Génération d'états comprimés par amplification paramétrique

Sommaire

7.1	Sour	ce laser femtoseconde 12	
	7.1.1	Caractéristiques du laser femtoseconde <i>Tiger-CD</i>	
	7.1.2	Verrouillage des modes en phase : SESAM	
	7.1.3	Extraction des impulsions : Cavity dumper	
	7.1.4	Caractérisation des impulsions	
7.2	Opti	que non-linéaire impulsionnelle	
	7.2.1	Choix des cristaux non-linéaires	
	7.2.2	Génération de second harmonique	
	7.2.3	Amplification paramétrique	
7.3	Génération de vide comprimé impulsionnel		
	7.3.1	Mesures homodynes individuelles	
	7.3.2	Tomographie quantique du vide comprimé	
7 1	Con	alusion 1	

Dans le domaine très actif du traitement de l'information quantique avec des variables continues [3], la génération et la détection d'états spécifiquement quantiques est un sujet d'un intérêt considérable. Les états comprimés ou intriqués peuvent être directement utilisés comme une ressource quantique pour des protocoles de cryptographie (voir les références citées dans [70]). Ils servent ainsi à améliorer la robustesse des protocoles par rapport à l'utilisation d'états cohérents, ou à atteindre des portées de transfert plus longues (distillation de l'intrication et répéteurs quantiques [160]). Par ailleurs, la combinaison de deux vides comprimés sur une lame semi-réfléchissante génère un état bi-mode maximalement intriqué, nécessaire pour effectuer certaines tâches de l'information quantique comme la téléportation quantique [146] ou le codage dense [162]. Enfin, la compression des fluctuations quantiques apparaît comme une ressource essentielle pour effectuer des opérations de calcul quantique avec des variables continues [161].

Depuis la première expérience de génération d'états comprimés par Slusher et ses collaborateurs en 1985 [105], de nombreux phénomènes physiques ont été exploités pour réduire certaines fluctuations quantiques sous le niveau du bruit de photon : mélange à quatre ondes, amplification et oscillation paramétrique, génération de second harmonique, effet Kerr, stabilisation de courant des diodes laser... (Voir les références [16, 15, 14] pour une vue d'ensemble des expériences de génération d'états comprimés). Parmi ces différentes possibilités, l'amplification paramétrique d'impulsions ultrabrèves lors d'un simple passage dans un cristal non-linéaire apparaît comme un dispositif simple et efficace, grâce à l'association de cristaux de coefficients non-linéaires élevés avec les fortes puissances crêtes et les possibilités de mise en forme des impulsions ultrabrèves [106, 107, 108, 109, 110, 26]. Avec cette technique, la forte compression obtenue est de 5.8 dB sous le bruit quantique standard en utilisant un oscillateur local correctement adapté [108].

Comme nous l'avons vu à la section 2.4.3, un amplificateur paramétrique dégénéré monomode permet une amplification sélective en quadratures sans bruit ajouté. Les quadratures de l'état en sortie de l'amplificateur s'expriment en fonction des quadratures d'entrée selon [13] :

$$X_{out} = e^{+r} X_{in} \qquad \qquad P_{out} = e^{-r} P_{in} \qquad (7.1)$$

où r est un facteur de gain. Ce paramètre est une fonction linéaire de l'amplitude crête de l'onde pompe, du coefficient de non-linéarité du second ordre $\chi^{(2)}$ et de la longueur d'interaction nonlinéaire. Si l'état en entrée de l'amplificateur (X_{in}, P_{in}) est un état cohérent ou un état vide, les variances des quadratures en sortie valent alors :

$$V_{X,out} = e^{+2r} N_0 V_{P,out} = e^{-2r} N_0 (7.2)$$

Ces équations sont la signature d'un état comprimé, de fluctuations réduites en quadrature P.

Nous avons utilisé expérimentalement le phénomène d'amplification paramétrique dégénérée pour produire des états comprimés [111] : des impulsions de 150 fs sont amplifiées paramétriquement lors d'un simple passage au travers d'un cristal mince (100 μ m) de niobate de potassium (KNbO₃) avec une déamplification significative de l'ordre de -3 dB. Les quadratures des états comprimés sont ensuite échantillonnées par notre détection homodyne résolue en temps, démontrant une réduction des fluctuations mesurée à -1.87 dB sous le bruit quantique standard.

A notre connaissance, notre expérience est la première à utiliser des cristaux de KNbO₃ de très faibles épaisseurs (100 μ m) pour réaliser des conversions non-linéaires du second ordre d'impulsions ultrabrèves : génération de second harmonique et amplification paramétrique. Ces cristaux très minces permettent une large plage d'accord de phase et évitent les conditions de forte dispersion de vitesse de groupe, qui limitaient l'utilisation de cristaux épais de KNbO₃ [97, 98]. Même pour les très courtes longueurs d'interaction utilisées ici, le niobate de potassium offre un gain paramétrique important, grâce à la forte non-linéarité du cristal (environ 12 pm/V) et à un accord de phase non-critique.

Un deuxième aspect essentiel de notre expérience est que tout le traitement est effectué dans le domaine temporel, et non dans le domaine fréquentiel, comme c'est généralement le cas même pour des expériences de génération d'états comprimés impulsionnels [106]. Pour chaque impulsion incidente, notre détection homodyne résolue en temps échantillonne la composante de quadrature en phase avec l'oscillateur local. Nos mesures permettent donc d'accéder directement à la distribution statistique des quadratures étudiées. Ceci permet alors une analyse claire et simple des transferts d'information impliqués dans des protocoles de communication quantique [73, 70]. Des systèmes de détection similaires avaient déjà été réalisés avec des impulsions picosecondes [26, 35], mais notre dispositif est le premier opérant dans le domaine femtoseconde.

Ce chapitre détaille les différents aspects expérimentaux de notre dispositif de génération impulsionnelle d'états comprimés, présenté à la figure 7.1. Nous décrivons ainsi successivement la source d'impulsions femtosecondes, les effets non-linéaires dans le cadre de l'optique classique (génération de second harmonique et amplification paramétrique dégénérée), puis la mesure homodyne d'un état vide comprimé.



Figure 7.1: Dispositif expérimental complet pour la génération d'états comprimés. Les focales des optiques sont indiquées en millimètres.

7.1 Source laser femtoseconde

Pour la génération impulsionnelle d'états comprimés ou d'états intriqués du champ lumineux par amplification paramétrique, la source laser initiale doit être choisie avec précautions et valider différents critères :

- De fortes puissances crêtes afin d'obtenir des effets non-linéaires significatifs. Ce critère se traduit par le besoin d'impulsions de durées ultrabrèves et d'énergies par impulsion importantes (> 10 nJ/impulsion).
- Une cadence de répétition suffisamment élevée (> 100 kHz) pour acquérir rapidement des données en évitant les dérives expérimentales et atteindre de hauts débits de transmission. Par ailleurs, la cadence de répétition des impulsions ne doit pas dépasser les capacités de résolution temporelle de notre système de détection homodyne (de l'ordre du MHz).
- Une bonne qualité de mode spatial pour obtenir une adaptation de modes correcte entre le faisceau signal et l'oscillateur local de la détection.
- Des enveloppes temporelles et spectrales en bonne approximation limitées par Fourier, de manière à pouvoir considérer simplement les impulsions comme monomodes du point de vue de l'optique quantique.

De la sorte, nos critères rejoignent certaines expériences de spectroscopie ultrarapide, comme les expériences pompe-sonde ou d'écho de photon, dans le besoin d'une source d'impulsions de fortes énergies et de cadence intermédiaire (de l'ordre du MHz). Nos expériences ne peuvent utiliser ni les oscillateurs femtosecondes standard (de cadence ~ 100 MHz trop élevée et d'énergie < 10 nJ/impulsion trop faible), ni les amplificateurs régénératifs commerciaux (de cadence \sim 10 kHz trop lente).

Le quatrième point (qualité spectrale et temporelle des modes) fixe de plus une borne inférieure à la durée des impulsions que nous pouvons envisager utiliser : pour les impulsions de durée inférieure à 100 fs, il n'est pas possible en première approximation de négliger l'étalement temporel et le glissement de fréquence (*chirp*) qui apparaissent lors de la traversée d'un milieu dispersif, même pour des épaisseurs de quelques millimètres comme le montre la figure 7.2. La durée de 150 fs apparaît alors comme un compromis acceptable pour une largeur temporelle suffisamment faible permettant d'obtenir une puissance crête intense tout en demeurant relativement robuste à la dispersion lors de la traversée d'un milieu matériel.

La source finalement retenue est un laser commercial *Tiger-CD* de la société *Time-Bandwidth Products*, dont nous détaillons les principales caractéristiques dans cette section.



Figure 7.2: Propagations comparées à travers un milieu dispersif (verre BK7) d'impulsions gaussiennes de largeurs 75 et 150 fs (FWHM) à 850 nm. (a) Etalement de la largeur temporelle de l'impulsion en fonction de l'épaisseur du milieu traversé. (b) Fréquence instantanée en fonction du temps pour une traversée de 30 mm de BK7. La dépendance linéaire de la fréquence correspond au chirp (glissement de fréquence) de l'impulsion. Les calculs correspondants proviennent des références [84, 85].

7.1.1 Caractéristiques du laser femtoseconde Tiger-CD

On énonce généralement trois conditions essentielles qui doivent être vérifiées par une source laser délivrant des impulsions ultrabrèves [84]. La première est de disposer d'un milieu amplificateur de grande largeur spectrale, de manière à ce que le spectre des impulsions puisse être étendu pour produire une allure temporelle (transformée de Fourier du spectre) de durée ultrabrève. La deuxième condition nécessaire est de compenser la dispersion de vitesse de groupe introduite par les différents éléments optiques de la cavité. Enfin, la dernière condition est de synchroniser les différents modes en phase pour garantir une somme cohérente des modes conduisant à un fonctionnement impulsionnel.

Le laser femtoseconde *Tiger-CD* que nous utilisons vérifie bien entendu ces trois conditions pour émettre des impulsions de durée totale à mi-hauteur 150 fs (FWHM) centrées à 846 nm, quasiment limitées par Fourier, avec une énergie jusqu'à 75 nJ et à la cadence de 780 kHz.

Données techniques pour le laser Tiger-CD / Time-Bandwitdh Products				
	Typique : moyenne 40mW, énergie 50nJ/impulsion à			
Puissance	780kHz, puissance crête 300kW; Max : moyenne 60mW,			
	énergie 75nJ/impulsion à 780kHz, puissance crête 450kW			
Tomps Fréquence	Durée $\Delta t_{FWHM} = 150$ fs, largeur spectrale $\Delta \lambda_{FWHM} =$			
Temps-frequence	5.5nm à 846nm, Δt_{FWHM} . $\Delta \nu_{FWHM} = 0.35$			
	Melles Griot 58 GLS 309. Puissance 3.1W à 532nm,			
T	$M^2 \approx 4$, polarisation linéaire verticale 1:100, diamètre			
Laser pompe	0.25mm, divergence totale 12mrad, stabilité pointé			
	40μ rad, bruit rms 3%			
Modo Looking	Technologie SESAM (absorbant saturable semiconducteur			
Mode-Locking	en cavité)			
Corriter Dermonon	Cellule de Bragg Neos N13389, électronique associée Neos			
Cavity Dumper	N64389-SYN, fréquence 371MHz, facteur de division 100			
	Fréquence intra-cavité 78.2MHz, divergence totale			
Divers	1.6mrad, bruit rms en amplitude $< 3\%$, polarisation ver-			
	ticale "s" utilisée pour le montage			



Figure 7.3: Cavité du laser femtoseconde Tiger-CD.

Pour satisfaire la première condition de milieu amplificateur à large bande spectrale, le laser *Tiger-CD* utilise un cristal de saphir dopé au titane Ti:Al₂O₃ dont la bande de gain s'étend de 0.7 à 1 μ m, permettant d'atteindre des impulsions de durée de l'ordre de 10 fs. Ce matériau se distingue de plus par une grande densité de stockage d'énergie et d'excellentes propriétés thermiques qui en font le matériau le plus généralement utilisé pour concevoir des oscillateurs femtosecondes. La compensation de la dispersion de vitesse de groupe (seconde condition) est effectuée de façon standard par un ensemble de prismes [84] dont le matériau et la distance sont optimisés pour retarder les grandes longueurs d'onde qui se propagent le plus rapidement dans le reste de la cavité. Enfin, pour verrouiller les modes en une phase commune, notre système utilise les propriétés d'un absorbant saturable à semiconducteur.

Si la vérification des trois conditions ci-dessus est nécessaire pour générer des impulsions ultrabrèves, elle n'est cependant pas suffisante pour satisfaire notre cahier des charges d'impulsions intenses à une cadence intermédiaire de l'ordre du MHz. L'ensemble {cristal titane:saphir, prismes, SESAM} constitue un oscillateur femtoseconde de base, délivrant des impulsions d'énergie de l'ordre de quelques nanojoules par impulsion à la cadence d'aller-retour de l'impulsion au sein de la cavité, soit 78 MHz. Pour augmenter l'énergie des impulsions émises tout en diminuant la cadence d'émission, le laser utilise une cellule de Bragg en tant que déflecteur optique (*cavity dumper*). Lorsqu'aucun signal n'est envoyé sur la cellule, le faisceau intra-cavité n'est pas dévié et aucune impulsion (en dehors des pertes) ne sort de la cavité. L'impulsion peut alors être amplifiée au cours d'un nombre fixé d'allers-retours (de l'ordre de 100) jusqu'à ce qu'un signal externe commande la déflection du faisceau et la sortie d'une impulsion. L'énergie par impulsion extraite peut cette fois s'élever jusqu'à 75 nJ à la cadence de 780 kHz. Cette technique de "cavity dumper" sera détaillée dans la section 7.1.3, après une discussion du blocage des modes en phase présentée à la section suivante.

7.1.2 Verrouillage des modes en phase : SESAM

Pour obtenir des impulsions de 150 fs limitées par Fourier, la largeur spectrale doit être de l'ordre de 5.5 nm à 850 nm, soit $\Delta \nu = 2.3$ THz. L'intervalle spectral libre entre les modes pour notre cavité étant de 78 MHz, notre génération d'impulsions ultrabrèves requiert de synchroniser en phase environ $2.3 \, 10^{12} / 78 \, 10^6 \approx 30\,000$ modes. Ce verrouillage en phase est obtenu en introduisant un absorbant saturable dans la cavité dont les oscillations naturelles sont continuellement amplifiées pour aboutir à la génération d'un train d'impulsions lumineuses stables après un certain temps de construction.

Ce phénomène de verrouillage des modes est plus simple à expliquer dans le domaine temporel [84]. Rappelons que l'absorbant saturable est un élément dont les pertes diminuent lorsque l'intensité incidente augmente. Lorsque le faisceau de pompe est envoyé sur le milieu amplificateur, différents modes de la cavité commencent à osciller avec des phases respectives aléatoires, ce qui donne naissance à des pics d'intensité. Alors que la puissance intra-cavité augmente, le pic de puissance le plus intense commence à saturer le milieu absorbant. Ce pic subit alors moins de pertes que les autres maxima locaux, ce qui le favorise dans la compétition pour le gain au sein du milieu amplificateur. Si les conditions sont favorables, les autres pics sont éliminés et une seule impulsion se propage à travers la cavité.

L'association de l'absorbant saturable et du milieu amplificateur permet ensuite de stabiliser la structure temporelle et spectrale de l'impulsion : lorsque l'impulsion arrive sur l'absorbant saturable, son front avant – d'intensité faible – subit de fortes pertes, mais pas son maximum d'intensité qui sature l'absorbant. Le front arrière bénéficie alors de la "transparence" induite par le maximum lors du temps caractéristique de relaxation de l'absorbant saturable (voir la figure 7.4). L'impulsion de durée réduite arrive ensuite sur le milieu amplificateur. Le front avant de l'impulsion est fortement amplifié, mais pas le front arrière qui est affecté par la saturation du gain induite par l'amplification du font avant, ce qui a pour effet de diminuer davantage la durée de l'impulsion. L'impulsion atteint sa structure finale stable lorsqu'elle revient identique à ellemême après un aller-retour dans la cavité. Si la dispersion de vitesse de groupe est correctement compensée, la durée de l'impulsion est typiquement limitée par la largeur spectrale de l'absorbant saturable qui est l'élément le plus critique intra-cavité.

Les absorbants saturables les plus utilisés dans le passé étaient les colorants organiques. Bien qu'ils puissent présenter certains avantages pour des applications de laboratoire, ces éléments souffrent de courtes durées de dégradation et d'une manipulation délicate. Pour des dispositifs tout-solide, il est maintenant possible de réaliser des semiconducteurs de large bande d'absorption et de paramètres contrôlables (temps de relaxation, intensité de saturation...). Ces semiconducteurs peuvent être intégrés dans une structure de miroirs en configuration de Fabry-



Figure 7.4: Illustration de la propagation d'une impulsion brève dans un ensemble {absorbant saturable + milieu amplificateur }.

Perot à anti-résonance, de sorte à obtenir un élément dont la réflectivité augmente lorsque la puissance incidente augmente [89]. Ce système est appelé *SEmiconductor Saturable Absorber Mirrors* (SESAM), ou *Antiresonant Fabry-Perot Saturable Absorber* (A-FPSA). L'anti-résonance de la structure Fabry-Perot permet de réaliser un élément de faibles pertes, de forte intensité de saturation et niveau d'endommagement faible.

Cette technique de verrouillage de modes, appelée soliton-like mode-locking, ne nécessite pas de processus supplémentaire au démarrage et est très différente du blocage de modes par lentille de Kerr (*Kerr-lens mode-locking*) où le fonctionnement impulsionnel est privilégié par l'association d'un filtre spatial et d'une focalisation induite par effet Kerr pour les fortes intensités [84]. On peut toutefois remarquer que l'effet Kerr intervient tout de même dans la cavité, même s'il ne constitue pas le processus majeur de blocage de modes. La référence [89] présente une vue d'ensemble sur les différentes techniques passives de synchronisation des modes en phase. Le traitement théorique complet de la génération d'impulsions ultrabrèves avec un absorbant saturable est effectué dans [90].

7.1.3 Extraction des impulsions : Cavity dumper

Pour extraire l'énergie à une cadence définie, un déflecteur optique (*cavity dumper*) est placé à l'intérieur de la cavité. La déflection peut être réalisée soit par un élément acousto-optique (cellule de Bragg), soit par un modulateur électro-optique (cellule de Pockels). Si ces deux méthodes s'appliquent en principe à un oscillateur femtoseconde, la méthode acousto-optique est en général préférée, du fait des courtes longueurs et de la faible dispersion des cellules de Bragg utilisées. La première réalisation d'un laser avec cavity dumper a été présentée par Ramaswamy *et al* en 1993 [87] pour produire des impulsions de 50 fs et d'énergie 100 nJ à diverses cadences (jusqu'à 950kHz). Cette équipe a ainsi démontré la possibilité d'un fonctionnement femtoseconde stable, malgré les fortes perturbations de la cavité introduites par le processus de déflection. Avec un verrouillage de modes par effet Kerr, une durée d'impulsion aussi courte que 10 fs a pu être obtenue [88].

Le cavity dumper utilisé au sein du laser *Tiger-CD* repose sur une cellule de Bragg positionnée au centre de courbure du miroir de fin de cavité dans une structure dite à double passage [87]. Ce déflecteur est le seul coupleur utile de sortie de cavité, tous les autres miroirs sont de forte réflectivité afin de minimiser les pertes. Pour décrire le processus de déflection optique, l'impulsion intra-cavité est représentée par $E(t) = E_0 \cos(\omega t)$ où E_0 désigne l'enveloppe temporelle de l'impulsion et ω la pulsation optique de la porteuse. Après un premier passage dans



Figure 7.5: Modèle de cavity dumper à double passage

la cellule de Bragg, l'impulsion est scindée suivant l'efficacité de déviation η en une partie nondéviée E_{nd} et une partie déviée E_d décalée en fréquence de la pulsation Ω de l'onde RF appliquée à la cellule (voir la figure 7.5) :

$$E_d = \sqrt{\eta} E_0 \cos(\omega t + \Omega t + \phi) \qquad \qquad E_{nd} = \sqrt{1 - \eta} E_0 \cos(\omega t) \tag{7.3}$$

où ϕ désigne la phase (ajustable) de l'onde RF. Après réflexion sur le miroir sphérique de fin de cavité, les impulsions sont refocalisées dans la cellule de Bragg et à nouveau déviées. Si l'ajustement interférométrique des miroirs et de la cellule est correct, le champ total sortant contient alors les contributions de la partie déviée au deuxième passage du champ E_{nd} et de la partie non déviée du champ E_d :

$$E_{extr} = \sqrt{1 - \eta} \sqrt{\eta} E_0 \cos(\omega t + \Omega t + \phi) + \sqrt{\eta} \sqrt{1 - \eta} E_0 \cos(\omega t - \Omega t - \phi)$$
(7.4)
$$= 2\sqrt{\eta(1 - \eta)} E_0 \cos(\omega t) \cos(\Omega t + \phi)$$

Grâce aux interférences des voies, l'intensité extraite est proportionnelle à :

$$I_{extr} \propto \eta \left(1 - \eta\right) |E_0|^2 \cos^2(\Omega t + \phi) \tag{7.5}$$

Le maximum d'énergie peut alors être extrait avec une efficacité de diffraction limitée à $\eta = 50\%$ et une phase RF nulle $\phi = 0$ (cette phase est contrôlable depuis le boîtier électronique du modulateur). Pour réaliser l'ensemble de ce réglage interférométrique, une monture spéciale a été dessinée pour la cellule de Bragg [91].

Outre la forte efficacité d'extraction de puissance, la configuration à double passage offre aussi la propriété essentielle de pouvoir supprimer la déviation des impulsions précédant et suivant l'impulsion de commande RF. En effet, l'enveloppe du signal RF (temps de montée et de descente de l'ordre de 7 ns) est du même ordre de grandeur que le temps d'aller-retour dans la cavité (13 ns) ce qui empêche la sélection par le signal RF d'une seule impulsion lumineuse et nous oblige à prendre en compte l'impulsion optique précédant et suivant l'impulsion déviée. L'astuce ici est de remarquer que si la fréquence $\nu_{RF} = \Omega/2\pi$ de l'onde RF est convenablement choisie telle que $\nu_{RF} = (n + 0.5)/2 \nu_{cav}$ où ν_{cav} est la cadence de répétition intra-cavité et n un entier, alors le terme en cosinus dans (7.5) s'annule pour l'impulsion précédant ou suivant l'impulsion signal.

Dans notre système laser, une photodiode rapide permet de synchroniser l'onde RF avec la fréquence intra-cavité ν_{cav} . Des multiplicateurs de fréquence génèrent une onde RF de fréquence 9.5/2 fois plus grande que ν_{cav} , soit 371 MHz, ce qui permet de supprimer efficacement les fractions déviées des impulsions précédant et suivant l'impulsion signal. Le choix de la cadence de répétition est optimisé en fonction de l'électronique de commande et de la puissance RF

7.1. Source laser femtoseconde

disponible pour obtenir les impulsions de plus haute énergie. Un facteur de division égal à 100 est retenu entre la fréquence intra-cavité de 78 MHz et la cadence d'émission des impulsions à 780 kHz. Enfin, pour une extraction optimale, la position de l'enveloppe et la phase de l'onde RF appliquée au modulateur sont contrôlables par le boîtier d'électronique *Neos*.

L'énergie maximale disponible est limitée par différentes instabilités intervenant lorsque de fortes puissances intra-cavité saturent l'effet introduit par le SESAM. Plusieurs impulsions peuvent alors coexister au sein de la cavité, ce qui diminue de manière importante l'énergie utile par impulsion. Pour éviter la naissance d'impulsions multiples, la puissance intra-cavité est volontairement limitée sous le seuil critique en introduisant des pertes lors de la conception de la cavité, et en choisissant une puissance de pompe adéquate.

7.1.4 Caractérisation des impulsions

Cette section fait un rapide bilan des mesures de caractérisation des impulsions laser : énergie, puissance, durée et largeur spectrale. Le profil temporel de la puissance lumineuse est supposé suivre une dépendance en sécante hyperbolique carrée $\operatorname{sech}^2(.) = 1/\cosh^2(.)$, ce qui nous permet de présenter quelques formules utiles sur ces fonctions.

Energie et puissance

La dépendance de la puissance en fonction du temps s'écrit :

$$\mathcal{P}(t) = \mathcal{P}_{cr\hat{e}te} \operatorname{sech}^{2} \left(2\ln(1+\sqrt{2}) \frac{t}{\Delta t_{FWHM}} \right)$$
(7.6)

Si nous ne disposons pas de détecteurs optoélectroniques suffisamment rapides pour suivre cette évolution directement à l'échelle de la femtoseconde, il est cependant facile de mesurer avec un puissancemètre la puissance moyenne \mathcal{P}_{moy} . Indépendamment du profil temporel ou de la longueur d'onde, la puissance moyenne permet d'accéder à l'énergie par impulsion \mathcal{E} selon :

$$\mathcal{P}_{moy} = \mathcal{C} \int_{impulsion} \mathcal{P}(t) dt = \mathcal{E} \mathcal{C}$$
(7.7)

où C = 780 kHz est la cadence de répétition des impulsions. A partir du profil (7.6), on peut également accéder à la puissance crête de l'impulsion :

$$\mathcal{P}_{cr\hat{e}te} = \mathcal{P}_{moy} \frac{1}{C \,\Delta t_{FWHM}} \,\ln(1 + \sqrt{2}) \tag{7.8}$$

(dans le cas d'un profil gaussien, le terme correcteur en logarithme est remplacé par $\sqrt{4 \ln 2/\pi}$).

Profil temporel

Pour mesurer la largeur temporelle totale à mi-hauteur Δt_{FWHM} d'une impulsion, on utilise un dispositif standard autocorrélateur d'intensité en montage non-colinéaire [84, 85] avec un cristal non-linéaire de BBO de longueur 0.5mm de sorte à minimiser la dispersion introduite lors du doublage de fréquence. L'impossibilité de mesurer les moments d'ordre supérieurs à deux de la puissance lumineuse nous oblige à faire une hypothèse sur l'allure temporelle des impulsions afin de déduire la largeur des impulsions à partir de la largeur $\Delta t_{FWHM,autocorr}$ de la fonction d'autocorrélation d'intensité. D'après [84], les largeurs temporelles du profil et de l'autocorrélation d'intensité sont reliées par $\Delta t_{FWHM} = \Delta t_{FWHM,autocorr} / K$ où K = 1.543 pour une sécante hyperbolique carrée (ou K = 1.414 pour une gaussienne). La mesure présentée sur la figure 7.6 de l'autocorrélation d'intensité des impulsions d'une largeur totale à mi-hauteur de 7.4 μ s permet d'accéder à une largeur d'autocorrélation $\Delta t_{FWHM,autocorr} = 240$ fs avec une calibration de 32 fs/ μ s. On en déduit alors une largeur $\Delta t_{FWHM} \approx 150$ fs.



Figure 7.6: Montage autocorrélateur et courbe expérimentale d'autocorrélation d'intensité.

Spectre

Nous utilisons un spectromètre CCD intégré *CVI Spectral Products* SM240-USB-FC de résolution inférieure au nanomètre pour visualiser le spectre des impulsions lumineuses. A partir d'une mesure de largeur spectrale $\Delta \lambda_{FWHM,mes} = 6$ nm et connaissant la résolution du spectromètre, nous pouvons évaluer la largeur réelle des impulsions à $\Delta \lambda_{FWHM} \approx 5.5$ nm (produit de convolution par la caractéristique du spectromètre). Cette largeur permet de calculer alors le produit $\Delta t_{FWHM}.\Delta \nu_{FWHM} = 0.35$ pour nos valeurs expérimentales. D'après les propriétés de la transformée de Fourier, les largeurs temporelles et spectrales sont liées par la relation croisée $\Delta t_{FWHM}.\Delta \nu_{FWHM} \geq \mathcal{K}$ avec $\mathcal{K} = 0.315$ pour une sécante hyperbolique carrée et $\mathcal{K} = 0.441$ pour une gaussienne [84]. Notre valeur expérimentale de 0.35, relativement peu éloignée de la limite 0.315, confirme notre hypothèse de départ d'un profil en sech², et indique que le profil de l'impulsion est quasiment limité par Fourier, ce qui nous autorise à considérer simplement les impulsions lumineuses comme des objets quantiques monomodes (le profil spatial est lui aussi raisonnablement proche d'une allure gaussienne).

Grâce à cette source femtoseconde particulière, nous disposons d'impulsions intenses à une cadence intermédiaire, ce qui nous permet de concevoir des dispositifs simples d'optique non-linéaire pour générer des états quantiques impulsionnels particuliers. Pour des détails supplémentaires concernant notre système et les modifications apportées, on pourra se référer à la note interne [92].

7.2 Optique non-linéaire impulsionnelle

Les interactions non-linéaires permettent de manipuler les propriétés quantiques des impulsions lumineuses. Dans ce sens, elles seront notre outil de base pour la génération d'états quantiques particuliers. Quatre processus non-linéaires sont employés dans nos expériences :

• Génération de second harmonique pour convertir les impulsions émises par le laser à 846 nm vers 423 nm et servir de pompe pour les processus paramétriques.

- Amplification paramétrique dégénérée pour introduire une amplification dépendante de la phase (sensible en quadratures) à partir d'un faisceau sonde.
- Amplification paramétrique non-dégénérée pour introduire une amplification indépendante en phase d'un faisceau sonde et dupliquer l'état quantique. Ce phénomène fera l'objet du chapitre 10.
- Fluorescence paramétrique lorsqu'aucun faisceau sonde n'est présent (émission spontanée et/ou stimulée par le vide). Le choix du mode de l'oscillateur local permet de sélectionner l'état quantique observé, entre un vide comprimé (amplification dégénérée) ou un état vide intriqué (amplification non-dégénérée).

7.2.1 Choix des cristaux non-linéaires

Pour nos applications d'optique quantique, il est absolument crucial de conserver l'aspect monomode des impulsions : profils temporels et spectraux limités par Fourier et mode spatial TEM₀₀. Il faut donc concevoir les applications non-linéaires de sorte à déformer le moins possible les propriétés modales des impulsions, tout en assurant de forts effets. Le type de cristal non-linéaire employé ainsi que les longueurs utilisées devront donc satisfaire aux critères d'un fort coefficient de non-linéarité $\chi^{(2)}$, de faible décalage de direction de propagation entre les faisceaux (*walk-off*), de faible désaccord de vitesse de groupe (GVM : Group Velocity Mismatch) et de dispersion de vitesse de groupe négligeable (GVD : Group Velocity Dispersion)¹. Enfin, la taille de la tache de focalisation devra être optimisée suivant un compromis entre une focalisation suffisamment forte pour obtenir des effets intenses et suffisamment faible pour éviter tout phénomène parasite venant déformer les propriétés modales de l'impulsion (absorption, échauffement du milieu...).

Suivant un choix couramment effectué pour des expériences d'optique non-linéaire avec des impulsions femtosecondes [84], nous avons débuté nos expériences en considérant des cristaux de β -barium borate (BBO). Ce cristal présente l'avantage d'avoir un coefficient non-linéaire $d_{eff} = 1.36 \text{ pm/V}$ important à 850 nm et un coefficient de désaccord de vitesse de groupe acceptable de 190 fs/mm à 850 nm. Nous pourrions ainsi utiliser des longueurs de 0.5 à 0.8 mm pour nos applications. Malheureusement, la biréfringence intrinsèque du BBO impose un décalage de 3.8° entre le faisceau fondamental (846 nm) et le faisceau converti de second harmonique (423 nm). Pour des faisceaux focalisés de 30 μ m de diamètre, ce décalage, ou *walk-off*, sera un facteur critique dès que la longueur d'interaction dépasse quelques centaines de micromètres. Afin de conserver les qualités spatiales et temporelles du mode fondamental, il serait nécessaire d'utiliser des taches de focalisation plus grandes que 30 μ m ainsi que les longueurs de cristal de l'ordre de 0.1 à 0.2 mm, ce qui n'est pas compatible avec nos besoins d'effets non-linéaires intenses.

Nous avons finalement choisi d'utiliser des cristaux minces de niobate de potassium (KNbO₃), proposés par la société *FEE GmbH*. Ce cristal offre l'avantage d'un accord de phase non-critique (à 90 degrés ou NCPM : Non Critical Phase Matching) accordable en température. Ainsi le problème du walk-off ne se pose pas : l'onde fondamentale et de second harmonique possèdent des directions de propagation et des vecteurs de Poynting colinéaires. De plus, le niobate de potassium offre un coefficient non-linéaire $d_{eff} \approx 12 \text{ pm/V}$ qui en fait un des cristaux de plus forte non-linéarité connus à ce jour [96]. L'inconvénient majeur de ce cristal réside dans le fort

¹La GVM correspond à l'étalement de l'impulsion de second harmonique du fait du décalage temporel entre la fraction doublée en entrée du cristal et celle doublée en sortie, les impulsions bleues et rouges ne se propageant pas à la même vitesse. La GVD correspond à l'étalement intrinsèque de l'impulsion lors de la traversée d'un milieu dispersif.



Figure 7.7: (a) Indices de réfraction du $KNbO_3$ pour le fondamental (axe cristallographique b) et le second harmonique (axe c) en fonction de la température pour 846 nm d'après les équations de [96]. (b) Température optimale d'accord de phase non-critique en fonction de la longueur d'onde.



Figure 7.8: Enceinte à vide réfrigérante pour le cristal de KNbO₃.

désaccord de vitesses de groupe, évalué par le paramètre $\mathcal{D} = 1/v_{g,2\omega} - 1/v_{g,\omega}$ où $v_{g,.}$ désigne la vitesse de groupe de l'onde. Si la condition d'accord de phase garantit l'égalité des vitesse de phase, elle n'assure en rien l'égalité des vitesses de groupe dans un milieu dispersif comme le KNbO₃ dont le désaccord \mathcal{D} est de l'ordre de 1.2 ps/mm [96]. Avec des impulsions de 150 fs, il n'est donc possible de tolérer que des distances au plus de 0.1 mm. Obtenir des cristaux de KNbO₃ aussi minces avec des surfaces de qualité optique est une tâche très délicate, mais la société *FEE* a su dépasser ces difficultés pour nous proposer des cristaux de 100 μ m d'épaisseur, taillés suivant l'axe *a* et traités anti-reflets à 850 et 425 nm.

Pour le KNbO₃, l'accord de phase non-critique de type I (*ooe*) est obtenu à température ambiante pour la longueur d'onde de 860 nm. L'accordabilité de notre source laser ne nous permettant pas d'atteindre cette valeur, nous avons exploité la dépendance de l'indice de réfraction du KNbO₃ en fonction de la température pour obtenir un accord de phase non-critique pour de plus basses longueurs d'ondes. Les courbes 7.7 présentent les prédictions théoriques d'après les expressions des indices de réfraction de la référence [96]. Pour obtenir les conditions d'accord de

7.2. Optique non-linéaire impulsionnelle

phase à 846 nm, la température doit être abaissée autour de -12° C. Nous avons alors conçu une monture spéciale permettant d'abaisser la température du cristal : le refroidissement est obtenu par un élément Peltier, lui-même refroidi par une circulation d'eau. Le cristal et sa monture sont placés dans une enceinte à vide (pression interne typique 10^{-2} mbar) afin d'éviter tout phénomène de condensation et de garantir une isolation thermique adéquate. La température minimale atteignable avec ce dispositif est de -30° C, limitée par l'écart de température maximal entre les faces de l'élément Peltier (50° C). Ceci nous a permis d'optimiser l'accord de phase selon la plus forte efficacité de génération de second harmonique à 846 nm pour une température mesurée de -14° C, qui correspond sensiblement aux prévisions théoriques de la figure 7.7.

$\lambda = 850 nm$	$KNbO_3$	BBO
Туре	FEE GmbH, $a - cut$, NCPM type I (ooe) a a 850 nm, $5.0x4.7x0.1$ mm ³ , AR $850-425$ nm	Castech, $\theta = 28.5^{\circ}$, $\varphi = 0^{\circ}$, type I (ooe) à 850 nm, 5x5x0.5 mm ³ AR 820-410nm
Nonlinéarité	$d_{eff} pprox 12 \ \mathrm{pm/V}$	$d_{eff} pprox 1.36 ~{ m pm/V}$
Indice de réfraction	$n_{b,\omega} = n_{c,2\omega} = 2.281$	$n_{o,\omega} = n_{e,2\omega} = 1.660$
Walk-off	0° (NCPM)	3.8°
GVM	1.2 ps/mm	$190 \mathrm{fs/mm}$
Dispersion	$0.38~{ m fs}^2/{ m \mu m}$	$0.035~\mathrm{fs^2}/\mathrm{\mu m}$
Seuil de dommage	$2 \mathrm{GW/cm^2}$	$20 \ { m GW/cm^2}$
Absorption	$ < 0.002 \ { m cm}^{-1}$	$< 0.005 \ { m cm}^{-1}$

7.2.2 Génération de second harmonique

La génération de nouveaux états quantiques par amplification paramétrique nécessite une onde pompe à fréquence double. Le premier effet non-linéaire que nous allons chercher à obtenir sera donc la génération de second harmonique par doublage de fréquence d'une impulsion fondamentale. Comme nous allons le voir, ce phénomène peut être obtenu très simplement lors d'un simple passage dans un cristal de KNbO₃ grâce aux très fortes puissances crêtes disponibles.

Les impulsions femtosecondes sont focalisées dans un cristal de KNbO₃, refroidi pour garantir le meilleur accord de phase et exalter le signal de génération de second harmonique. Différentes optiques (voir la figure 7.1) mettent en forme le faisceau fondamental pour obtenir un waist à l'intérieur du cristal d'environ $w_0 \approx 16 \ \mu\text{m}$. Cette configuration assure un paramètre confocal $2z_R = 2\pi n w_0^2 / \lambda_\omega \approx 4 \ \text{mm}$, grand devant la longueur $L = 0.1 \ \text{mm}$ du cristal. Ainsi, nous pouvons considérer le front d'onde comme plan au niveau du doublage et négliger les effets de la diffraction du faisceau gaussien [93, 94]. Cette configuration permet alors d'utiliser les formules théoriques de l'efficacité de conversion obtenues dans l'hypothèse d'une onde plane, en prenant en compte le mode spatial gaussien dans la dépendance entre la puissance crête et l'intensité : $\mathcal{P}_{crête} = (\pi w_0^2/2) \mathcal{I}_{crête}$.

Dans les hypothèses d'un mode spatial gaussien de waist w_0 , d'un front d'onde plan et de parfait accord de phase non-critique, l'efficacité de conversion théorique de second harmonique s'écrit, en tenant compte de la déplétion du fondamental [94, 95] :

$$\eta_{SHG} = \tanh^2 \left(\frac{L}{L_{NL}}\right) \qquad \qquad L_{NL} = \sqrt{\frac{w_0^2 n^3 \varepsilon_0 c \lambda_\omega^2}{16 \pi d_{eff}^2 \mathcal{P}_{cr\hat{e}te}}} \tag{7.9}$$

où n = 2.281 est l'indice de réfraction du milieu et $d_{eff} = 12 \text{ pm/V}$ le coefficient de non-linéarité. Pour une évaluation de l'efficacité de doublage attendue, on peut appliquer cette formule dans notre configuration, $w_0 = 16 \ \mu\text{m}$, $\lambda_{\omega} = 846 \ \text{nm}$, $\mathcal{P}_{crête} = 300 \ \text{kW}$, $L = 0.1 \ \text{mm}$, ce qui aboutit à une longueur d'interaction non-linéaire $L_{NL} \approx 50 \ \mu\text{m}$ et une efficacité $\eta_{SHG} \approx 90\%$. Cette valeur importante atteste des fortes capacités de notre montage, même en simple passage avec un cristal aussi mince que 100 μm .

Cette prévision théorique est à comparer à la plus forte efficacité de conversion obtenue expérimentalement de 32% (corrigée des pertes), avec une efficacité typique de 28% (selon les réglages du laser), obtenues pour un waist au sein du cristal de 16 μ m. Pour nos puissances disponibles, cette configuration spatiale apparaît comme un optimum : bien que la formule (7.9) prédise une augmentation quadratique de l'efficacité η_{SHG} lorsque la taille du waist w_0 est diminuée, nous avons observé expérimentalement que l'efficacité de doublage aux fortes puissances diminue lors de plus fortes focalisations. Les mesures de rendement de conversion en fonction de la puissance incidente et de la focalisation sont présentées sur la figure 7.9(a). Aux faibles puissances incidentes, l'efficacité de conversion augmente linéairement avec la puissance de pompe, comme indiqué par le modèle (7.9). Par contre, pour de fortes puissances, l'efficacité de conversion décroît lorsque le faisceau est trop focalisé, et l'on observe un minimum de l'efficacité lorsqu'on déplace le point de focalisation par rapport au centre du cristal (voir la figure 7.9(b)). Ces effets apparaissent lorsque l'intensité infrarouge dans le cristal dépasse une certaine intensité seuil, qui est de l'ordre de 0.1 GW/cm² pour notre expérience.



Figure 7.9: (a) Efficacité de conversion de second harmonique mesurée en fonction de la puissance moyenne du fondamental pour deux configurations de focalisation : waist au niveau du cristal de 8 μ m (cercles) et de 16 μ m (losanges). (b) Efficacité de conversion lorsque la position du waist est décalée par rapport au centre du cristal (défocalisation) pour une puissance moyenne en entrée de 50 mW, correspondant à une intensité de 0.1 GW/cm² pour un waist de 16 μ m (losanges) et 0.4 GW/cm² pour un waist de 8 μ m (cercles).

Alors qu'elles étudiaient des cristaux de KNbO₃ épais de 3 mm et 10 mm, d'autres équipes ont également observé une décroissance de l'efficacité de conversion aux fortes puissances lorsque la focalisation est forte [97, 98]. Ces équipes expliquent ce phénomène par une forte absorption du faisceau fondamental associée à une absorption de l'infrarouge induite par l'onde bleue [99]. Notre dispositif expérimental est cependant relativement différent de ces études : d'une part, nous étudions des cristaux minces (0.1 mm), ce qui minimise les effets de l'absorption, et d'autre part, même dans les cas des focalisations les plus fortes, le paramètre confocal donné par la

7.2. Optique non-linéaire impulsionnelle

distance de Rayleigh est toujours supérieur à la longueur du cristal.

Pour comprendre l'origine du phénomène qui limite l'efficacité de conversion de notre montage, d'autres expériences complémentaires ont été réalisées. En particulier, nous avons modulé l'intensité du faisceau fondamental avec un hacheur mécanique et observé l'allure temporelle de la puissance bleue en fonction des conditions de focalisation. Pour des conditions telles que l'efficacité de conversion présente un creux en fonction de la position du waist (forte focalisation et forte puissance incidente), il apparaît une décroissance de la puissance doublée en fonction du temps d'exposition du cristal au faisceau rouge (voir la figure 7.10). Le temps caractéristique de cet effet est de l'ordre de 100 μ s, mais notre modulateur ne permettant au mieux qu'un temps de montée de 20 μ s, aucune mesure précise de ce temps caractéristique n'a pu être effectuée. Il est à noter que la décroissance disparaît de même que le creux en fonction de la focalisation lorsque l'intensité rouge au niveau du cristal est baissée en dessous du seuil critique de 0.1 GW/cm².



Figure 7.10: (a) Observation du flux lumineux bleu avec une photodiode rapide lorsque l'intensité rouge incidente est modulée mécaniquement (fréquence 150 Hz) pour une focalisation au centre du cristal et une intensité crête de 0.4 GW/cm^2 . La décroissance observée disparaît lorsque le faisceau rouge est défocalisé par rapport au centre du cristal. Echelles : H : 0.5 ms/div, V : 1.0 V/div. (b) agrandissement de (a). Echelles : H : 0.1 ms/div, V : 200 mV/div.

Ces expériences nous permettent de dresser un rapide bilan des phénomènes parasites et de leur influence sur la conversion de fréquence : BLIIRA, effet photoréfractif, effet thermique local et absorption à deux photons.

BLIIRA

L'absorption de l'infrarouge induite par l'onde bleue (BLIIRA : *Blue Light Induced InfraRed Absorption*) dans le niobate de potassium a pour la première fois été étudiée dans la référence [99] dans le cadre de cristaux épais (10 mm) utilisés comme oscillateurs paramétriques optiques continus (OPO-CW). Pour notre expérience, l'influence de cet effet est amoindri par la très faible épaisseur de cristal utilisée et le passage unique. D'autre part, aucune absorption de l'infrarouge induite par le bleu n'a pu être mise en évidence lors de l'amplification paramétrique d'une sonde infrarouge avec un cristal similaire de KNbO₃. Tout porte donc à conclure que l'effet observé est induit par l'infrarouge et non pas par le faisceau bleu.

Effet photoréfractif

Le KNbO₃ est également connu et utilisé pour ses fortes propriétés photoréfractives [100]. Des porteurs de charge mobiles, générés par l'absorption à deux photons ou la photoionisation,

sont collectés dans de nouvelles régions du cristal, ce qui induit un champ électrique local et une modification d'indice de réfraction par effet photoélectrique. La modification de l'indice de réfraction altère l'accord de phase et limite l'efficacité de conversion non-linéaire. Précisons qu'un tel effet n'interviendrait pas à l'échelle de temps d'une impulsion, mais se construirait progressivement.

Différents indices tendent à montrer que ce phénomène intervient peu dans notre montage : le temps caractéristique observé sur la figure 7.10 est inchangé alors que la puissance du fondamental ou du second harmonique est modifiée. De plus, ce temps (100 μ s) est court devant les échelles typiques des effets photoréfractifs (de l'ordre de la milliseconde dans le KNbO₃ [100]). Enfin, nous avons éclairé le cristal en continu avec une puissance de 2 W à 532 nm, focalisée sur un waist de l'ordre de 50 μ m dans le cristal, de sorte à obtenir une répartition uniforme des porteurs de charges. Cette expérience n'a absolument pas modifié nos observations sur l'efficacité de doublage.

Effet thermique local

Une autre source potentielle de dommage optique est l'endommagement par avalanche (*avalan-che breakdown*) [93] : un petit nombre d'électrons libres initialement présents dans le matériau (ou générés par excitation multiphotonique) sont accélérés lors de l'interaction avec l'impulsion laser. Ces électrons peuvent ensuite ioniser par collision d'autres atomes dans le cristal, produisant ainsi d'autres électrons libres qui vont également être accélérés pour produire en cascade d'autres collisions. Une partie de l'énergie est dissipée lors de chaque collision, ce qui induit un échauffement local du cristal à l'endroit de l'interaction avec le faisceau lumineux. Le KNbO₃ ayant une forte dépendance de l'indice de réfraction en fonction de la température (figure 7.7), une élévation locale (non-uniforme) de la température aura pour effet de modifier l'indice de réfraction et d'altérer l'accord de phase.

D'après le modèle de la référence [93], l'intensité seuil de cet effet est de l'ordre de la dizaine de GW/cm^2 , alors que nous observons un seuil de $0.1 \text{ GW}/cm^2$. Néanmoins, ce phénomène pourrait expliquer partiellement nos observations (voir le modèle simple ci-dessous). En particulier, le temps calculé de diffusion thermique d'une impulsion dans le KNbO₃ est de l'ordre de 30 μ s [156], ce qui correspond aux observations de la figure 7.10.

Absorption multiphotonique

Dans le cadre de l'absorption multiphotonique, le système subit une transition d'un état fondamental vers un état excité par une absorption simultanée de deux ou de plusieurs photons. Puis le système revient dans l'état fondamental par une désexcitation non-radiative. Le niveau excité peut tout à fait ne pas correspondre à un niveau d'énergie réel, tandis que d'autres niveaux d'impuretés peuvent intervenir dans le processus. Cet effet n'a pour l'instant été que peu étudié avec du KNbO₃, et toujours dans le cas d'un cristal épais placé en cavité optique [101].

Nous avons mesuré simultanément la transmission de l'infrarouge et le rendement de conversion de second harmonique selon deux conditions de focalisation. Un modèle très simple est proposé pour représenter nos mesures (voir la figure 7.11) en incluant un terme pour l'absorption à deux photons et un terme pour l'altération de la condition d'accord de phase due à un échauffement du cristal. La puissance du second harmonique en sortie du cristal est arbitrairement posée :

$$\mathcal{P}_{2\omega} = \eta_{SHG} T_{\text{TPA}} \mathcal{P}_{\omega 0} \tag{7.10}$$

7.2. Optique non-linéaire impulsionnelle

où η_{SHG} est le rendement de conversion, T_{TPA} est la transmission selon les processus multiphotoniques de l'onde infrarouge, $\mathcal{P}_{\omega 0}$ désigne la puissance infrarouge incidente sur le cristal. Pour une absorption multiphotonique faible, T_{TPA} s'exprime au premier ordre selon [94, 95] :

$$T_{\rm TPA} = 1 - \alpha_1 \, \frac{\mathcal{P}_{\omega 0}}{\mathcal{A}} \tag{7.11}$$

où α_1 est une constante et \mathcal{A} désigne l'aire du faisceau focalisé. Le rendement de conversion inclut une dépendance linéaire selon l'intensité infrarouge, plus un terme correctif quadratique (α_2 et α_3 sont d'autres constantes) :

$$\eta_{SHG} = \alpha_2 \, \frac{\mathcal{P}_{\omega 0}}{\mathcal{A}} \, \left(1 - \alpha_3 \, \frac{\mathcal{P}_{\omega 0}}{\mathcal{A}} \right) \tag{7.12}$$

Enfin, dans une première approximation de la déplétion du fondamental, nous posons la puissance d'infrarouge transmise comme la portion restante après doublage de la puissance $T_{\text{TPA}} \mathcal{P}_{\omega 0}$:

$$\mathcal{P}_{\omega} = (1 - \eta_{SHG}) T_{\text{TPA}} \mathcal{P}_{\omega 0} \tag{7.13}$$

Les paramètres α_i sont ensuite librement ajustés pour interpoler simultanément les courbes mesurées de transmission infrarouge et d'efficacité de conversion suivant la variable \mathcal{A} . Nos résultats sont présentés sur la figure 7.11. Même si ce modèle est bien sûr extrêmement basique et qu'aucune évaluation des paramètres α_i n'a été reliée à des grandeurs expérimentales, la concordance correcte du modèle avec les mesures de la figure 7.11 semble confirmer l'hypothèse d'effets conjoints d'une absorption multiphotonique et d'une altération de l'accord de phase pour expliquer l'origine des limites expérimentales dans la génération de second harmonique.



Figure 7.11: Transmission infrarouge (courbes du haut) et efficacité de conversion (bas) lorsque la position du waist est décalée par rapport au centre du cristal (défocalisation) pour une intensité de 0.4 GW/cm² (a) et 0.1 GW/cm² (b). Le paramètre confocal $2z_R$ est identique pour ces mesures et vaut 1 mm. Les courbes sont les résultats du modèle présenté dans le texte et sont obtenues avec les mêmes paramètres α_i pour la transmission et pour l'efficacité de doublage.

${ m Optique\ non-linéaire\ impulsionnelle} - { m KNbO}_3\ 0.1{ m mm}$				
	Puissance incidente 40mW, efficacité typique 28%, efficac-			
Génération de second har- monique (SHG)	ité max 32%, puissance bleue typique disponible 5mW, puissance bleue max 9mW (pompe $Verdi$)			
Amplification paramétrique (OPA)	Déamplification/Amplification typique 0.50 / 2.50, max 0.40/2.65 (pompe 5mW)			

7.2.3 Amplification paramétrique

L'amplification paramétrique permet de transférer de l'énergie du faisceau pompe vers la sonde ou réciproquement, et sera notre outil de base pour générer des états comprimés du champ lumineux (section 2.4.3). Mais avant de passer au domaine des fluctuations quantiques, nous étudions le signal de l'amplification paramétrique classique d'un faisceau sonde relativement intense. Ce faisceau est une faible fraction (1%) du faisceau fondamental, prélevée avant le doublage. Pour l'amplification paramétrique, nous utilisons un cristal mince de KNbO₃ (0.1 mm, NCPM en température), dans une configuration de type I dégénérée, et pour un simple passage des impulsions pompe et sonde.

Cette étape est d'une importance cruciale car l'interaction entre la pompe et la sonde fournit un signal (macroscopique) représentatif des modes quantiques que nous souhaitons produire. Ce signal permet d'ajuster l'alignement et l'adaptation du mode de l'oscillateur local pour la détection homodyne.



Figure 7.12: Puissance du faisceau sonde après amplification paramétrique lorsque la phase de la pompe est balayée linéairement. La courbe en sinusoïde indique le signal utile produit par la photodiode rapide. La droite en tirets larges indique le niveau de référence (masse), celle en tirets étroits indique le niveau de puissance sonde en l'absence d'onde pompe. La tension en triangle (fond) correspond à la commande de la modulation de phase. Pour ces courbes, les gains paramétriques mesurés sont 0.76 et 1.64.

Lors d'une expérience d'amplification paramétrique dégénérée, la phase relative entre la pompe et la sonde détermine le facteur de gain [93, 94]. Remarquons qu'une estimation théorique chiffrée de ces gains nécessiterait une connaissance précise du recouvrement entre le mode pompe

7.2. Optique non-linéaire impulsionnelle



Figure 7.13: Gain paramétrique en fonction de la puissance de pompe moyenne à 423 nm. Les disques et losanges pleins correspondent à la déamplification et à l'amplification. Les cercles marquent l'inverse du gain de déamplification. Les courbes solides sont des interpolations selon le modèle des ondes planes, obtenues pour des puissances de pompe inférieures à 0.5 mW.

et le mode sonde, ainsi que la donnée des caractéristiques du mode spatio-temporel de la pompe, ce qui est délicat à estimer dans le cadre de nos expériences. Les gains paramétriques sont mesurés par une détection directe sur une photodiode de la puissance moyenne de la sonde amplifiée. Un exemple typique de la tension de photodétection observée à l'oscilloscope est présentée sur la figure 7.12, alors que la phase relative pompe-sonde est balayée linéairement. Le meilleur gain de déamplification mesuré est de 0.40 (-4.0 dB) correspondant à une amplification de 2.65 (+4.2 dB).

La figure 7.13 présente les gains paramétriques classiques en fonction de la puissance de la pompe, ainsi qu'une interpolation basée sur le modèle gain = $\exp(\pm \alpha \sqrt{\mathcal{P}_{2\omega}})$ dans le cadre de l'hypothèse des ondes planes. Ici, α est une constante dimensionnée proportionnelle au coefficient de non-linéarité effective et à la longueur du cristal. Ce paramètre est estimé suivant une interpolation des points expérimentaux pour des puissances moyennes de pompe inférieures à 0.5 mW. $\mathcal{P}_{2\omega}$ désigne la puissance moyenne de la pompe de second harmonique. Comme on pouvait le prévoir, le modèle théorique s'écarte des points expérimentaux pour de fortes puissances de pompe : la théorie des ondes planes ne peut pas modéliser la focalisation de faisceaux gaussiens ou l'utilisation d'impulsions ultracourtes. Un modèle plus raffiné nécessiterait une prise en compte de ces différents effets ainsi que des recouvrements limités des modes de la pompe et de la sonde.

La différence entre l'amplification et l'inverse de la déamplification apparaît également plus importante aux fortes puissances de pompe, où le phénomène de diffraction induite par le gain (GID : *Gain-Induced Diffraction*) est connu pour altérer la déamplification [102, 103, 104]. A cause de la dépendance spatiale gaussienne de l'intensité de pompe, la portion du faisceau sonde proche de l'axe de propagation est plus amplifiée que les portions aux bords, ce qui déforme le front d'onde, dégrade l'accorde de phase et limite le gain paramétrique. Comme on peut le voir sur la modélisation de la figure 7.14(a), le mode déamplifié est plus sensible à cet effet que le mode amplifié, ce qui explique que la diffraction induite par le gain affecte en premier lieu le gain de déamplification.

Expérimentalement, nous avons optimisé le recouvrement entre la pompe et la sonde pour obtenir la meilleure déamplification (la configuration optique est présentée sur le schéma 7.1). La meilleure configuration est obtenue dans notre cas lorsque le waist de la sonde w_{sonde} est $\sqrt{2}$ fois plus petit que le waist pompe w_{pompe} à l'intérieur du cristal. Cette configuration est alors très différente du cas généralement étudié en théorie $w_{sonde} = \sqrt{2} w_{pompe}$ qui garantit le parfait accord des fronts d'ondes lors de la propagation [102, 103, 104]. Si cette dernière condition est théoriquement optimale avec des faisceaux gaussiens très focalisés, la sonde est nettement plus étendue que la pompe et une large portion spatiale de la sonde se propage dans une région "non-pompée" (figure 7.14(a)), ce qui dégrade la déamplification. L'optimisation expérimentale $w_{sonde} \simeq w_{pompe}/\sqrt{2}$ apparaît comme un compromis entre de faibles désaccords des fronts d'ondes et le recouvrement spatial des faisceaux. Un argument de plus en ce sens est qu'avec notre configuration optique, le paramètre confocal $2z_R$ est toujours grand devant la longueur du cristal. Les fronts d'ondes au niveau du cristal sont alors quasiment plans, ce qui permet de tolérer une certaine différence entre les fronts pompe et sonde.

La figure 7.15 présente les gains paramétriques mesurés lorsque la puissance pompe est fixée et le waist sonde est augmenté par rapport au waist pompe. On observe effectivement que le gain paramétrique diminue lorsque la dimension transverse de la sonde est augmentée. Cet effet est une conséquence directe du mauvais recouvrement spatial entre la pompe et la sonde. Pour de plus faibles waists sondes que ceux présentés sur la figure 7.15, le gain paramétrique est dégradé, tandis que la différence de courbure des fronts d'ondes ne peut plus être négligée. Nos mesures sont confrontées à un modèle simple selon [102] dans la limite de fronts d'ondes plans et en prenant en compte une répartition spatiale gaussienne. Le gain paramétrique s'exprime simplement selon :

$$G_{\text{OPA}} = \frac{\int [E_{sonde}(r) \exp(\pm \alpha E_{pompe}(r))]^2 r \, dr}{\int [E_{sonde}(r)]^2 r \, dr}$$
(7.14)

où $E_{sonde}(r)$ et $E_{pompe}(r)$ représentent les répartitions transverses gaussiennes, et α est une constante de gain fixée.



Figure 7.14: Allure spatiale des modes sondes amplifiés et déamplifiés (noir). La courbe en pointillés indique le mode sonde en entrée du cristal et est à comparer au mode de la pompe (gris). Dans les cas (a) et (b), le gain paramétrique est fixé à 4 pour faire clairement apparaître les effets de déformation du mode déamplifié. Le cas (b) correspond sensiblement à notre configuration expérimentale (la courbure des fronts d'onde est négligée dans ce calcul).



Figure 7.15: Gain paramétrique en fonction du rapport waist sonde / waist pompe. Les croix indiquent nos mesures expérimentales tandis que les lignes sont un ajustement des points expérimentaux suivant le modèle (7.14).

7.3 Génération de vide comprimé impulsionnel

7.3.1 Mesures homodynes individuelles

Lorsqu'aucun faisceau sonde n'est injecté dans l'amplificateur paramétrique, le processus nonlinéaire jusqu'alors stimulé devient une émission spontanée de fluorescence paramétrique dans toute la plage d'accord de phase accessible (largeur spectrale ≈ 150 nm, acceptance angulaire $\approx 10^{\circ}$). Cette émission fortement multimode peut heureusement être restreinte à l'étude d'un cas monomode : seul le mode signal adapté au faisceau oscillateur local sera détecté par la détection homodyne. L'oscillateur local intervient comme un filtre optique pour ne sélectionner que le mode spatio-temporel qui nous intéresse, en l'occurrence le mode vide comprimé issu de l'amplification paramétrique dégénérée d'un mode vide incident [111]. Pour obtenir un bon recouvrement de modes entre l'oscillateur local et le mode vide comprimé, le faisceau sonde (macroscopique) est réglé pour obtenir la meilleure déamplification paramétrique, puis ce faisceau sonde est ajusté pour interférer avec l'oscillateur local. Le visibilité des franges d'interférences obtenues fournit immédiatement l'efficacité d'adaptation des modes (voir le chapitre 3).

Notre système de détection homodyne impulsionnelle permet de mesurer la quadrature de l'impulsion vide comprimé en phase avec l'oscillateur local, ce qui offre un accès direct à la distribution statistique des quadratures signal dans le domaine temporel. La figure 7.16 présente le résultat de ces mesures de bruit en quadrature ainsi que la variance correspondante alors que la phase de l'oscillateur local est balayée linéairement. Pour certaines valeur de la phase relative, la variance de bruit mesurée passe sous le niveau de bruit quantique standard (SNL : *Shot Noise Level* = N_0), ce qui est la signature d'un faisceau comprimé. Les distributions de probabilité mesurées et théoriques correspondant aux quadratures comprimées et anti-comprimées sont représentées sur la figure 7.17.

Pour notre meilleur résultat, la variance mesurée de la quadrature comprimée (sans correction des pertes) est à -1.87 ± 0.06 dB sous le bruit quantique standard (= $0.65 N_0$), alors que la variance de la quadrature anti-comprimée se situe 3.32 ± 0.04 dB au-dessus du SNL (= $2.15 N_0$). Ces résultats s'accordent correctement avec les prédictions -1.92 ± 0.06 dB et $+3.32 \pm 0.06$ dB,



Figure 7.16: (a) Mesures homodynes des quadratures du vide comprimé dans le domaine temporel alors que la phase de l'oscillateur local est balayée linéairement (la répartition du bruit correspondant au bruit de photon est représentée à droite à la même échelle en gris clair). (b) Variance correspondante tracée sur une échelle linéaire et calculée d'après des blocs de 2500 points expérimentaux de la figure (a). La puissance OL est de 1.6×10^8 photons/impulsion, bruit de photon 6.54 mV, bruit électronique 2.01 mV, bruit minimum mesuré 5.29 mV (0.65N₀), bruit maximum 9.59 mV (2.15N₀).

obtenues d'après les mesures des gains paramétriques classiques du faisceau sonde $(0.53 \pm 0.01 \text{ et } 2.51 \pm 0.05)$ associées avec l'évaluation de l'efficacité globale de détection η_{hom} , d'après la formule (2.67). La procédure de mesure de cette efficacité globale est bien établie depuis les expériences de réduction des fluctuations quantiques [105, 106]. Elle peut également être vérifiée par une comparaison croisée entre le gain paramétrique et la réduction de bruit. D'après la formule (3.22), l'efficacité globale de détection s'exprime par $\eta_{hom} = \eta_{opt} \eta_{phot} \eta_{mod}^2 = 0.76 \pm 0.01$ où la transmission optique $\eta_{opt} = 0.92$, l'efficacité quantique des photodiodes $\eta_{phot} = 0.945$ et l'adaptation des modes $\eta_{mod} = 0.935$ sont mesurées indépendamment. Si l'effet des pertes est virtuellement corrigé de nos mesures, les niveaux de bruit du vide comprimé en sortie du cristal sont alors de -2.68 dB et de +4.0 dB (0.54 et $2.51 N_0$).

Ce résultat de compression des fluctuations quantiques est particulier dans le sens où, comme



Figure 7.17: Distributions de probabilité mesurées et normalisées pour les quadratures comprimées et anti-comprimées, avec la convention $N_0 = 1/2$. La variance de la quadrature comprimée est -1.87 dB sous le bruit quantique standard (SNL) alors que celle de la quadrature anti-comprimée est à +3.32 dB au-dessus du SNL.

dans la référence [26], aucun analyseur de spectre n'est utilisé pour observer la réduction des fluctuation sur une plage étroite de fréquences mais qu'au contraire, la réduction de bruit est mesurée selon la répartition statistique de chaque impulsion sur l'ensemble des fréquences accessibles à notre détection homodyne.

7.3.2 Tomographie quantique du vide comprimé

Pour caractériser complètement le vide comprimé produit, nous avons mis en œuvre une procédure standard de tomographie quantique pour reconstruire la fonction de Wigner associée à l'état [17, 18, 29]. Pour les états comprimés, une telle démarche a déjà fait l'objet de différentes études par le passé [26, 27, 28]. Nous présenterons au chapitre suivant une méthode originale de caractérisation du vide comprimé, tandis que les techniques de tomographie quantique employées ici avec des états comprimés seront réutilisées au chapitre 9 dans le cadre des états non-gaussiens.

Reconstruction numérique de la fonction de Wigner par transformée de Radon inverse

Les distributions de probabilité en quadrature s'obtiennent par des projections de la fonction de Wigner suivant la direction de la quadrature choisie (section 2.2.2). Inversement, il est possible de reconstruire la fonction de Wigner associée à l'état étudié à partir des différentes distributions de probabilité en quadrature, ce qui constitue un des sujets majeurs du domaine de la tomographie quantique. Mathématiquement, il suffit d'inverser la relation (2.24) qui donne la distribution de probabilité $Pr(x, \theta)$ pour la quadrature X_{θ} en fonction de la fonction de Wigner W(x, p) de l'état. Cette opération nécessite cependant certaines précautions de calcul numérique [17], alors que la fonction de Wigner s'exprime à partir de $Pr(x, \theta)$ par :

$$W(x,p) = \frac{1}{4\pi^2 N_0} \int_0^{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \Pr(q,\theta) K(x\cos\theta + p\sin\theta - q) \, dq \, d\theta$$
(7.15)
$$= \frac{1}{4\pi^2 N_0} \int_0^{\pi} \left[\Pr(\theta) * K(x\cos\theta + p\sin\theta)\right] d\theta$$

où * désigne le produit de convolution classique et K(q) est la fonction (kernel) définie par :

$$K(q) = \frac{1}{4N_0} \int_{-\infty}^{+\infty} |\varepsilon| \exp(i\frac{\varepsilon q}{2N_0}) d\varepsilon$$
(7.16)

La formule (7.15) est connue sous le nom de transformée de Radon inverse et est la procédure de reconstruction de la fonction de Wigner la plus communément employée. Une mise en œuvre numérique réelle nécessite cependant un certain filtrage pour régulariser la fonction Ket éviter des oscillations rapides sur la fonction de Wigner. Ce filtrage s'obtient en choisissant convenablement la fréquence de coupure k_c dans la définition régularisée de K [17] :

$$K(q) = \frac{1}{4N_0} \int_{-k_c}^{+k_c} |\varepsilon| \exp(i\frac{\varepsilon q}{2N_0}) d\varepsilon$$
(7.17)

$$= \frac{2N_0}{q^2} \left[\cos(\frac{k_c q}{2N_0}) + \frac{k_c q}{2N_0} \sin(\frac{k_c q}{2N_0}) - 1 \right]$$
(7.18)

Au voisinage de q = 0 (lorsque $|k_c q| < 0.2 N_0$), cette expression est développée en puissances de q pour éviter une divergence à l'origine.

L'algorithme de reconstruction de la fonction de Wigner par la transformation de Radon fonctionne de la manière suivante : étant donnée la fréquence de coupure k_c , la fonction K est calculée pour l'espace de points utiles avant d'être enregistrée. La fonction de Wigner s'obtient ensuite par des convolutions numériques des distributions de probabilités mesurées $Pr(x, \theta)$ avec la fonction K suivant la formule (7.15), en approximant l'intégration sur la phase par une somme suivant les différentes références de phase disponibles après les mesures.

Ce paragraphe n'est qu'un bref résumé d'introduction au problème de la reconstruction expérimentale de la fonction de Wigner d'un état. Une autre méthode numérique, dite par "maximum de vraisemblance", sera décrite au chapitre 9. De nombreuses autres informations peuvent se trouver dans les références [17, 18, 29].

Mise en œuvre expérimentale

Une procédure automatisée permet d'acquérir les statistiques homodynes correspondant à 6 références de phase, réparties entre 0 et $5\pi/6$ (une propriété générale de la fonction de Wigner est d'être une fonction réelle définie par $Pr(x, \theta)$ pour $\theta \in [0, \pi]$ [18]). Pour éviter des dérives expérimentales, la détection acquiert des ensembles de 50 000 impulsions correspondant à une phase particulière avant de lancer une procédure de recalage de phase décrite à la section 9.2.2 du chapitre 9. Pour chacune des 6 références de phase, les 50 000 mesures homodynes sont ensuite réparties en 90 canaux ce qui permet de construire les histogrammes présentés sur la figure 7.18.

La fonction de Wigner du vide comprimé est reconstruite à partir de la transformation de Radon inverse appliquée aux distributions de probabilité symétrisées $[\Pr(x,\theta) + \Pr(-x,\theta)]/2$ sans aucune correction de l'efficacité limitée η_{hom} de la détection homodyne (voir la figure 7.18). L'utilisation des distributions de probabilité symétrisées permet d'éviter des déformations de la fonction de Wigner reconstruite, qui seraient dues à un bruit statistique dans chaque canal des histogrammes de mesure. Notre programme de reconstruction numérique a été entièrement réalisé en langage C par Rosa Tualle-Brouri sur la base de la transformée de Radon inverse.



Figure 7.18: Tomographie quantique d'un état vide comprimé. Les courbes du haut représentent les histogrammes des données brutes pour les 6 phases de référence utilisées lors de la reconstruction de la fonction de Wigner du vide comprimé. L'histogramme gaussien en gris correspond à la référence du bruit quantique standard pour la convention $N_0 = 1/2$. La variance de la quadrature comprimée (phase $\varphi = \pi/2$) est 1.75 dB sous le niveau de bruit quantique standard, tandis que la variance de la quadrature amplifiée (phase $\varphi = 0$) présente un excès de bruit de 3.1 dB. Le graphe en trois dimensions du bas représente la fonction de Wigner reconstruite à partir des données expérimentales non-corrigées par transformée de Radon inverse (efficacité homodyne $\eta_{hom} = 0.75$). L'équidistance entre les courbes de niveaux (à droite) est de 0.02. La troncature numérique dans le calcul de la transformée de Radon inverse est fixée à $k_c = 8$.

7.4 Conclusion

Des états comprimés impulsionnels ont été simplement et efficacement générés en utilisant des conversions non-linéaires d'impulsions ultrabrèves dans des cristaux minces de niobate de potassium, permettant d'atteindre une réduction du bruit en quadrature de 2.7 dB sous le niveau de bruit quantique standard. Compte tenu de notre efficacité de mesure, ceci fournit une réduction mesurée de 1.9 dB. Les processus non-linéaires intervenant lors de ce processus ont été étudiés avec une attention particulière aux phénomènes limitant notre montage (absorption multiphotonique et échauffement thermique pour la génération de second harmonique et diffraction induite par le gain pour l'amplification paramétrique).

Associé à notre détection homodyne impulsionnelle, ce dispositif fournit tous les éléments pour des applications futures de traitement quantique de l'information utilisant des états comprimés, et sera notre montage de base en vue de la caractérisation des états comprimés par comptage de photons (chapitre 8) et de la génération d'états non-gaussiens (chapitre 9).