Lasers femtosecondes : principes et applications en physique, chimie et biologie (5/6)

Façonnage d'impulsions et contrôle cohérent

- 1. Façonnage d'impulsions
- 2. Contrôle cohérent
- 3. Contrôle optimal
- 4. Contrôle cohérent vibrationnel

Façonnage d'impulsions



- Transposition du domaine fréquentiel au domaine spatial + modulateur spatial de lumière
- Méthodes spécifiques dans le domaine des fréquences
 - Façonnage indirect par mélange non-linéaire
 - Filtre acousto-optique programmable (Dazzler)

Utilisation d'une ligne à dispersion nulle combinée à des modulateurs spatiaux de lumière



 $E_{out}(\omega) = E_{in}(\omega)A(\omega)exp(i\varphi(\omega))$

A.M. Weiner, Rev. Sci. Instr. **71**, 1929 (2000) A. Monmayrant, B. Chatel, Rev. Sci. Instr. **75**, 2668 (2004)

→ Filtre linéaire programmable

Utilisation d'une ligne à dispersion nulle combinée à des modulateurs spatiaux de lumière



A. Monmayrant, B. Chatel, Rev. Sci. Instr. 75, 2668 (2004)

Méthodes spécifiques du domaine fréquentiel

Exemple : Interaction bilinéaire entre un champ de contrôle et l'impulsion incidente

$$\underbrace{f(t)}_{E_{in}(t)} \underbrace{E_{out}(t)}_{E_{out}(t)}$$

$$E_{out}(t) = \iint \Xi(\omega_1, \omega_2) f(\omega_1) E_{in}(\omega_2) \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi}$$

$$E_{out}(\omega) = \iint \Xi(\omega_1, \omega_2) f(\omega_1) E_{in}(\omega_2) \delta(\omega - \omega_1 - \omega_2) \frac{d\omega_1}{2\pi} \frac{d\omega_2}{2\pi}$$

Façonnage indirect par mélange non-linéaire

$$E_{IR}(\omega) = \int \Xi(\omega_S, \omega_I) E_S(\omega_S) E_I^*(\omega_I) d\omega_S d\omega_I \delta(\omega_S - \omega_I - \omega_{IR}) \approx E_S(\omega + \omega_0) E_I^*(\omega_0)$$



T. Witte, K. L. Kompa et M. Motzkus, Appl. Phys. B 76, 467 (2003)

Filtre acousto-optique programmable (dazzler)

Interaction longitudinale dans un cristal acousto-optique entre une onde acoustique et une onde optique.



F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, Ch. Spielmann et P. Tournois, Opt. Lett. 25, 575 (2000). D. Kaplan et P. Tournois, J. Phys. IV France 12, Pr5-69 (2002).

Dazzler : interprétation temporelle



Façonnage spatio-temporel



T. Hornung, J. C. Vaughan, T. Feurer et K. A. Nelson, Opt. Lett. 29, 2052 (2004)

Correction adaptative de la phase spectrale



Correction adaptative de la phase spectrale



F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, Ch. Spielmann et P. Tournois, Opt. Lett. 25, 575 (2000)

Correction adaptative de la phase spectrale



- C. Le Blanc, B. Wattellier, J.-P. Zou, A. Migus, C. Dorrer, I.A. Wamsley, F. Verluise, D. Kaplan et P.Tournois, *CLEO 2001*
- D. Reitze, F. Weihe, S. Kazamias, G. Mullot, D. Douillet, F. Augé, J.-P. Chambaret, D. Hulin et P.Balcou, Ultrafast 2002

SPIDER temporel Mise en œuvre à l'aide d'un dispositif de façonnage



A. Monmayrant, M. Joffre, T. Oksenhendler, R. Herzog, D. Kaplan, et P. Tournois, Opt. Lett. 28, 278 (2003)

2. Contrôle cohérent

Régimes incohérent et cohérent



Oscillations de Rabi



>Impulsion π (demi-oscillation de Rabi) \rightarrow n_e = 1.

Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode

A. Zrenner*†, E. Beham*, S. Stufler*†, F. Findeis*, M. Bichler* & G. Abstreiter*

* Walter Schottky Institut, Technische Universität München, Am Coulombwall, D-85748 Garching, Germany



Processus à un photon



Resultat valable dès lors que le signal est stationnaire et bilinéaire par rapport au champ électrique.

Le signal final est indépendant de la phase spectrale de l'impulsion !

Paul Brumer, Moshe ShapiroOne photon mode selective control of reactions by rapid or shaped laser pulses : an emperor without clothes ?Chem. Phys. 139, 221-228 (1989)

Transitoires cohérents

Excitation d'atomes de rubidium par une impulsion à dérive de fréquence.



S. Zamith, J. Degert, S. Stock, B. de Beauvoir, V. Blanchet, M.A. Bouchene, B. Girard *Observation of coherent transients in ultrashort chirped excitation of an undamped two-level system* Phys. Rev. Lett. **87**, 033001 (2001)

Transitoires cohérents : application à la reconstruction holographique de l'état quantique



A. Monmayrant, B. Chatel, B. Girard *Quantum state measurement using coherent transients* Phys. Rev. Lett. **96**, 103002 (2006)

Processus à deux photons



Signal
$$\propto \int g^{(2)}(\omega) \left| E^{(2)}(\omega) \right|^2 \frac{d\omega}{2\pi}$$

où
$$E^{(2)}(t) \equiv E(t)^2 = \int E^{(2)}(\omega) \exp(-i\omega t) \frac{d\omega}{2\pi}$$

(champ doublé en fréquence)

$$E^{(2)}(\omega) = \int E\left(\frac{\omega}{2} + \Omega\right) E\left(\frac{\omega}{2} - \Omega\right) \frac{d\Omega}{2\pi}$$

Contrôle cohérent de l'absorption à deux photons



D. Meshulach et Y. Silberberg, Nature **396**, 239 (1998)

Contrôle cohérent de l'absorption à deux photons



D. Meshulach et Y. Silberberg, Nature 396, 239 (1998)

Contrôle cohérent

Manipuler directement l'état quantique d'un système sous l'action d'une impulsion brève de forme temporelle appropriée

Conditions :



- Etre plus rapide que les processus de déphasage
- Disposer d'une énergie suffisante



Façonner de façon arbitraire le profil temporel d'une impulsion

3. Contrôle optimal

Contrôle optimal



Boucle d'apprentissage avec algorithme génétique



D. Zeidler, S. Frey, K.-L. Kompa et M. Motzkus, Phys. Rev. A 64, 023420 (2001)

Contrôle optimal de l'excitation à deux photons

Many parameter control



T. Brixner, N. H. Damrauer, P. Niklaus & G. Gerber, Nature 414, 57 (2001)

Contrôle optimal de la génération d'harmoniques



R. Bartels et al., Chem. Phys. 267, 277 (2001)

4. Contrôle cohérent vibrationnel

Contrôle cohérent vibrationnel



S.M.Arrivo, T.P.Dougherty, W. Tandy Grubbs, E.J. Heilweil, Chem. Phys. Lett. 235, 247 (1995) D.J.Maas, D.I.Duncan, R.B.Vrijen, W.J.vanderZande, L.D.Noordam, Chem. Phys. Lett. 290, 75 (1998) T. Witte, T. Hornung, L. Windhorn, D. Proch, R. de Vivie-Riedle, M. Motzkus, and K. L. Kompa, J. Chem. Phys. 118, 2021 (2003)

T L. Windhorn, J. S. Yeston, T. Witte, W.Fuß, M. Motzkus, D. Proch, K-L Kompa, J. Chem. Phys. 119, 641 (2003)

C. Ventalon, J.M. Fraser, M.H. Vos, A. Alexandrou, J.L. Martin, M. Joffre, Proc. Natl. Acad. Sci. USA 101, 13216 (2004)

Atome habillé





Passage adiabatique



Passage adiabatique à l'aide d'une impulsion à dérive de fréquence



Population dans l'état excité

Passage adiabatique à l'aide d'une impulsion à dérive de fréquence



Population dans l'état excité

 \succ Passage adiabatique plus robuste qu'une impulsion π



Passage adiabatique dans un système à trois niveaux



Fréquence ω_p

Passage adiabatique dans un système à trois niveaux



B. Chatel, J. Degert, S. Stock, B. Girard *Competition between sequential and direct paths in a two-photon transition* Phys. Rev. A **68**, 041402 (2003)

Passage adiabatique dans un système à six niveaux



Passage adiabatique dans un système à six niveaux



C. Ventalon, tel.ccsd.cnrs.fr/tel-00008323

Vibrational ladder climbing in NO by (sub) picosecond frequency-chirped infrared laser pulses

D.J. Maas, D.I. Duncan, R.B. Vrijen, W.J. van der Zande, L.D. Noordam

FOM Institute for Atomic and Molecular Physics, Kruislaan 407, 1098 SJ Amsterdam, The Netherlands

IR Pulse Duration (ps) 4.5 3.0 1.5 0.37 1.5 3.0 4.5 1.0 v'' = 3 Population (arb. units) •• υ" = 3 0.5 •••••••••<u>•••</u>•<u>••</u>• 0.0 $v^{"} = 1$ Population 1.0 (arb. units) υ'' = 1 0.5 0.0 0.0 -2.0x10⁻²⁵ 2.0x10⁻²⁵ Chirp α (s²)

Received 18 February 1998; in final form 7 April 1998

Laser à électrons libres (FELIX). 300 nJ Chem. Phys. Lett. **290**, 75 (1998)

Chem. Phys. Lett. **357**, 85 (2002) Ultrafast Phenomena XIII (2002)

Molecular dissociation by mid-IR femtosecond pulses

L. Windhorn, T. Witte, J.S. Yeston, D. Proch, M. Motzkus, K.L. Kompa, W. Fuß *

Max-Planck-Institut für Quantenoptik, D-85741 Garching, Germany



Contrôle cohérent dans les hémoprotéines



Ascension vibrationnelle dans HbCO



✓ Mise en évidence de l'effet de la dérive de fréquence ✓ Ascension jusqu'au niveau v = 6

C. Ventalon, J.M. Fraser, M.H. Vos, A. Alexandrou, J.L. Martin, M. Joffre, PNAS 101, 13216 (2004)



✓ Inversion de population résultant de la nature cohérente de l'excitation

C. Ventalon, J.M. Fraser, M.H. Vos, A. Alexandrou, J.L. Martin, M. Joffre, PNAS 101, 13216 (2004)