [2066](#), 2008.
- [Zhang 09] S. Zhang, H. Zhang, T. Jia, Z. Wang et Z. Sun. *Coherent control of two-photon transitions in a two-level system with broadband absorption*. Physical Review A, vol. 80, n. 4, [043402–4](#), 2009.
- [Zheng 00] Z. Zheng et A. M. Weiner. *Spectral phase correlation of coded femtosecond pulses by second-harmonic generation in thick nonlinear crystals*. Optics Letters, vol. 25, n. 13, [984–986](#), 2000.
- [Zémor 00] Gilles Zémor. *Cours de cryptographie*. 2000.

RÉSUMÉ

Cette thèse présente l'étude théorique et expérimentale de la mise en forme et de la caractérisation d'impulsions courtes dans l'ultraviolet ainsi que l'utilisation du façonnage pour le contrôle cohérent de systèmes simples.

Trois grandes directions ont été suivies, dans un premier temps, nous présentons les caractéristiques et le fonctionnement d'un filtre dispersif acousto-optique programmable et son utilisation pour produire des impulsions femtosecondes de profil temporel arbitraire dans le domaine ultraviolet. Les limitations de ce dispositif ainsi que les résultats obtenus sont ensuite présentés et discutés.

Dans un deuxième temps, un autre façonneur dans l'infrarouge est utilisé pour montrer comment le contrôle cohérent de paquet d'ondes atomiques, moléculaires ou optiques permet la factorisation de grands nombres par l'utilisation d'une somme de Gauss. Une étude théorique en est faite ainsi que des expériences où un nombre de 13 chiffres est factorisé. Cette technique est comparée à la factorisation quantique utilisant l'algorithme de Shor.

Enfin, des schémas de contrôle, utilisant ce même façonneur, ont été mis en œuvre avec succès sur l'atome de rubidium. Ces expériences, de type pompe-sonde, reposent sur le contrôle et la mesure de la dynamique d'un atome lors de son interaction avec une impulsion laser courte. La théorie et une expérience de contrôle du régime transitoire, que nous appelons transitoire cohérent, sont présentés. Le rôle de la sonde, dans le processus de mesure, est mis en avant et nous montrons qu'elle n'a pas un rôle limité à la mesure mais participe activement à la dynamique globale du système. Celui-ci est modélisé par une transition à deux photons sur un système à deux, trois... niveaux électroniques. Cette expérience nous amène à considérer l'absorption à deux photons, cas particulier des systèmes précédents. Nous en introduisons alors les bases et les expériences clés de son contrôle. Puis, la discussion nous amène au contrôle de la précession de Spin-Orbite, liée à l'excitation d'un doublet de structure fine de l'atome de rubidium.

Finalement, une application du façonnage à la production de molécules froides vibrationnelles est présentée.

Mots clés : Mise en forme d'impulsions, Ultraviolet, Caractérisation, Impulsions à dérive de fréquence, Transitoires cohérents, Expérience pompe-sonde, Factorisation, Spin-Orbite, Molécules Froides.

In this thesis we study the shaping and characterisation of ultrashort UV pulses. Shaped femtosecond pulses are then used in various coherent control experiments.

Firstly, a shaper based on a acousto-optic interaction is described. Then its capabilities for shaping and tuning in the UV range are analyzed and experimentally tested. Finally we describe different applications using this shaper.

Secondly, we use another shaper in the near-infrared to perform two types of experiments. The first one deals with factorisation of numbers using Gauss sums. This experiment use shaped pulses train to produce a Gauss sum and then to factorise different numbers. The second one deals with coherent control of atomic and molecular systems. We investigate the role of a shaped probe in a pump-probe experiment. Then a overview of the control of two photon transitions is given and the interferences between the different quantum paths are illustrated by the control of the spin-orbit precession. Finally, we use shaped pulses for the incoherent control of the vibrationnal cooling of molecules.

Key words : Shaping, Ultraviolet, Characterisation, Chirped pulses, Coherent Transients, Pump-probe, Factorisation, Spin-orbit, Cold molecules.