Génération d'impulsions laser ultra-brèves et ultra-intenses à contraste temporel élevé

Aurélie Jullien

▶ **To cite this version:**

Aurélie Jullien. Génération d'impulsions laser ultra-brèves et ultra-intenses à contraste temporel élevé. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Ecole Polytechnique X, 2006. Français. NNT : . tel-00077486

HAL Id: tel-00077486

https://pastel.hal.science/tel-00077486

Submitted on 30 May 2006

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 de Doctorat de l'Ecole Polytechnique

Spécialité : Physique

Présentée par

Aurélie JULLIEN

Pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE L'ECOLE POLYTECHNIQUE

GENERATION D'IMPULSIONS LASER ULTRA-BREVES ET ULTRA-INTENSES A CONTRASTE TEMPOREL ELEVE

Soutenue le 10 mars 2006 devant la commission d'examen formée de :

Gilles Chériaux	Directeur de thèse
Jean Etchepare	Examinateur
Franck Falcoz	Examinateur
Jean-Claude Kieffer	Président du jury
David Reitze	Rapporteur
Patricia Segonds	Rapporteur

Thèse préparée au Laboratoire d'Optique Appliquée UMR 7639

Ce travail de thèse synthétise les recherches effectuées pendant trois années au Laboratoire d'Optique Appliquée. Je remercie donc Danièle Hulin, puis Philippe Balcou, puis Gérard Mourou de m'y avoir accueillie. Le travail présenté ici résulte d'un contrat recherche CIFRE entre le LOA et la société Thales Laser. Je remercie ainsi Emmanuel Marquis et Franck Falcoz pour l'intérêt porté à l'avancement de mes recherches et leurs conseils.

J'exprime une grande gratitude à Gilles Chériaux, mon directeur de thèse. Je le remercie de m'avoir transmis une partie de son savoir et de son expérience sur les chaînes laser femtosecondes et les problématiques associées à la conception de nouvelles architectures laser. Merci aussi pour sa disponibilité, l'aide précieuse qu'il m'a apportée chaque fois que j'en ai eu besoin, et ses nombreux conseils pour l'élaboration du manuscrit. Je lui suis particulièrement reconnaissante de la confiance qu'il m'a témoignée pendant ces trois années.

J'aimerais ensuite remercier les personnes suivantes d'avoir accepté de faire partie du jury de thèse, en particulier Patricia Segonds et David Reitze pour s'être acquittés de la tache de rapporteur et pour leurs remarques constructives. Merci également à Jean-Claude Kieffer pour avoir présidé le jury et pour l'intérêt manifesté à mes recherches.

Je souhaite remercier les nombreuses personnes qui ont contribué à l'accomplissement de ce travail.

Concernant les recherches sur le filtre XPW, je remercie tout particulièrement Olivier Albert et Jo Etchepare (LOA team) ainsi que Solomon Saltiel, Nikolaï Minkovski et Stoyan Kourtev (Bulgarian team) pour cette collaboration efficace. J'ai beaucoup apprécié de travailler avec eux et j'aimerais les remercier pour les nombreuses discussions scientifiques autour des résultats de manip et des articles en préparation, qui m'ont permis d'avancer dans la compréhension des phénomènes non linéaires, pour leur disponibilité, leur motivation et leur aide pendant la phase de rédaction de ce manuscrit et la préparation de la soutenance. Un grand merci à l'équipe XPW. Merci également à Fred Burgy, Jean-Philippe Rousseau, Guy Hamoniaux, Moana Pittman pour les mesures au corrélateur grande dynamique et Pierre Zaparucha pour avoir « débugué » le programme du 3ω un après midi d'Août 2004. Merci à Davide Boschetto de m'avoir aidée pour les calculs liant chirp et XPW. Je remercie bien sûr Arnaud Cotel, Nicolas Forget et Catherine Le Blanc pour les expériences réalisées au Luli. Enfin, merci à Jean-Philippe Rousseau, Denis Douillet, Thierry Lefrou et Philippe Chaudet, de CSX, pour la conception de la magnifique cellule XPW, en particulier à Philippe pour la modélisation.

Pour le travail en Salle Bleue, je tiens surtout à remercier Jean-Philippe Rousseau pour les discussions techniques et le temps passé sur l'étude de l'oscillateur haute énergie, entre autres, ainsi que Josselin Philip et Ciro D'Amico dont la bonne humeur pendant nos expériences simultanées reste un bon souvenir.

Les expériences et réflexions sur la rotation de polarisation elliptique dans l'air doivent beaucoup à Pascal d'Oliveira et Thierry Auguste. Merci également à Frédérika Augé-Rochereau pour son aide et à Bernard Prade et Michel Franco du groupe ILM pour leurs conseils théoriques.

Je remercie le service informatique, Arnaud Chiron, Fatima Alahyane et Pierre Zaparucha, ainsi qu'Alain Paris, pour la résolution des fréquents soucis de programmation et d'ordinateurs. Merci aussi à Charly et Mickaël pour les mille et une pièces mécaniques réalisées et leur patience, ainsi qu'à Dolores, Octavie, Cathy, Patricia, Sandrine et Régis pour leur disponibilité au secrétariat.

Merci également à Jean-Paul Chambaret pour ses nombreux conseils et discussions à propos de l'amélioration du contraste et à toute l'équipe de Sharp pour l'ambiance très conviviale des meetings.

J'aimerais remercier toutes les personnes du groupe ELF auprès desquelles j'ai beaucoup appris : Laura Antonucci, Frédérika Augé-Rochereau, Frédéric Burgy, Yong-Ho Cha, Gilles Chériaux, Armindo Dos Santos, Guy Hamoniaux, Brigitte Mercier, Thomas Planchon, Amandine Renault, Jean-Philippe Rousseau et Amar Tafzi.

Beaucoup de personnes ont contribué à rendre chaleureuse et agréable l'ambiance du laboratoire pendant les pauses et les heures de travail : tout d'abord les « filles du groupe ELF » Amandine et Laura pour les nombreux moments passés ensemble, Kim, Davide, Fred, David, Salim, Greg, l'équipe de New-York : Fabien, Jérôme, Fédérico, et aussi Kevin, Anne-Sophie bien sûr, Grégoire, Rahul…. Merci à tous pour leur sympathie et leur amitié.

Je souhaite enfin remercier tous mes proches, mes amis et ma famille, pour leurs encouragements et leur soutien.

Table des matières

Introduction.....1

Chapitre 1 : Introduction au contraste temporel d'impulsions femtosecondes.....5

1. Impulsions laser femtosecondes ultra intenses 7

1.1. Notions sur les impulsions brèves 7

1.2. Amplification à dérive de fréquences 10

2. Contraste temporel d'une impulsion femtoseconde.....14

2.1. Définition et enjeux 14

2.2. Contrat SHARP pour l'amélioration du contraste : mesure et état de l'art 18

3. Conclusion 26

Bibliographie.....28

Chapitre 2 : Non-linéarités d'ordre trois.....33

1. Modifications de la polarisation dans un milieu non linéaire.....35

1.1. Hypothèses.....35

1.2. Modifications de la polarisation dans un milieu isotrope.....36

1.3. Modifications de la polarisation dans un milieu cristallin anisotrope 38

2. Automodulation de phase et autofocalisation.....44

2.1. Automodulation de phase 44

2.2. Autofocalisation.....45

Bibliographie.....47

Chapitre 3 : Rotation non linéaire de polarisation elliptique dans l'air.....49

1. Description du dispositif expérimental de filtrage non linéaire.....52

1.1. Caractérisation de la source 52

1.2. Montage expérimental 53

1.3. Modèle théorique associé au filtre non linéaire.....54

1.4. Conclusion 56

2. Influence de la phase spectrale sur l'efficacité du filtre 57

2.1. Contrôle de la phase spectrale 57

2.2. Influence de la phase spectrale du deuxième ordre 58

2.3. Influence de la phase spectrale du troisième ordre.....60

2.4. Conclusion 63

3. Caractérisation de l'impulsion initiale et de l'impulsion filtrée 64
3.1. Configuration retenue : caractérisation de l'impulsion initiale 64
3.2. Amélioration du contraste temporel : corrélation grande dynamique 66
3.3. Caractérisation spatiale de l'impulsion filtrée 67
3.4. Caractérisation spectrale de l'impulsion filtrée 67
4. Conclusion 69
Bibliographie *70*

Chapitre 4: Génération d'onde polarisée orthogonalement dans des cristaux non linéaires... 73
1. Introduction au processus de génération de polarisation croisée 75
1.1. Modèle théorique "simplifié" 76
1.2. Résultats expérimentaux préliminaires 80
1.3. Intérêts du processus XPW pour le filtrage non linéaire 83
2. Efficacité de conversion du processus XPW 85
2.1. Modèle théorique complet : cas d'une onde plane 85
2.2. Efficacité effective 86
2.3. Limites expérimentales de l'efficacité de conversion XPW (un cristal) 88
2.4. Dispositif XPW incluant deux cristaux : amélioration de l'efficacité de conversion 90
3. Estimation de l'amélioration du contraste 98
4. Conclusion 101
Bibliographie *102*

Chapitre 5 : Génération de polarisation croisée et rotation de polarisation elliptique dans des cristaux 105
1. Introduction : description du dispositif expérimental 107
2. Modèle théorique 109
2.1. Rappel des équations de propagation des champs 109
2.2. Quelques résultats des simulations 110
2.3. Conclusion 112
3. Résultats expérimentaux 114
3.1. Polarisation elliptique : mise en évidence de la rotation de l'ellipse 114
3.2. Polarisation elliptique ou linéaire : comparaison de l'efficacité de transmission 115
3.3. Automodulation de phase 118
4. Conclusion : application au filtrage temporel 120

Bibliographie.....*121*

Chapitre 6 : Filtrage non linéaire d'impulsions femtosecondes par génération de polarisation croisée dans des cristaux.....**123**

1. Filtrage XPW au millijoule à 800 nm.....126
   1.1. Dispositif expérimental.....126
   1.2. Caractérisation du faisceau filtré.....129
   1.3. Conclusion : expériences à 800 nm.....136
2. Influence de la phase spectrale du second ordre.....137
   2.1. Dispositif expérimental.....137
   2.2. Influence de la phase spectrale du second ordre sur le rendement.....138
   2.3. Evolution du spectre de l'impulsion XPW.....140
   2.4. Conclusion.....149
3. Filtrage XPW au millijoule à 1.06 μm.....150
   3.1. Dispositif expérimental.....150
   3.2. Transmission du filtre.....151
   3.3. Caractérisation du faisceau filtré.....152
   3.4. Conclusion : expériences à 1.06 μm.....156
4. Conclusion.....157

Bibliographie.....*158*

Chapitre 7 : Implémentation du filtre non linéaire XPW.....**159**

1. Limitations pour les caractéristiques de l'impulsion initiale.....161
   1.1. Taux de répétition du laser.....162
   1.2. Durée de l'impulsion.....162
2. Implémentation du filtre XPW au microjoule.....164
3. Implémentation du filtre XPW au millijoule : double CPA.....166
   3.1. Premier système CPA.....166
   3.2. Dispositif de filtrage.....167
   3.3. Deuxième système CPA.....168
4. Implémentation du filtre en fin de chaîne.....169
5. Conclusion.....170

Bibliographie.....*171*

Conclusion.....*173*

Annexes.....*177*

A. Modifications de la polarisation dans un milieu cristallin anisotrope (calcul complet des équations de propagation).....179

B. Automodulation de phase et élargissement spectral.....185

C. Efficacité XPW théorique effective pour des ondes réelles : calcul de K.....189

Introduction

La génération d'impulsions laser extrêmement brèves et intenses ouvre un vaste domaine de recherche, en particulier pour la physique des plasmas et les interactions laser matière à très haut flux. Au cours de ces vingt dernières années, le développement des sources lasers femtosecondes ($1fs = 10^{-15}s$) a connu un élan considérable, en particulier grâce à l'introduction de l'amplification à dérive de fréquences en 1985 qui a permis d'envisager l'amplification d'impulsions courtes jusqu'à des niveaux d'énergie très élevés. De plus, l'utilisation, depuis les années 1990, d'un nouveau matériau amplificateur, le saphir dopé au titane, dont les caractéristiques exceptionnelles demeurent quasiment incontournables, permet l'amplification d'impulsions de durée quelques dizaines de femtosecondes à des taux de répétition élevés, de 10 Hz à quelques dizaines de kilohertz.

Aujourd'hui, les puissances crêtes atteintes par de tels systèmes dépassent la centaine de Térawatt ($1\ TW = 10^{12}\ W$) avec des installations de taille relativement réduite.

C'est autour de ces sources laser ultra-brèves et ultra-intenses que s'oriente au Laboratoire d'Optique Appliquée la recherche en physique des lasers et des interactions associées. Les applications de ces sources pour la physique des plasmas et des particules sont en effet très nombreuses. Par exemple, elles autorisent des expériences telles que la génération d'harmoniques d'ordre élevé, qui génèrent des rayonnements cohérents dans l'ultraviolet lointain. Les hautes intensités ouvrent également la voie à la réalisation de sources X et gamma, à la génération d'impulsions attosecondes ou encore à l'accélération de particules (électrons, protons). Enfin, les durées très brèves des impulsions permettent l'étude résolue en temps de phénomènes ultra-rapides biologiques, chimiques…

L'ambition actuelle du développement des lasers femtosecondes est l'augmentation de l'intensité crête, aujourd'hui au mieux de l'ordre de $10^{21}\ Wcm^{-2}$, pour ouvrir des voies nouvelles de recherche dans le domaine des plasmas relativistes.

L'augmentation de l'intensité requiert à la fois l'optimisation de l'énergie disponible, la réduction de la durée de l'impulsion, ainsi que l'amélioration de la qualité de focalisation du faisceau. Le développement de telles sources est aujourd'hui limité par plusieurs verrous, scientifiques et technologiques. Par exemple, la conception d'amplificateurs Titane Saphir émettant des impulsions d'énergie plusieurs dizaines de joules impose de contrôler parfaitement la qualité spatiale des lasers de pompe et de maîtriser les phénomènes parasites de l'amplification, tels que le lasage transverse dans les cristaux.

Un autre de ces verrous réside dans le problème du contraste temporel de l'impulsion femtoseconde. La notion de contraste désigne le rapport d'intensité entre l'impulsion proprement

dite et son piédestal, de durée nanoseconde, constitué par l'émission spontanée amplifiée (ASE pour *Amplified Spontaneous Emission*). Le problème posé par l'amplification de l'émission spontanée, inhérente aux mécanismes d'amplification laser et bien connue par exemple dans le domaine des lasers fibrés, devient d'autant plus crucial que l'intensité des impulsions augmente. En effet, considérant que le contraste typique d'un système femtoseconde ultra-intense est de 6 à 7 ordres de grandeur, la montée en intensité des impulsions confère au fond d'ASE des valeurs d'intensité également très importantes qui nuisent à la qualité des interactions laser-matière associées.

Un des domaines de recherche de la physique à haut flux pour lequel le contraste est particulièrement significatif est la production de sources de protons par laser. L'énergie des protons ainsi générés atteint actuellement quelques dizaines de mégaélectronvolts et présente une grande sensibilité au contraste temporel du laser. Une application particulièrement enthousiasmante de ces sources est la protonthérapie de tumeurs cancéreuses. Le traitement d'une tumeur par protons présente en effet l'intérêt d'épargner les tissus sains précédant et suivant la lésion. La fenêtre thérapeutique d'énergie des protons s'étend de 70 MeV environ à 250 MeV. La génération de particules si énergétiques requiert des intensités laser sur cible supérieures à 10^{21} Wcm^{-2}, avec un contraste temporel d'au moins 10 ordres de grandeur. Le projet PROPULSE (*PROton Production assisted by Ultra intense LaSErs*), qui fait l'objet d'une collaboration entre le Laboratoire d'Optique Appliquée, l'Institut Gustave Roussy, l'Institut Curie et la société Amplitude Technologies, vise à concevoir un tel laser dédié à la protonthérapie.

D'une manière générale, il est actuellement nécessaire d'augmenter le contraste temporel des systèmes lasers de 4 à 5 ordres de grandeur.

Telle a été l'ambition du contrat programme européen de Recherche et de Développement Technologique SHARP (*Suppression over High dynamic range of Ase at the Rising edge of ultra-intense femtosecond Pulses*, 5è PCRD de l'Union Européenne, Nov. 2001- Av. 2004) qui a permis l'investigation théorique et expérimentale de nombreux moyens de mesure et d'amélioration du contraste.

C'est également dans cet objectif d'amélioration du contraste temporel que s'intègre cette thèse. Le travail de ces trois années résulte d'une collaboration entre le Laboratoire d'Optique Appliquée et la société Thales Laser, au moyen d'un contrat de recherche CIFRE. Le travail présenté dans ce manuscrit consiste en l'étude et la conception d'un dispositif permettant la génération d'impulsions ultra-brèves à contraste temporel très élevé. Il s'agit d'un filtre temporel basé sur un effet non linéaire du troisième ordre modifiant la polarisation de l'onde. J'ai étudié au cours de ma thèse plusieurs déclinaisons de ce principe. Le dispositif finalement retenu repose sur la

génération d'une onde polarisée orthogonalement dans des matériaux cristallins et répond à toutes les exigences imposées pour son implémentation dans les systèmes femtosecondes. Cette étude a donné lieu à plusieurs publications ainsi qu'à un dépôt de brevet en novembre 2004.

Le manuscrit se compose de sept chapitres.

Les deux premiers chapitres sont introductifs. J'expose tout d'abord les notions indispensables pour appréhender le problème du contraste temporel, depuis les généralités propres aux impulsions brèves jusqu'à l'état de l'art des solutions existant pour le contraste. Il en résulte que le filtrage temporel non linéaire apparaît comme une alternative pertinente. Le deuxième chapitre est de ce fait consacré à l'étude théorique de phénomènes non linéaires du troisième ordre influant sur la polarisation de l'onde lors de sa propagation dans différents milieux. Ces processus constituent le fondement des filtres temporels étudiés par la suite.

Le chapitre 3 présente les résultats de filtrage temporel obtenus grâce à l'effet de rotation de polarisation elliptique par biréfringence induite dans l'air. J'expose alors la conception du filtre, ses caractéristiques ainsi que ses limites.

Dans le quatrième chapitre, j'étudie de manière théorique et expérimentale le processus de génération d'une onde polarisée orthogonalement dans des cristaux cubiques. Dans ce cas, la polarisation initiale du laser est linéaire. Je démontre que ce processus possède de nombreux avantages, indispensables pour l'application au filtrage temporel. Le chapitre 5 est une extension de cette étude, où sont comparées et discutées les caractéristiques du phénomène non linéaire selon la polarisation initiale de l'impulsion.

Le chapitre 6 est dédié au filtrage temporel d'impulsions brèves et énergétiques (environ 1 mJ) grâce à la génération de polarisation orthogonale, selon les conclusions des deux chapitres précédents. Les résultats expérimentaux obtenus sur deux systèmes lasers de caractéristiques bien distinctes démontrent définitivement l'efficacité de ce filtre et son adéquation aux diverses exigences pour l'amélioration du contraste temporel.

Enfin, le dernier chapitre du manuscrit discute les choix possibles pour l'implémentation du filtre dans un système laser de puissance crête plusieurs centaines de Térawatt à fort contraste.

Chapitre 1

Introduction au contraste temporel d'impulsions femtosecondes

Chapitre 1

Introduction au contraste temporel d'impulsions femtosecondes

1. Impulsions laser femtosecondes ultra-intenses 7

1.1. Notions sur les impulsions brèves 7

1.1.1. Relation temps - fréquence 7

1.1.2. Phase spectrale de l'impulsion 8

- Phase spectrale d'ordre deux et effet de dispersion 9
- Phase spectrale d'ordres supérieurs 9

1.2. Amplification à dérive de fréquences 10

1.2.1. Oscillateur femtoseconde 11

1.2.2. Etireur et compresseur 12

1.2.3. Amplificateurs 13

2. Contraste temporel d'une impulsion femtoseconde 14

2.1. Définition et enjeux 14

2.1.1. Définition du contraste temporel 14

2.1.2. Le contraste dans la chaîne CPA 15

2.1.3. Enjeux de l'amélioration du contraste 17

2.2. Contrat SHARP pour l'amélioration du contraste : mesure et état de l'art 18

2.2.1. Mesure du profil temporel : corrélateur du troisième ordre grande dynamique 18

2.2.2. Quelques solutions pour l'amélioration du contraste 19

- Oscillateur haute énergie 19
- Filtrage temporel 22
- Filtrage temporel non linéaire 23
- Miroirs plasma 25

3. Conclusion 26

Bibliographie 28

Ce chapitre d'introduction expose dans un premier temps les différentes notions indispensables pour appréhender la génération, l'amplification et les caractéristiques d'impulsions laser ultra-brèves et ultra-intenses.

Dans une seconde partie, je présenterai le principal facteur limitant la qualité du profil temporel en intensité de ces impulsions. Il s'agit du contraste temporel incohérent. Cette notion de contraste est liée à l'amplification dans le système laser de l'émission spontanée. Je montrerai dans ce paragraphe la nécessité de mesurer, contrôler et améliorer le contraste des lasers femtosecondes ultra-intenses. Plusieurs voies de recherche sont actuellement envisagées pour résoudre ce problème. Les avantages et limites de quelques unes de ces solutions seront discutés.

1. Impulsions laser femtosecondes ultra-intenses

1.1. Notions sur les impulsions brèves

1.1.1. Relation temps - fréquence

Le champ électrique d'une impulsion lumineuse est le produit d'une onde porteuse qui oscille à la fréquence ω_0, fréquence fondamentale du laser, et d'une fonction enveloppe. En supposant cette enveloppe de forme gaussienne, la dépendance temporelle du champ électrique, représentée figure 1.1, s'écrit :

$$E(t) = E_0 \exp\left(-\Gamma t^2\right)\exp\left(j\omega_0 t\right) \qquad (1.1)$$

L'intensité de l'impulsion est alors donnée par :

$$I(t) \propto \left|E(t)\right|^2 = \left|E_0\right|^2 \exp\left(-2\Gamma t^2\right) \qquad (1.2)$$

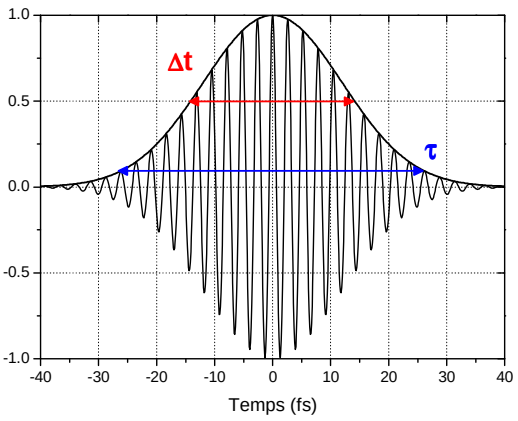

Figure 1.1 : Champ électrique et porteuse associée d'une impulsion de durée 20 fs, $\lambda_0 = 800nm$.

Γ est lié à la largeur temporelle en intensité à $1/e^2$ par $\tau = \frac{2}{\sqrt{\Gamma}}$.

La durée de l'impulsion à mi-hauteur en intensité s'exprime $\Delta t = \sqrt{\frac{2\ln 2}{\Gamma}}$.

Pour un faisceau de longueur d'onde 800 nm, la période d'oscillation du champ électrique est $\frac{2\pi}{\omega_0} = 2.6\,fs$. Cela signifie que les impulsions les plus brèves que l'on sache réaliser, de durée de l'ordre de 5 fs [1.1, 1.2], ne contiennent que très peu d'oscillations du champ, dont il est alors nécessaire de contrôler la phase absolue [1.3].

L'amplitude spectrale associée est la transformée de Fourier de la forme temporelle :

$$E(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} E(t)\exp(j\omega t)dt = E_0^{'} \exp\left(-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{4\Gamma}\right) \qquad (1.3)$$

$$I(\omega) \propto \left|E_0^{'}\right|^2 \exp\left(-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{2\Gamma}\right) \qquad (1.4)$$

Pour une telle impulsion, la largeur spectrale à mi-hauteur $\Delta\omega$ est liée à la durée Δt par la relation $\Delta t \times \Delta\omega = 4\ln 2$, soit :

$$\Delta t = \frac{2\ln 2}{\pi}\frac{\lambda_0^2}{c\,\Delta\lambda} \approx 0.441\frac{\lambda_0^2}{300\,\Delta\lambda} \qquad (1.5)$$

Δt est exprimé en femtosecondes, λ (longueur d'onde centrale du spectre) et $\Delta\lambda$ (largeur spectrale à mi-hauteur) en nanomètres.

Toute impulsion d'enveloppe gaussienne qui vérifie cette égalité est dite de durée limitée par transformée de Fourier. Si sa phase spectrale est nulle, elle possède alors la durée la plus courte possible correspondant à son spectre.

1.1.2. Phase spectrale de l'impulsion

La phase spectrale de l'impulsion introduit des modifications de ses caractéristiques temporelles. Un développement limité de la phase autour de la fréquence centrale ω_0 conduit à :

$$\varphi(\omega) = \varphi_0 + \left(\frac{d\varphi}{d\omega}\right)_{\omega_0}(\omega-\omega_0) + \frac{1}{2}\left(\frac{d^2\varphi}{d\omega^2}\right)_{\omega_0}(\omega-\omega_0)^2 + \frac{1}{6}\left(\frac{d^3\varphi}{d\omega^3}\right)_{\omega_0}(\omega-\omega_0)^3 + \ldots \quad (1.6(a))$$

$$\varphi(\omega) = \varphi_0 + \varphi^{(1)}(\omega-\omega_0) + \frac{1}{2}\varphi^{(2)}(\omega-\omega_0)^2 + \frac{1}{6}\varphi^{(3)}(\omega-\omega_0)^3 + \ldots \qquad (1.6(b))$$

La phase spectrale correspond à un décalage temporel des composantes spectrales, auquel il est naturel d'associer un retard de groupe $T(\omega)$:

$$T(\omega) = \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega} = \varphi^{(1)} + \varphi^{(2)}(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\varphi^{(3)}(\omega - \omega_0)^2 + ... \qquad (1.7)$$

- *Phase spectrale d'ordre deux et effet de dispersion*

Le terme d'ordre deux ($\varphi^{(2)}$) est appelé dispersion de vitesse groupe. Ce terme est majoritairement responsable de l'élargissement temporel de l'impulsion lors de sa propagation dans des éléments dispersifs (effet de l'indice de réfraction $n(\lambda)$). Dans ce cas, le retard de groupe est linéaire avec la fréquence. Les composantes spectrales arrivent les unes après les autres, l'impulsion présente un glissement de fréquence linéaire, aussi appelé *chirp*.

Ainsi, une impulsion de forme gaussienne, de durée limitée par transformée de Fourier Δt_0, présente après traversée d'un matériau dispersif une durée Δt [1.4]:

$$\Delta t = \Delta t_0 \sqrt{1 + 16(\ln 2)^2 \frac{(\varphi^{(2)})^2}{\Delta t_0^4}} \qquad (1.8)$$

La quantité de phase spectrale du deuxième ordre $\varphi^{(2)}$ ajoutée est liée à la variation de l'indice et à la longueur L du matériau. Elle s'exprime en femtosecondes carrées :

$$\varphi^{(2)} = \frac{\lambda_0^3}{2\pi c^2} \frac{d^2 n}{d\lambda^2} L \qquad (1.9)$$

Plus une impulsion est courte initialement, plus l'effet de la dispersion sur sa durée est important.

- *Phase spectrale d'ordres supérieurs*

Le terme d'ordre trois ($\varphi^{(3)}$) affecte peu la durée de l'impulsion mais génère une dissymétrie temporelle. Des pré-impulsions apparaissent si $\varphi^{(3)} < 0$. Dans le cas $\varphi^{(3)} > 0$, il s'agit de post-impulsions.

Les termes supérieurs (ordres quatre et cinq principalement) participent également, dans une moindre mesure, à la détérioration du profil temporel (piédestal, impulsions parasites) mais influencent très peu la durée à mi-hauteur de l'impulsion.

1.2. Amplification à dérive de fréquences

Une chaîne laser haute intensité émettant des impulsions ultra-brèves [1.5] est basée sur la technique d'amplification à dérive de fréquences dont je vais succinctement présenter le principe.

En premier lieu, un oscillateur génère des impulsions de durée quelques femtosecondes ou dizaines de femtosecondes, et d'énergie quelques nanojoules. On définit l'intensité crête par :

$$I = \frac{E}{\Delta t \times S} \qquad (1.10)$$

E est l'énergie de l'impulsion, Δt sa durée et S la section du faisceau. Cette grandeur est habituellement exprimée en Wcm^{-2}. Si les impulsions créées par l'oscillateur sont amplifiées directement, l'intensité crête atteint rapidement des valeurs très importantes. Ceci a pour conséquence l'apparition d'effets non linéaires qui peuvent dégrader les qualités spatiale et temporelle du faisceau, et conduire à l'endommagement des éléments optiques employés. Il convient donc d'augmenter autant que possible la taille du faisceau, et surtout d'allonger la durée de l'impulsion pendant la phase d'amplification.

C'est ce que propose la technique d'amplification à dérive de fréquences, ou CPA pour *Chirped Pulse Amplification* [1.6]. Le principe est d'étirer temporellement l'impulsion en sortie d'oscillateur d'un facteur environ 10^4-10^5. Après amplification, l'impulsion retrouve une durée proche de sa durée initiale grâce à un compresseur (fig. 1.2).

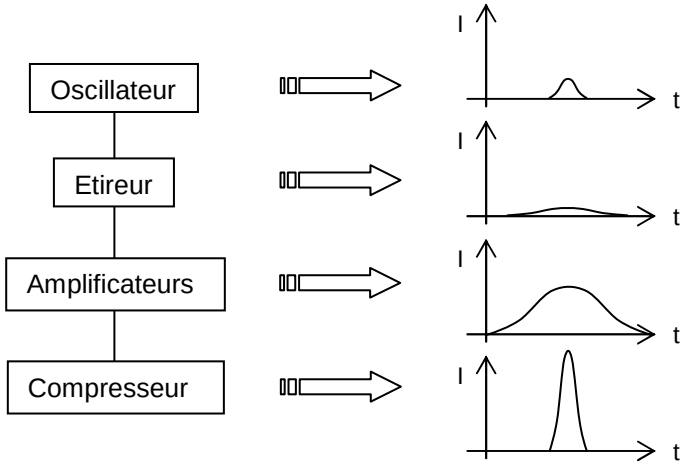

Figure 1.2 : Amplification à dérive de fréquences

Actuellement, quasiment toutes les sources émettant des impulsions de durée inférieure à 1 ps fonctionnent sur ce principe. Des systèmes laser d'énergie plusieurs dizaines de joules sont ainsi obtenus. Plusieurs matériaux amplificateurs sont adaptés à ce type d'énergie.

Le Saphir dopé au Titane, Ti :Sa (Ti^{3+}:Al_2O_3), est un bon candidat, utilisé pour produire des impulsions très énergétiques et très courtes. En effet, il possède une bande spectrale d'émission stimulée très large (650-1100 nm). La section efficace d'émission stimulée de ce matériau vaut 3×10^{-19} cm^{-2} à 790 nm. Cette valeur confère au Ti :Sa une bonne capacité à extraire l'énergie stockée lors du pompage. De plus, sa conductivité thermique (35 $WK^{-1}m^{-1}$) permet une bonne évacuation de la chaleur. Les sources à Ti :Sa présentent ainsi le grand avantage d'un taux de répétition élevé, pouvant atteindre la dizaine de kilohertz.

D'autres chaînes utilisent comme milieu amplificateur un matériau amorphe (verre dopé au néodyme) qui peut être produit en grande dimension mais présente une bande spectrale de gain de quelques dizaines de nanomètres. Ce type de laser est donc adapté à la production d'impulsions moins brèves (quelques centaines de femtosecondes). Il présente un taux de répétition très faible (1 tir toutes les 20 minutes ou toutes les heures) en raison d'une faible dissipation de la chaleur dans le verre.

1.2.1. Oscillateur femtoseconde

Dans un oscillateur laser, si le matériau amplificateur possède une large bande spectrale de gain, ce qui est indispensable pour l'obtention d'impulsions ultra-courtes, plusieurs modes longitudinaux peuvent coexister dans la cavité. Si ces modes ne sont pas liés par une relation de phase, ils oscillent indépendamment les uns des autres. Le faisceau laser émis est donc multimode et continu. Le régime impulsionnel résulte d'une mise en phase de ces modes, c'est le blocage de modes (*mode-locking)*. Pour réaliser ce blocage de modes, on introduit dans la cavité un élément qui module les pertes, c'est-à-dire qui devient transparent avec les hautes intensités et favorise donc le régime impulsionnel, plus intense que le régime continu. Pour les oscillateurs à cristaux de Ti :Sa, c'est l'effet Kerr optique qui joue ce rôle. En effet, si l'intensité dans la cavité augmente, une lentille de Kerr s'établit dans le cristal, qui modifie la divergence du laser dans la cavité. Traditionnellement, une fente à sélection spatiale peut favoriser le mode correspondant au régime impulsionnel. Celui-ci, subissant alors moins de pertes dans la cavité, peut s'établir durablement. Il est aussi possible de modifier la cavité oscillante pour déstabiliser le mode continu et favoriser le régime impulsionnel.

Une fois cette condition réalisée, il faut également compenser la dispersion de vitesse de groupe introduite par les éléments traversés, essentiellement le cristal. Des miroirs "chirpés" ou une ligne à prismes, usuellement en silice, peuvent remplir cette fonction.

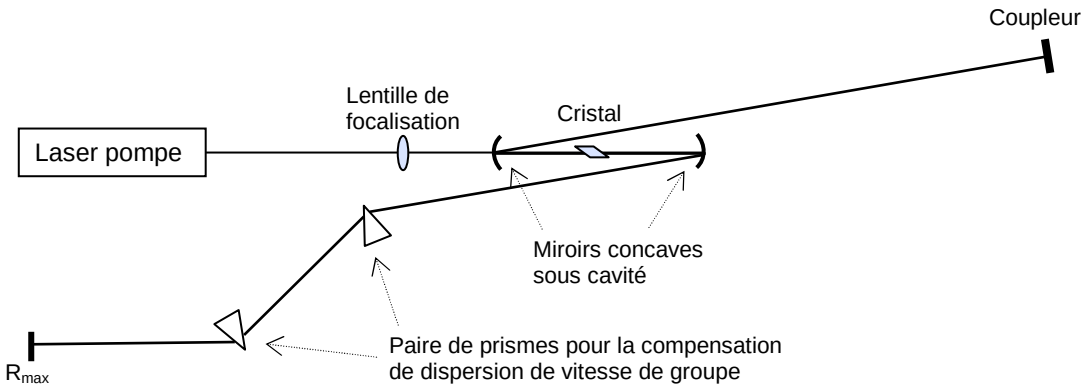

Figure 1.3 : Schéma d'un oscillateur Ti :Sa à blocage de modes par effet Kerr

La figure 1.3, représente le schéma d'un oscillateur traditionnel Ti :Sa à blocage de modes par effet Kerr (KLM, *Kerr Lens Mode-locking*) [1.7]. La cadence des impulsions émises, liées à la longueur de la cavité, est en général de plusieurs dizaines de mégahertz.

1.2.2. Etireur et compresseur

Le principe pour étirer temporellement l'impulsion est de différencier le chemin optique parcouru pour chacune des longueurs d'onde composant le spectre de l'impulsion. Si la dispersion entre ces longueurs d'onde est positive, cela signifie que les courtes longueurs d'onde parcourent dans l'étireur un chemin optique plus bref. La durée de l'impulsion est ainsi allongée, jusqu'à quelques centaines de picosecondes. A ce déphasage correspond une phase spectrale, c'est en première approximation une fonction quadratique de la fréquence.

Un étireur à réseaux est à même d'introduire ce type de dispersion. Par exemple, l'étireur à triplet de Öffner, composé d'un réseau de diffraction et de miroirs, est couramment employé car il introduit un minimum d'aberrations et de distorsions [1.4]. La propagation dans la chaîne amplificatrice ajoute également de la dispersion positive, qui accroît l'écart temporel entre les longueurs d'onde.

En fin de chaîne, la compression de l'impulsion est réalisée grâce à deux réseaux parallèles qui introduisent une dispersion négative, compensant la phase spectrale de l'étireur et celle induite par la propagation dans la chaîne.

1.2.3. Amplificateurs

L'augmentation massive de l'énergie de l'impulsion étirée a lieu par plusieurs passages dans des étages d'amplification, dont le milieu à gain est pompé optiquement par des lasers impulsionnels de durée nanoseconde. Plusieurs étages sont nécessaires. Pour chacun d'entre eux, la taille du faisceau est choisie en fonction de son énergie, pour conserver la valeur de l'intensité crête.

Le premier étage est un "amplificateur à gain" (pré-amplificateur). En sortie, l'énergie de l'impulsion a été amplifiée d'un facteur un million passant, grâce à ces amplificateurs à fort gain, du nanojoule au millijoule. Les amplificateurs suivants, dits "de puissance", présentent des gains plus faibles (10 à 200).

Il existe en outre deux types d'amplificateurs : l'amplificateur régénératif et l'amplificateur multi-passages. L'amplificateur régénératif est un résonateur où l'impulsion est injectée et éjectée après amplification grâce à des polariseurs et par commutation d'une cellule de Pockels (fig. 1.4(a)). L'impulsion a alors traversé plusieurs dizaines de fois le cristal. Un grand nombre de passages (≈30) est nécessaire. Ceci est l'inconvénient majeur de ce type d'amplificateur car chaque passage introduit des pertes, de la dispersion, et contribue au rétrécissement spectral par le gain. Les éléments polarisants sont aussi à l'origine d'impulsions parasites. Par contre la qualité spatiale du faisceau est excellente. Un amplificateur régénératif est utilisé comme pré-amplificateur.

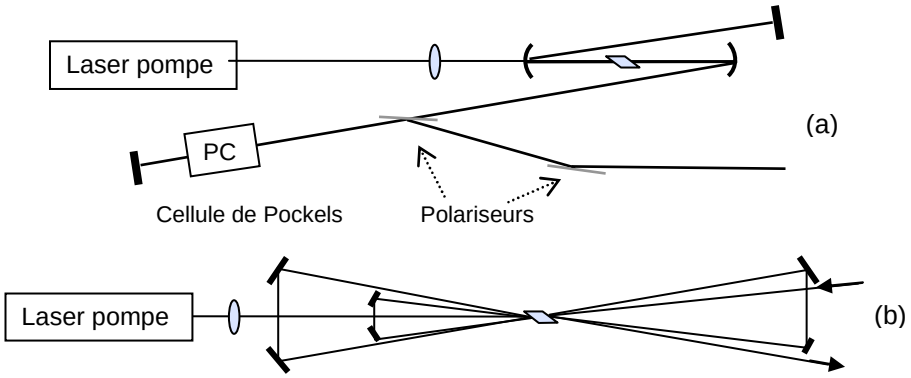

Figure 1.4 : Amplificateur régénératif (a) et amplificateur multipassages (b).

L'amplificateur multi-passages est composé de plusieurs miroirs qui permettent à l'impulsion de passer plusieurs fois par le cristal, au maximum 10 fois pour un pré-amplificateur, 4 ou 5 fois pour un amplificateur de puissance (fig. 1.4(b)). Cet amplificateur nécessite moins de passages et moins d'éléments optiques. Cependant, de grandes précautions doivent être prises pour conserver au faisceau une bonne qualité spatiale.

2. Contraste temporel d'une impulsion femtoseconde

L'ambition actuelle du développement des lasers femtosecondes est l'augmentation de l'intensité crête pour ouvrir des voies nouvelles de recherche dans le domaine des interactions laser-matière. L'un des verrous limitant le développement de telles sources est le problème du contraste temporel de l'impulsion femtoseconde.

2.1. Définition et enjeux

2.1.1. Définition du contraste temporel

Dans les interactions laser-plasma actuelles, l'impulsion femtoseconde de puissance crête plusieurs centaines de térawatt [1.5, 1.8] atteint sur cible des intensités de l'ordre de 10^{21} Wcm^{-2} [1.9], voire 10^{22} Wcm^{-2} [1.10]. Ces intensités étant considérables, il est nécessaire de caractériser et contrôler le profil temporel en intensité des impulsions sur une grande dynamique (10 ou 12 ordres de grandeur). Les défauts de l'allure temporelle sont évalués par comparaison avec une impulsion idéale, qui serait de durée femtoseconde sur une dynamique infinie.

En réalité, lorsque l'on caractérise, sur une échelle de temps de plusieurs dizaines de picosecondes et sur une grande dynamique, le profil temporel d'une impulsion en fin de chaîne, ce profil présente de nombreux défauts par rapport à une impulsion idéale (fig. 1.5).

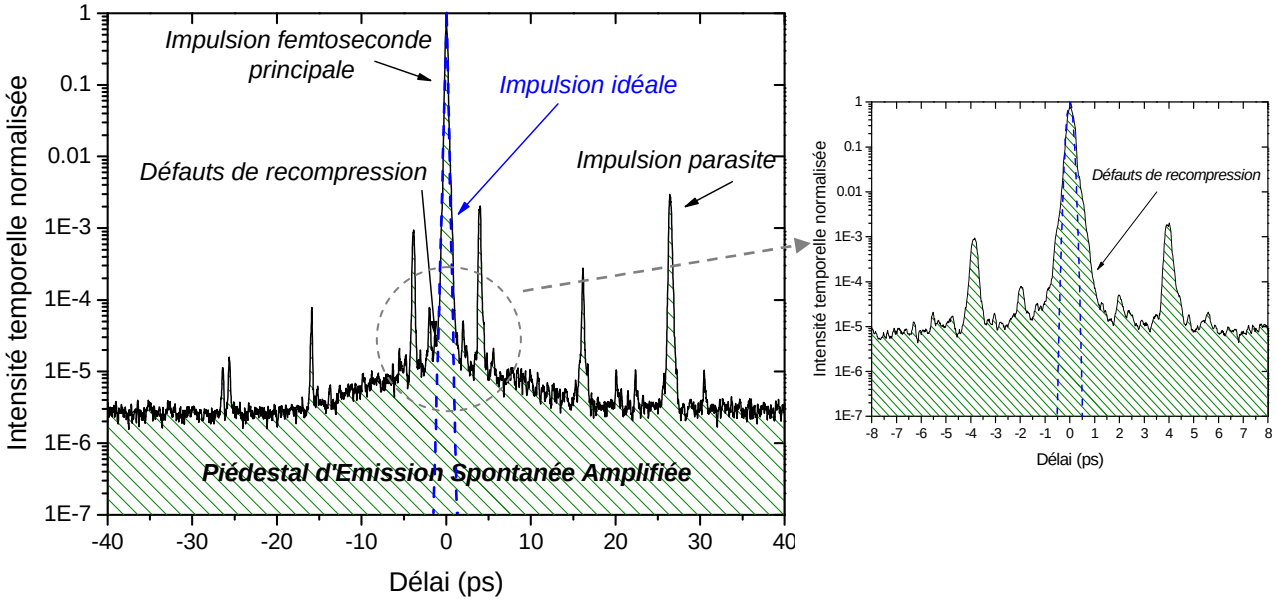

Figure 1.5 : Mesure sur une grande dynamique du profil temporel d'une impulsion femtoseconde après amplification.

L'impulsion femtoseconde est accompagnée d'impulsions parasites, générées tout au long de l'amplification. Ces impulsions satellites, dont l'intensité normalisée par rapport à celle de l'impulsion principale peut atteindre 10^{-3}, résultent notamment du taux d'extinction fini des polariseurs, du mauvais alignement des matériaux biréfringents, etc.….

De plus, la compression temporelle n'étant jamais parfaite, les défauts de phase résiduels d'ordres supérieurs à deux détériorent le front de montée de l'impulsion, dont les flancs sont moins raides, sur une durée de quelques picosecondes autour du pic principal [1.11]. C'est le contraste cohérent.

Enfin, et surtout, l'impulsion est accompagnée d'un piédestal d'émission spontanée amplifiée, de durée nanoseconde, incohérent, généré et amplifié dans la chaîne laser. En effet, dans les amplificateurs, la durée des impulsions de pompe (10 ns) est largement supérieure à celle de l'impulsion à amplifier. La fluorescence émise spontanément par le cristal sous l'effet de la pompe est multidirectionnelle. Toutefois, une partie de cette fluorescence suit dans le cristal le volume de pompe, et parcourt dans la cavité amplificatrice le même trajet que le signal, elle est donc amplifiée. L'ASE (*Amplified Spontaneous Emission*) est la principale source de bruit dans la chaîne laser et atteint classiquement pour un laser classique 100 TW une intensité relative de 10^{-7} par rapport à l'intensité de l'impulsion femtoseconde.

Nous n'abordons pas ici le problème des pré-impulsions présentes quelques nanosecondes avant l'impulsion, qui sont des résidus du train d'impulsions initial de l'oscillateur, de cadence mégahertz. Ces pré-impulsions sont en effet facilement atténuées par l'usage de plusieurs cellules de Pockels.

La notion de contraste temporel incohérent quantifie les défauts de cette impulsion relatifs à l'ASE et/ou aux impulsions satellites. Dans la suite, nous désignerons toujours le terme contraste comme le rapport :

$$C = \frac{I_{femtoseconde}}{I_{ASE}} \qquad (1.11)$$

Ainsi, le contraste de l'impulsion représentée figure 1.5 est de 5 ordres de grandeur pour un délai temporel de ± 8 ps, et environ de 6 ordres de grandeur pour un délai de ± 40 ps.

2.1.2. Le contraste dans la chaîne CPA

Le contraste des impulsions émises par un oscillateur a été mesuré supérieur à 10^{10} (mesure limitée par la détection, fig. 1.6) [1.12, 1.13]. En effet aucune émission spontanée n'est encore amplifiée à ce stade et la très forte non-linéarité (lentille de Kerr) de la cavité empêche l'oscillation

du mode continu. Les impulsions émises par l'oscillateur sont temporellement propres pour un spectre gaussien.

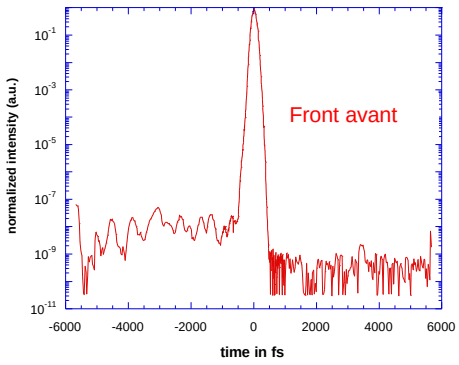

Figure 1.6 : Mesure sur une grande dynamique du profil temporel d'une impulsion femtoseconde en sortie d'oscillateur.

La modélisation de l'amplification de la fluorescence dans la chaîne CPA est un problème complexe, puisqu'il faut tenir compte de ses propriétés temporelles, spectrales et spatiales. Le spectre de l'ASE est différent de celui du laser et évolue avec le gain du milieu [1.14]. Il faut également prendre en compte la géométrie des amplificateurs.

Des modèles théoriques "simplifiés" montrent que l'ASE (*Amplified Spontaneous Emission*) est largement présente dans les amplificateurs à fort gain où le signal injecté est faible [1.15, 1.16]. En particulier, une formule approximative permet d'exprimer le flux d'émission spontanée amplifiée, hors saturation du gain [1.17, 1.18] :

$$I_{ASE} = \frac{J_{sat}}{\tau}\frac{\Omega}{4}\frac{(G_0-1)^{3/2}}{\sqrt{G_0 \ln(G_0)}} \qquad (1.12)$$

J_{sat} est la fluence de saturation du milieu amplificateur, τ la durée de fluorescence ($J_{sat} \approx 1 Jcm^{-2}$ et $\tau \approx 3.2\,\mu s$ pour le Ti :Sa). Ω est l'angle solide d'émission dépendant des dimensions du matériau. $G_0 = \exp(\sigma_e NL)$ correspond au gain petit signal de l'amplificateur (σ_e est la section efficace d'émission, N la densité d'inversion de population, et L la longueur du milieu).

L'émission spontanée amplifiée réduit le gain disponible pour l'amplification de l'impulsion. Une grande partie de la pompe contribue dans ce cas à la construction du piédestal [1.15]. Ce processus est d'autant plus marqué que G_0 est grand. G_0 peut valoir jusqu'à 10 pour un passage dans un pré-amplificateur.

Le pré-amplificateur est donc largement responsable de la génération d'ASE.

En conclusion, les impulsions femtosecondes produites sont toujours accompagnées d'un piédestal d'émission spontanée amplifiée, majoritairement généré dans le premier étage d'amplification de la chaîne laser. Ce piédestal limite le contraste temporel de l'impulsion à environ 7 ordres de grandeur pour un laser multi-dizaines de térawatt. Il est nécessaire de caractériser et de contrôler cette valeur de contraste car elle influence les expériences laser-matière à haut flux associées aux impulsions femtosecondes ultra-intenses.

2.1.3. Enjeux de l'amélioration du contraste

Une grande partie des expériences laser-matière à haute intensité nécessite la focalisation des impulsions femtosecondes sur une cible solide (en général une mince feuille métallique). Sous l'impact du laser, une couche superficielle de la cible est transformée en plasma dense, où l'impulsion est plus ou moins absorbée, conduisant à l'émission de particules et rayonnements très énergétiques. Il est maintenant acquis que la présence de pré-impulsions ultra-courtes et du piédestal d'ASE de durée nanoseconde modifient les conditions d'interactions lors de ces expériences.

Souvent, une pré-impulsion contrôlée en délai et en intensité favorise l'interaction [1.19, 1.20]. Ce n'est plus toujours valide en ce qui concerne l'ASE. Il a été démontré qu'un mauvais contraste dégrade les conditions d'interaction, l'impulsion nanoseconde étant suffisamment intense pour former un pré-plasma qui amincit la cible ou la déforme, et modifie donc les conditions d'absorption de l'impulsion femtoseconde. Celle-ci interagit alors avec un plasma de faible densité [1.21-1.24]. En effet, si l'impulsion est focalisée pour atteindre une intensité de 10^{20} Wcm^{-2}, l'ASE qui la précède possède une intensité de l'ordre de 10^{13} Wcm^{-2}, ce qui est au-dessus du seuil d'ionisation de la cible. De plus, même si l'intensité de cette pré-impulsion de durée nanoseconde est insuffisante pour créer un pré-plasma, elle peut tout de même modifier la qualité de l'interaction (échauffement de la cible, vaporisation…) [1.25, 1.26]. Ces observations dépendent bien sûr de la nature et de l'épaisseur de la cible, de la durée de l'ASE. Mais, bien souvent, l'efficacité des phénomènes observés est diminuée par un mauvais contraste. Citons la production de faisceaux de protons, dont l'énergie est particulièrement affectée par la durée et l'intensité du piédestal [1.27].

Avec la montée en puissance des lasers vers les puissances crêtes type Petawatt il devient donc absolument nécessaire d'améliorer le contraste temporel des impulsions femtosecondes. L'objectif est de pouvoir générer des impulsions ultra-intenses possédant un contraste de 10 à 12 ordres de grandeur.

2.2. Contrat SHARP pour l'amélioration du contraste : mesure et état de l'art

Le contrat programme européen de Recherche et de Développement Technologique SHARP (*Suppression over High dynamic range of Ase at the Rising edge of ultra-intense femtosecond Pulses*, Nov. 2001- Av. 2004, HPRI-CT-2001-50037) a eu pour but de développer des outils de contrôle (corrélateur du troisième ordre) et d'amélioration du contraste. Ce contrat, coordonné par le LOA et qui englobe un grand nombre de laboratoires, a permis l'investigation théorique et expérimentale de différentes solutions telles que le nettoyage par absorbant saturable, les interféromètres non linéaires, la génération de seconde harmonique, l'amplification paramétrique optique, les miroirs à plasma et les amplificateurs à excimer injectés. Avant d'expliciter quelques-unes de ces solutions, ce paragraphe présente l'instrument de mesure du contraste sur une grande dynamique : le corrélateur du troisième ordre.

2.2.1. Mesure du profil temporel : corrélateur du troisième ordre grande dynamique

Pour mesurer le profil temporel sur une grande dynamique d'une impulsion, on emploie un corrélateur du troisième ordre, dont le schéma de principe est représenté figure 1.7 [1.28]. Le laser traverse d'abord un atténuateur variable, indispensable pour obtenir une grande dynamique de mesure. Une partie du faisceau est prélevée pour une photodiode de référence, puis le laser est séparé en deux voies. Sur l'une d'elles, le faisceau (ω) est doublé en fréquences (2ω), tandis que sur l'autre bras, le laser toujours à ω passe par une ligne à retard motorisée. Un second cristal réalise enfin la corrélation des signaux ω et 2ω. Le signal 3ω ainsi généré est séparé des autres par des prismes avant d'être analysé par un photomultiplicateur.

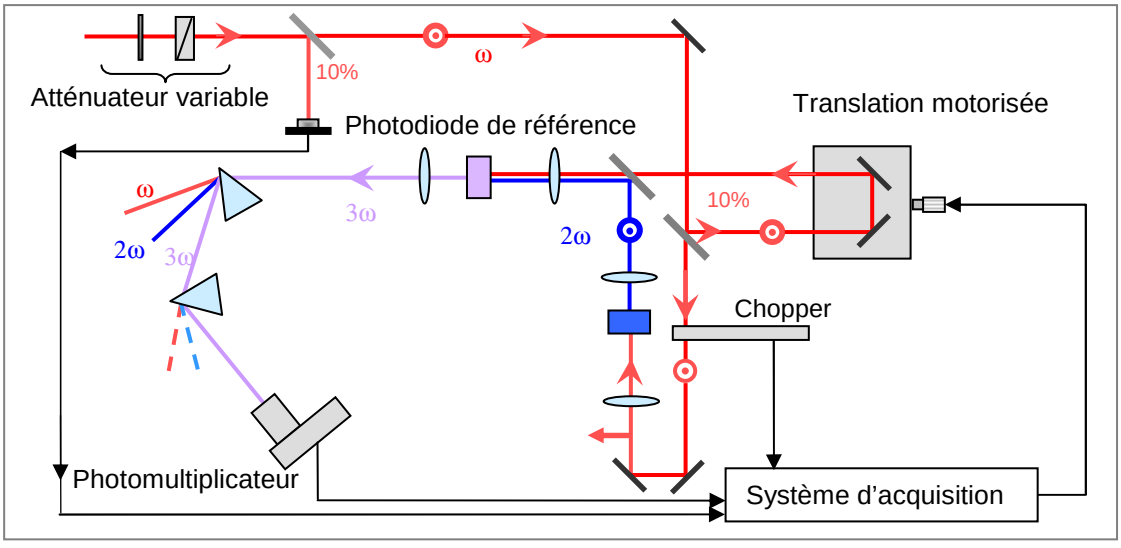

Figure 1.7 : Schéma de principe d'un corrélateur grande dynamique

Le système d'acquisition normalise le signal mesuré par le photomultiplicateur par la tension de référence pour s'affranchir des fluctuations du laser. La réponse globale de l'appareil s'écrit donc : $f(\tau)=\frac{V_{PM}}{V_{ref}^3}$, τ étant le délai imposé par la ligne à retard pour la corrélation.

La limite de dynamique de mesure est donnée par la plage de linéarité de la réponse de la photodiode et du photomultiplicateur, classiquement entre 10 mV et 10 V.
Lorsque $\tau=0$, le signal de corrélation est maximal (V_{PM} max) alors que l'atténuation du signal d'entrée est maximale (V_{ref} min). Alors $f(\tau)=f(\tau)_{\max}=10^{7}V^{-2}$.
Lorsque τ est grand, il n'y a pas d'atténuation et le signal de corrélation est minimal. Alors $f(\tau)=f(\tau)_{\min}=10^{-5}V^{-2}$.
La dynamique totale de mesure est donc $\frac{f(\tau)_{\max}}{f(\tau)_{\min}}=10^{12}$, soit 12 ordres de grandeur.

Le laboratoire (LOA) s'est doté d'un tel appareil, très performant, avec une dynamique de mesure entre 11 et 12 ordres de grandeur, sur une plage de 400 ps, adapté pour les impulsions d'énergie environ 1 mJ et pour les oscillateurs [1.28, 1.29].

A titre illustratif, citons une autre méthode de corrélation grande dynamique basée sur l'amplification paramétrique optique, développée dans [1.30].

2.2.2. Quelques solutions pour l'amélioration du contraste

Des techniques pour améliorer le contraste temporel sont proposées depuis de nombreuses années. Le contrat SHARP a permis de synthétiser quelques-unes de ces méthodes et d'investiguer d'autres stratégies. La liste des solutions proposées ci-dessous est non exhaustive.

Afin de trouver la solution la plus pertinente pour l'amélioration du contraste, il faut imaginer agir en plusieurs points de la chaîne CPA.

- *Oscillateur haute énergie*

Nous avons vu que le premier élément de la chaîne CPA, l'oscillateur, émet des impulsions propres, avec une énergie de quelques nanojoules. Des impulsions plus énergétiques dès la sortie de l'oscillateur, par exemple une centaine de nanojoules, permettraient de réduire le gain du premier étage d'amplification, et donc de diminuer de un ou deux ordres de grandeur le fond d'ASE.

♦ Oscillateur à extraction d'impulsions

L'impulsion fournie par un oscillateur classique est la fuite de l'impulsion intra-cavité à travers le coupleur de sortie. Celle qui oscille dans la cavité est environ cent fois plus énergétique.

Pour augmenter l'énergie des impulsions émises, un moyen consiste à extraire, à une cadence fixée, de quelques kilohertz, presque toute l'énergie contenue dans la cavité.

L'extraction peut se faire de manière acousto-optique [1.40, 1.41]. Au laboratoire, nous avons réalisé un oscillateur à extraction électro-optique par cellule de Pockels, basé sur le modèle proposé par Gibson *et al.* [1.42].

Il s'agit d'une cavité classique longue (L ≈ 3,40 m), représentée figure 1.8.

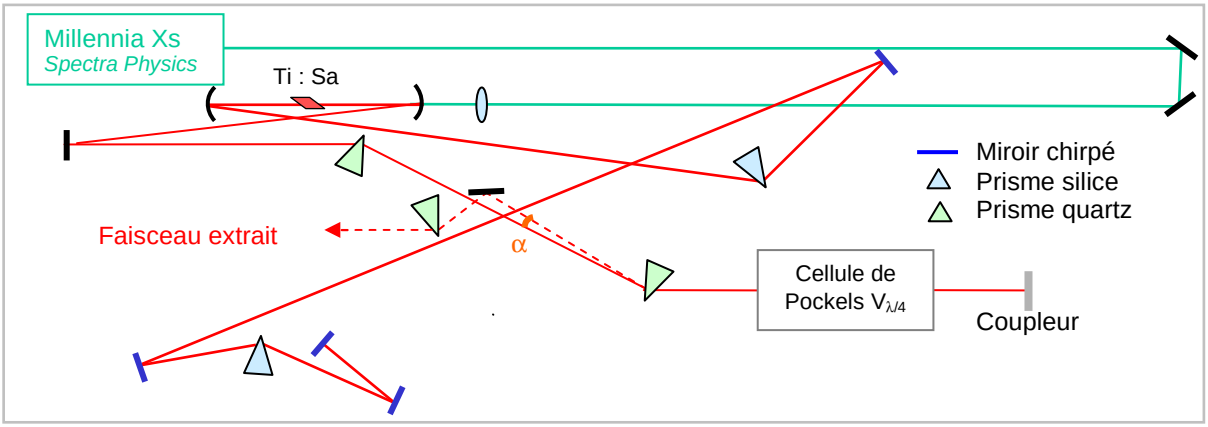

Figure 1.8 : Schéma de l'oscillateur à extraction électro-optique

Les miroirs de la sous-cavité ont un rayon de courbure de 200 mm. Le coupleur de sortie transmet 1,2 % de l'énergie intra-cavité. La cellule de Pockels est un cristal de KD*P de 19 mm de long. Nous avons enlevé les hublots de silice de cette cellule qui empêchaient le blocage de modes. Un des premiers problèmes est la compensation de la dispersion de vitesse de groupe. Il faut compenser le cristal de Ti :Sa de 0.49 cm et le cristal de KD*P. Nous utilisons pour cela une ligne à prismes en silice (les prismes sont espacés de 103 cm) et quatre miroirs chirpés compensant chacun une phase de -70 fs^2 par réflexion. Le système d'extraction est composé d'une cellule de Pockels et d'une paire de prismes en quartz biréfringents, espacés de 32 cm pour n'introduire aucune dispersion supplémentaire. L'impulsion polarisée « p » oscille dans la cavité. Au moment de l'extraction, la cellule est actionnée à V$_{\lambda/4}$, la polarisation de l'impulsion devient donc « s » après double passage dans la cellule. L'extraction se fait ainsi par transmission sur le deuxième prisme en quartz. Un troisième prisme en quartz extra-cavité recollimate le faisceau.

Un oscilloscope permet d'enregistrer le peigne d'impulsions de la cavité avant et après extraction de l'impulsion (fig. 1.9).

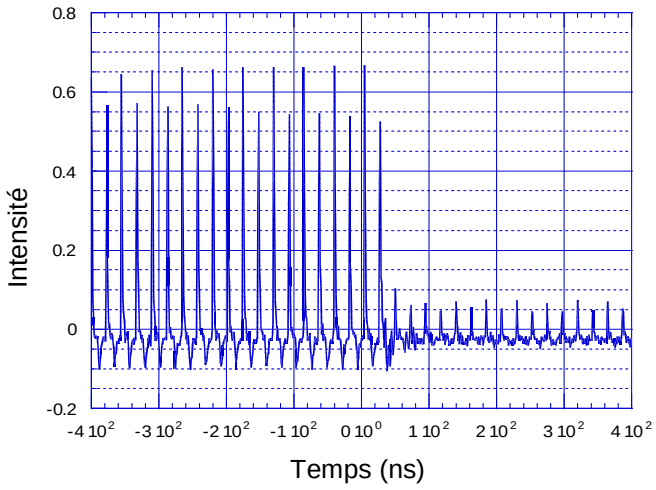

Figure 1.9 : Peigne d'impulsions mesuré à l'oscilloscope et extraction.

Nous avons extrait de cet oscillateur des impulsions de 120 nJ avec un spectre de 20 nm. Pour obtenir des spectres plus larges (50 nm, fig. 1.10), il est nécessaire d'extraire moins d'énergie, soit 60 nJ.

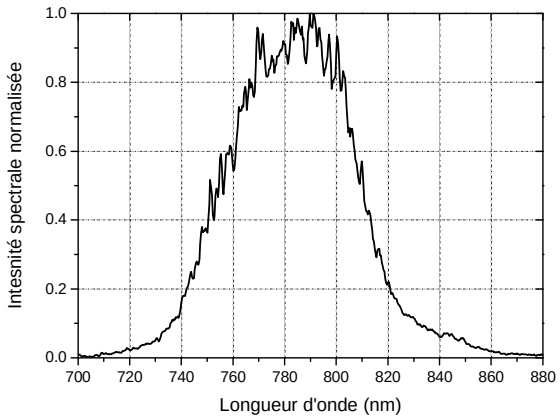

Figure 1.10 : Spectre de l'impulsion extraite avec une énergie de 60 nJ (largeur à mi-hauteur : 50 nm, longueur d'onde centrale 790 nm).

D'une manière générale, cet oscillateur est très instable (variations au jour le jour des performances, réalignement quotidien nécessaire). L'une des causes d'instabilité est la longueur de la cavité. De plus, l'angle entre le faisceau extrait et le faisceau intra-cavité est très faible (α=1°), le miroir de récupération frôle le faisceau oscillant, ce qui est source de perturbations.

Pour améliorer les performances, il faudrait remplacer la cellule de Pockels par une micro-cellule plus courte. La dispersion pourrait alors être compensée uniquement par des miroirs chirpés. Dans le but d'améliorer la stabilité, il faudrait également remplacer le système d'extraction par un polariseur par réflexion très mince.

♦ Autres oscillateurs haute énergie

Une solution proposée dans la littérature pour s'affranchir des problèmes technologiques liés à l'extraction est d'augmenter directement l'énergie intra-cavité en diminuant la cadence de répétition. Cela repose sur la mise au point de cavités très longues, plusieurs dizaines de mètres, grâce à des systèmes télescopiques. Dans ce cas, l'intensité crête atteint des valeurs élevées qui nuisent à la stabilité du blocage de modes. Ce problème est en partie résolu par l'introduction de dispersion (miroirs chirpés) pour allonger la durée de l'impulsion dans la cavité. Le cas d'une dispersion négative a été traité, entre autres, par Kowalevicz *et al.*, qui rapportent la production d'impulsions de 150 nJ, 43 fs à 5.8 MHz [1.43]. Le spectre de l'oscillateur reste gaussien mais relativement étroit (17 nm à mi-hauteur). Il est également envisageable d'ajouter une dispersion positive pour augmenter la durée de l'impulsion jusqu'à la picoseconde. La compression se fait alors de manière externe, par une ligne à prismes hors de la cavité, et permet d'obtenir des impulsions de 130 nJ, 26 fs ou 220 nJ, 30 fs à 11 MHz [1.44]. L'inconvénient du blocage de modes en régime de dispersion positive est spectral : le spectre, bien que large, n'est plus gaussien mais carré, ce qui peut dégrader le profil temporel de l'impulsion (rebonds).

▪ *Filtrage temporel*

Un moyen de « simuler » un oscillateur énergétique est d'amplifier directement l'impulsion issue de l'oscillateur en régime femtoseconde pour la filtrer temporellement avec un absorbant saturable, transparent aux hautes intensités [1.45].

Il est ensuite possible d'injecter cette impulsion "propre" dans la chaîne CPA (fig. 1.11).

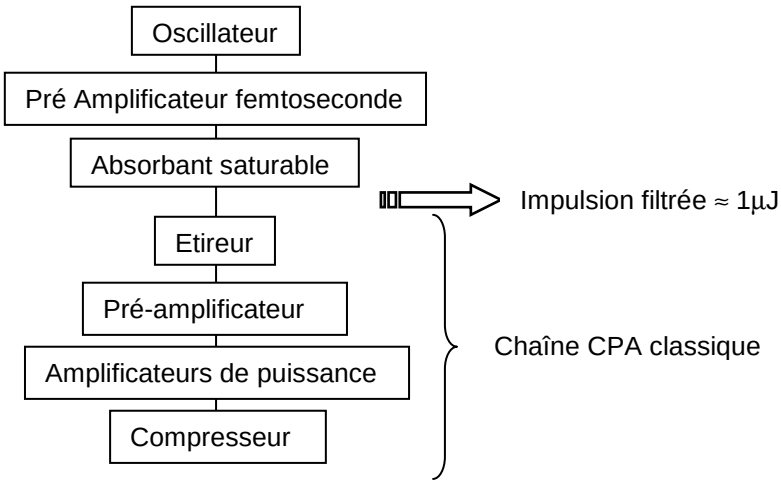

Figure 1.11 : Schéma d'un système CPA incluant un pré-amplificateur femtoseconde et un absorbant saturable

L'amplification en régime femtoseconde peut conduire à des effets non linéaires gênants dans le cristal amplificateur. L'énergie de l'impulsion en sortie d'un tel pré-amplificateur est donc limitée à quelques microjoules. L'impulsion injectée dans le CPA a ainsi au mieux une énergie d'environ 1 μJ, ce qui nécessite un nouveau pré-amplificateur, susceptible de générer de nouveau de l'ASE.

Cette technique permet de gagner deux ordres de grandeur sur le contraste final. Mais elle présente quelques inconvénients : un absorbant saturable ne permet pas une amélioration du contraste meilleure que deux ordres de grandeur et peut introduire des modulations spectrales. De plus, une utilisation haute cadence (kHz) cause le vieillissement prématuré de l'absorbant saturable.

Inclure un filtrage temporel de l'impulsion dans la chaîne amplificatrice est une idée séduisante. Il doit toutefois idéalement intervenir après pré-amplification classique (au niveau millijoule), pour pouvoir injecter l'impulsion propre dans les amplificateurs de puissance, à gain modéré, n'introduisant que peu d'ASE.

Il est par exemple envisageable d'utiliser une cellule de Pockels à commutation rapide pour nettoyer le front avant de l'impulsion. Les systèmes commerciaux disponibles (Kentec, FID) proposent des temps de commutation de l'ordre 150 ps – 200 ps, l'ASE n'est donc pas supprimée sur cet intervalle de temps. Des cellules déclenchées par photoconducteurs et présentant un temps de commutation de l'ordre de 20 ps ont été développées par la société Fastlite dans le cadre de SHARP, mais n'existent pour l'instant qu'à l'état de prototypes [1.46].

- *Filtrage temporel non linéaire*

Une autre solution pour filtrer temporellement l'impulsion est d'utiliser un effet non linéaire qui exploite la différence d'intensité entre l'impulsion principale femtoseconde et le fond d'ASE, nanoseconde, bien moins intense. La contrainte d'un tel filtre, qui trouve naturellement sa place après pré-amplification au niveau millijoule, est que l'impulsion doit être comprimée avant l'interaction non linéaire. Si on souhaite ensuite ré-amplifier l'impulsion filtrée pour atteindre des énergies de l'ordre de la centaine de millijoules ou du joule, il faut injecter celle-ci dans une deuxième chaîne CPA (fig. 1.12).

Le premier double CPA expérimental a été réalisé par Kalashnikov *et al* [1.47]. Le filtre non linéaire de ce montage repose sur la rotation de polarisation elliptique dans l'air, principe que j'aurai l'occasion de détailler dans le troisième chapitre de ce manuscrit.

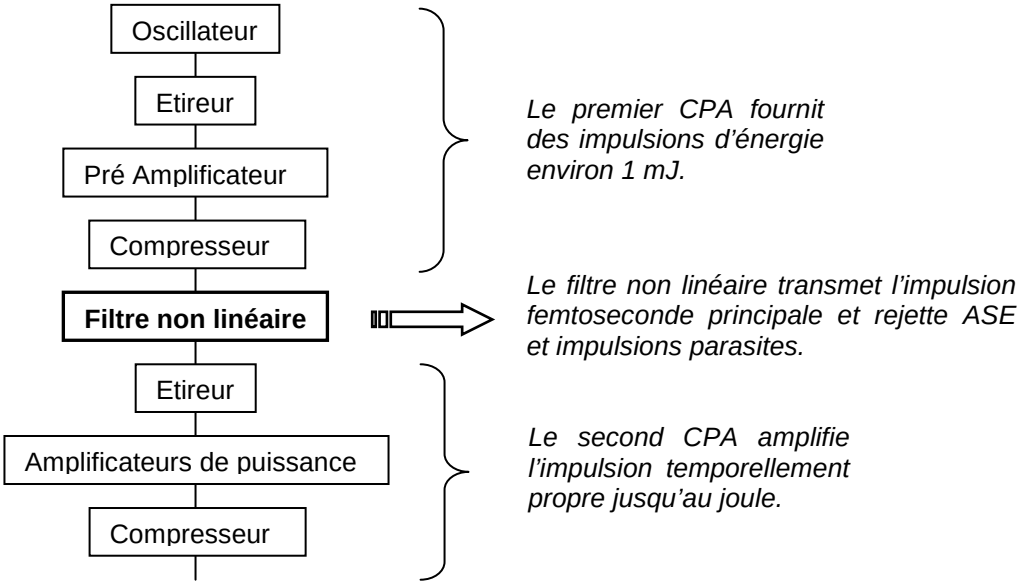

Figure 1.12 : Schéma de principe d'un double CPA incluant un filtre non linéaire

Un filtre non linéaire est caractérisé par une dépendance de l'intensité de l'onde transmise par rapport à l'intensité incidente du type $I_{out} = f\left(I_{in}^{n}\right)$, avec $n \geq 2$, qui autorise l'amélioration efficace du contraste. En effet, considérons par exemple un effet non linéaire du deuxième ordre ($n = 2$) et une impulsion initiale présentant un niveau d'ASE d'intensité relative 10^{-6}. L'intensité de l'impulsion qui subit l'interaction est élevée au carré, le piédestal d'ASE peut donc être rejeté à une intensité relative de 10^{-12}. L'amélioration du contraste est potentiellement importante.

En outre, le filtre doit permettre une discrimination entre l'onde incidente et l'onde transmise en introduisant une, ou plusieurs, modification significative de l'impulsion pendant l'interaction. Ces modifications peuvent, par exemple, porter sur la polarisation, la phase, la direction de propagation, la longueur d'onde…

Un tel filtre doit également posséder une efficacité de transmission suffisante pour injecter l'impulsion nettoyée dans un amplificateur à gain modéré. Enfin, les caractéristiques spatiales et spectrales de l'impulsion doivent au moins être préservées.

Le premier filtre développé dans ce sens au laboratoire dans le cadre de SHARP est basé sur un interféromètre de Sagnac, étude réalisée en collaboration avec P. d'Oliveira et T. Auguste du CEA-DRECAM [1.48]. L'interféromètre comprend un matériau non linéaire qui introduit une différence de phase entre la partie intense et la partie moins intense de l'impulsion. La transmission du filtre

est de 15%. Outre l'encombrement de l'interféromètre, l'inconvénient majeur de ce filtre est la mauvaise qualité spatiale du faisceau filtré.

Nous avons étudié en détail d'autres filtres, basés sur des effets non linéaires du troisième ordre influant sur la polarisation de l'impulsion. Ils constituent l'objet de cette thèse.

- *Miroirs plasma*

Enfin, il est concevable d'agir sur le contraste en fin de chaîne, c'est à dire sur l'impulsion ultra-intense. La transmission doit dans ce cas être supérieure à 50%, pour éviter des pertes colossales d'énergie. Dans le cadre de SHARP, une solution a été tentée dans ce sens, par le groupe LOA-LULI-CEA, avec des miroirs plasma auto-induits.

Le principe est le suivant : le laser est focalisé sous vide sur une surface diélectrique, en fait un substrat de silice classique. Cette surface a une basse réflectivité, l'ASE et les pré-impulsions sont donc dans un premier temps largement transmises. L'intensité sur la cible augmente au fur et à mesure, génère un plasma en excitant les électrons du milieu diélectrique et confère ainsi au miroir un caractère métallique. Au-delà d'une certaine densité critique d'électrons, le diélectrique se comporte comme un miroir et le laser est réfléchi.

Les résultats expérimentaux sont bons. Deux miroirs plasma successifs ont conduit à une amélioration du contraste de 4 ordres de grandeur, avec une efficacité de 50% [1.49, 1.50]. L'inconvénient reste la complexité et l'encombrement du système, ainsi que la nécessité de déplacer régulièrement la cible, détruite à chaque tir laser.

3. Conclusion

La notion de contraste quantifie les défauts du profil temporel d'une impulsion ultra-brève sur une échelle de temps de plusieurs dizaines de picosecondes et sur une grande dynamique (> 10 ordres de grandeur). Plus précisément, le contraste désigne le rapport en intensité entre l'impulsion femtoseconde et le piédestal d'émission spontanée amplifiée, de durée plusieurs nanosecondes.

Il est désormais nécessaire d'atteindre un contraste de 10 à 12 ordres de grandeur pour les lasers multi-dizaines ou multi-centaines de Térawatt. Cela correspond, par rapport aux performances actuelles, à une amélioration d'au moins 4 ordres de grandeur.

Plusieurs solutions sont envisageables et en cours de développement.

L'une d'elles est particulièrement prometteuse et efficace. Elle consiste à filtrer temporellement l'impulsion après pré-amplification, étape pendant laquelle l'émission spontanée amplifiée est majoritairement générée. Les travaux présentés dans ce manuscrit se sont attachés à concevoir un tel filtre, reposant sur un effet d'optique non linéaire. Ce filtre doit impérativement satisfaire plusieurs critères.

L'amélioration du contraste apportée par le système sera bien sûr de plusieurs ordres de grandeur.

Le filtre doit être adaptable à divers niveaux d'énergie, notamment au millijoule, niveau d'énergie typique de l'impulsion après pré-amplification.

L'efficacité de transmission en énergie doit être suffisante ($\geq$ 10%) pour pouvoir injecter l'impulsion filtrée dans des amplificateurs de puissance, à gain modéré, qui préservent le contraste gagné par le filtre.

Un point primordial réside dans la préservation de la qualité spatiale et des propriétés spectrales du faisceau lors du filtrage.

Ce système doit présenter les mêmes performances sur différentes chaînes laser (adaptabilité en longueur d'onde et en durée d'impulsions).

Enfin, il est nécessaire que le fonctionnement du filtre soit assez souple et robuste pour permettre une utilisation routinière qui s'accommode des fluctuations quotidiennes du laser.

Je présente dans cette thèse l'étude de plusieurs effets non linéaires du troisième ordre et leur application éventuelle au filtrage temporel pour l'amélioration du contraste, au regard des critères énumérés ci-dessus. Nous exploitons les modifications de la polarisation subies par l'impulsion lors de ces processus non linéaires. Ces modifications, dépendant de l'intensité de l'onde incidente, vont permettre de séparer l'impulsion principale femtoseconde du piédestal d'ASE.

Le chapitre suivant expose quelques notions d'optique non linéaire du troisième ordre.

BIBLIOGRAPHIE :

[1.1] R. Ell, U. Morgner, F. X. Kartner, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. SCheuer, G. Angelow, T. Tschudi, M. J. Lederer, A. Boiko and B. Luther-Davies (2001) *"Generation of 5-fs pulses and octave spanning spectra directly from a Ti:Sapphire laser"*, Optics Letters 26, 373-375.

[1.2] C. P. Hauri, W. Kornalis, F. W. Helbing, A. Heinrich, A. Couairon, A. Mysyrowicz, J. Biegert and U. Keller (2004) *"Generation of intense, carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation"*, Applied Physics B Lasers and Optics 79, 673-677.

[1.3] T. M. Fortier, D. J. Jones and S. T. Cundiff (2003) *"Phase stabilization of an octave-spanning Ti:sapphire laser"*, Optics Letters 28, 2198-2200.

[1.4] G. Chériaux, P. Rousseau, F. Salin and J. P. Chambaret (1996) *"Aberration-free stretcher design for ultrashort pulse amplification"*, Optics Letters 21, 414-416.

[1.5] M. Pittman, S. Ferré, J. P. Rousseau, L. Notebaert, J. P. Chambaret and G. Chériaux (2002) *"Design and characterization of a near diffraction limited femtosecond 100 TW, 10 Hz, high-intensity laser system"*, Applied Physics B Lasers and Optics 74, 529-535.

[1.6] D. Strickland and G. Mourou (1985) *"Compression of amplified chirped optical pulses"*, Optics Communications 56, 219-221.

[1.7] D. Spence, P. Kean and W. Sibbet (1991) *"60 fs pulse generation from a self-mode locked Ti:Sapphire laser*", Optics Letters 16, 42-44.

[1.8] M. Aoyama, K. Yamakawa, Y. Akahane, J. Ma, N. Inoue, H. Ueda and H. Kiriyama (2003) *"0.85 PW, 33 fs Ti:sapphire laser"*, Optics Letters 28, 1594-1596.

[1.9] J. D. Bonlie, F. Patterson, D. Price, B. White and P. Springer (2000) *"Production of > 10^{21} Wcm^{-2} from a large aperture Ti:sapphire laser system"*, Applied Physics B Lasers and Optics 70, S155-S160.

[1.10] S. W. Bahk, P. Rousseau, T. A. Planchon, V. Chvykov, G. Kalintchenko, A. Maksimchuk, G. A. Mourou and V. Yanovsky (2004) *"Generation and characterization of the highest laser intensities (10^{22} Wcm^{-2})"*, Optics Letters 29, 2837-2839.

[1.11] V. Bagnoud and F. Salin (1998) "*Global optimization of pulse compression in chirped pulse amplification"*, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics 4, 445-448.

[1.12] G. Chériaux, T. Planchon, F. Auge, G. Mourou and J. P. Chambaret (2001) "*High dynamic range temporal characterization of femtosecond Ti:Sapphire oscillators*.", Proceedings of Ultrafast Optics (Springer-Verlag, Heidelberg), p. 16.

[1.13] S. Ferré (2002) " *Caractérisation expérimentale et simulation des effets thermiques d'une chaîne laser ultra-intense à base de saphir dopé au titane"*, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique.

[1.14] R. Tommasini and J. E. Balmer (1999) *"Amplified spontaneous emission and maximum gain-length product revised for general line shapes'*, Journal of Optical Society of America B 16, 538-545.

[1.15] J. C. Diels and W. Rudolph (1996) *"Ultrashort laser-pulse phenomena"*, Academic Press, p. 321.

[1.16] P. A. Schulz, K. F. Wall and R. L. Aggarwall (1999) "*Simple model for amplified spontaneous emission in a Ti:Al_2O_3 amplifier"*, Optics Letters 13, 1081-1083.

[1.17] G. J. Linford, E. R. Peressini, W. R. Sooy and M. L. Spaeth (1974) *"Very long lasers"*, Applied Optics 13, 379-390.

[1.18] O. Svelto, S. Taccheo and C. Svelto (1999) *"Analysis of amplified spontaneous emission : some corrections to the Linford formula"*, Optics Communications 149, 277-282.

[1.19] S. Bastiani, A. Rousse, J. P. Geindre, P. Audebert, C. Quoix, G. Hamoniaux, A. Antonetti and J. C. Gauthier (1997) "*Experimental study of the interaction of subpicosecond laser pulses with solid targets of varying initial scale lengths"*, Physical Review E 56, 7179-7185.

[1.20] Th. Schlegel, S. Bastiani, L. Gremillet, J. P. Geindre, P. Audebert, J. C. Gauthier, E. Lefebvre, G. Bonnaud and J. Delettrez (1997) "*Comparison of measured and calculated x-ray and hot-electron production in short-pulse laser-solid interactions at moderate intensities*", Physical Review E 60, 2209-2217.

[1.21] J. C. Kieffer, P. Audebert, M. Chaker, J. P. Matte, H. Pépin, T. W. Johnston, P. Maine, D. Meyerhofer, J. Delettrez, D. Strickland, P. Bado and G. Mourou (1989) *"Short-pulse laser absorption in very steep plasma density gradients"*, Physical Review Letters 62, 760-763.

[1.22] J. Whorkman, A. Makshimchik, X. Liu, U. Ellenberger, J. S. Coe, C. Y. Chien and D. Umstadter (1996) *"Picosecond soft-x-ray source from subpicosecond laser-produced plasmas"*, Journal of Optical Society of America B 13, 125-131.

[1.23] M. Nantel, J. Itatani, A. C. Tien, J. Faure, D. Kaplan, M. Bouvier, T. Buma, P. Van Rompay, J. Nees, P. P. Pronko, D. Umstadter and G. Mourou (1998) *"Temporal contrast in Ti:Sapphire lasers : characterization and control"*, IEEE Journal of Selected topics in quantum electronics 4, 449-458.

[1.24] I. Watts, M. Zepf, E. L. Clark, M. Tatarakis, K. Krushelnick, A. E. Dangor, R. Allott, R. J. Clarke, D. Neely and P. A. Norreys (2002) *"Measurements of relativistic self-phase-modulation in plasma"*, Physical Review E 66, 036409.

[1.25] K. B. Wharton, C. D. Boley, A. M. Komashko, A. M. Rubenchik, J. Zweiback, J. Crane, G. Hays, T. E. Cowan and T. Ditmire (2001) *"Effects of nonionizing prepulses in high-intensity laser-solid intercations"*, Physical Review E 64, 025401(R).

[1.26] K. B. Wharton, J. M. Kim and B. C. Stuart (2005) *"Effects of nanosecond duration laser prepulses on solid targets"*, Journal of Applied Physics 97, 103303.

[1.27] M. Kaluza, J. Schreiber, J. J. Honrubia, M. I. K. Santala, G. D. Tsakiris, K. Eidmann, J. Meyer-ter-Vehn and K. J. Witte (2004) *"Influence of the Laser Prepulse on Proton Acceleration in Thin-Foil Experiments"*, 31st Conference on Plasma Physics, Londres, ECA 28G, O-2.28.

[1.28] G. Chériaux, M. Pittman, G. Hamoniaux and J. P. Chambaret (16-17 Janvier 2003) *"High dynamic measurement tools"*, 3ème meeting SHARP, CLRC, Rutherford.

[1.29] M. Do Nascimento (2002) *"Participation à la réalisation d'un corrélateur grande dynamique (3ω) destiné à mesurer le contraste temporel d'une impulsion laser femtoseconde intense"*, rapport de stage IUT d'Orsay, Mesures Physiques.

[1.30] E. J. Divall and I. N. Ross (2004) *"High dynamic range contrast measurements by use of an optical parametric correlator"*, Optics Letters 29, 2273-2275.

[1.40] M. Ramaswany, M. Ulman, J. Paye and J.G. Fujimoto (1993) *"Cavity-dumped femtosecond Kerr-lens mode-locked Ti:Al_2O_3 laser"*, Optics Letters 18, 1822-1824.

[1.41] M. S. Pshenichnikov, W. P. de Boeij and D. A. Wiersma (1994) *"Generation f 13-fs, 5-MW pulses from a cavity-dumped Ti:sapphire laser"*, Optics Letters 19, 572-574.

[1.42] G. N. Gibson, R. Klank, F. Gibson and B. E. Bouma (1996) *"Electro-optically cavity-dumped ultrashort-pulse Ti:sapphire oscillator"*, Optics Letters 21, 1055-1057.

[1.43] A. M. Kowalevicz, A. Tucay Zare, F. X. Kartner, J. G. Fujimoto, S. Dewald, U. Morgner, V. Scheuer and G. Angelow (2003) *"Generation of 150 nJ pulses from a multiple-pass cavity Kerr-lens mode-locked Ti:Al2O3 oscillator"*, Optics Letters 28, 1597-1599.

[1.44] A. Fernandez, T. Fuji, A. Poppe, A. Furbach, F. Krausz and A. Apolonski (2004) *"Chirped-pulse oscillators: a route to high-power femtosecond pulses without external amplification"*, Optics Letters 29, 1366-1368.

[1.45] J. Itatani, J. Faure, M. Nantel, G. Mourou and S. Watanabe (1998) *"Suppression of the amplified spontaneous emssion in chirped pulse amplification lasers by clean high-energy seed-pulse injection"*, Optics Communications 148, 70-74.

[1.46] Th. Oksenhender (23-24 Avril 2004), last SHARP meeting, MBI, Berlin.

[1.47] M. P. Kalashnikov, E. Risse, H. Schönnagel and W. Sandner (2005) *"Double CPA : a way to temporally clean pulses ?"*, Optics Letters 30, 923-925.

[1.48] A. Renault, F. Augé-Rochereau, T. Planchon, P. d'Oliveira, T. Auguste, G. Chériaux and J. P. Chambaret (2005) *"ASE contrast improvement with a nonlinear filtering Sagnac interferometer"*, Optics Communications 248, 535-541.

[1.49] G. Doumy, F. Quéré, O. Gobert, M. Perdrix, P. Martin, P. Audebert, J. C. Gauthier, J. P. Geindre and T. Wittmann (2004) *"Complete characterization of a plasma mirror for the production of high contrast ultra-intense laser pulses"*, Physical Review E 69, 026402.

[1.50] P. Monot, G. Doumy, S. Dobosz, M. Perdrix, P. d'Oliveira, F. Quéré, F. Réau and P. Martin (2004) *"High-order harmonic generation by nonlinear reflection of an intense high-contrast laser pulse on a plasma"*, Optics Letters 29, 893-895.

Chapitre 2

Non-linéarités d’ordre trois

Chapitre 2
Non-linéarités d'ordre trois

1. Modifications de la polarisation dans un milieu non linéaire 35
1.1. Hypothèses 35
1.2. Modifications de la polarisation dans un milieu isotrope 36
1.3. Modifications de la polarisation dans un milieu cristallin anisotrope 38

2. Automodulation de phase et autofocalisation 44
2.1. Automodulation de phase 44
2.2. Autofocalisation 45

Bibliographie 47

En raison de leur intensité crête élevée, les impulsions brèves sont souvent associées à des effets non linéaires importants, liés à la réponse du milieu dans lequel l'onde se propage. Ces phénomènes sont la conséquence des modifications des propriétés optiques du milieu sous l'action du champ lumineux intense. Nous nous intéressons uniquement à la susceptibilité non linéaire d'ordre trois, désignée par un tenseur complexe, noté $\chi^{(3)}$. Les phénomènes associés sont connus sous le nom d'effet Kerr optique.

Dans la première partie de ce chapitre, nous détaillons les propriétés du tenseur $\chi^{(3)}$ et établissons l'expression de la polarisation non linéaire. Ceci permet de développer un modèle théorique pour décrire les modifications de la polarisation d'une onde se propageant dans divers milieux non linéaires. Il s'agit de phénomènes d'ordre trois, dépendant de l'intensité de l'onde incidente. En première approximation, l'intensité résultante présente une dépendance cubique par rapport à l'onde initiale. L'intérêt potentiel pour l'amélioration du contraste temporel est évident. Les effets présentés constituent la base des filtres non linéaires étudiés dans la suite de ce manuscrit.

Dans la seconde partie, je présente brièvement quelques conséquences supplémentaires de la susceptibilité non linéaire sur les propriétés spectrales et spatiales de l'impulsion. Ces effets, fréquemment observés, sont l'automodulation de phase et l'autofocalisation.

1. Modifications de la polarisation dans un milieu non linéaire

Dans les chapitres suivants, nous allons étudier alternativement les modifications subies par la polarisation d'une onde se propageant dans des milieux dont la susceptibilité non linéaire d'ordre trois est isotrope ou anisotrope, dans le cas d'une polarisation initiale linéaire ou elliptique.
Ce paragraphe établit un modèle théorique complet, valable pour chacun de ces cas.

1.1. Hypothèses

Nous négligerons toujours dans les phénomènes non linéaires considérés l'absorption à deux photons, seule la partie réelle du tenseur $\chi^{(3)}$ est prise en compte. Enfin, seuls des phénomènes électroniques non résonnants, c'est-à-dire à réponse instantanée, sont considérés. Nous traitons le cas de milieux naturellement non biréfringents.

Le champ électromagnétique vectoriel incident monochromatique s'écrit :

$$\tilde{\boldsymbol{E}}(t) = \boldsymbol{E}(\omega)\cos(\omega t) \qquad (2.1)$$

Les unités employées sont celles du système MKS. Le champ électromagnétique est donc exprimé en Vm^{-1}, l'intensité I associée en Wm^{-2} :

$$I = \frac{c\varepsilon_0 n_0}{2}|E|^2 \text{, avec } \varepsilon_0 = 8.85\times10^{-12}\,Fm^{-1}. \qquad (2.2)$$

Le champ $\boldsymbol{E}$ est décrit par ses composantes orthogonales A et B dans un repère *(abz)* (fig. 2.1).

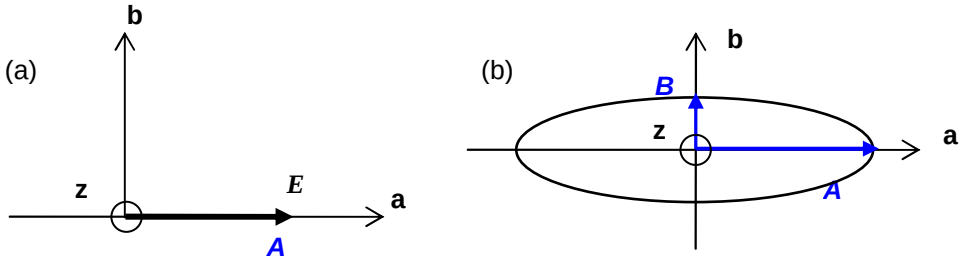

Figure 2.1 : Repère (abz) dans le cas d'un champ incident polarisé linéairement (a) ou elliptiquement (b).

Nous voulons connaître l'évolution des champs A et B lors de la propagation dans le milieu non linéaire. Les calculs suivants sont effectués pour des ondes planes, dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable.

1.2. Modifications de la polarisation dans un milieu isotrope

Le tenseur $\chi^{(3)}$ comprend 81 termes. Pour les matériaux à haut niveau de symétrie, la plupart de ces termes sont nuls. Si nous considérons un milieu isotrope caractérisé par un repère *(xyz)*, les relations suivantes entre les termes non nuls du tenseur $\chi^{(3)}$ sont vérifiées [2.1] :

$$\chi^{(3)}_{xxxx} = \chi^{(3)}_{yyyy} = \chi^{(3)}_{zzzz} \qquad (2.3(a))$$

$$\chi^{(3)}_{xxyy} = \chi^{(3)}_{xxzz} = \chi^{(3)}_{yyxx} = \chi^{(3)}_{yyzz} = \chi^{(3)}_{zzxx} = \chi^{(3)}_{zzyy} \qquad (2.3(b))$$

$$\chi^{(3)}_{xyxy} = \chi^{(3)}_{xzxz} = \chi^{(3)}_{yzyz} = \chi^{(3)}_{yxyx} = \chi^{(3)}_{zxzx} = \chi^{(3)}_{zyzy} \qquad (2.3(c))$$

$$\chi^{(3)}_{xyyx} = \chi^{(3)}_{xzzx} = \chi^{(3)}_{yxxy} = \chi^{(3)}_{yzzy} = \chi^{(3)}_{zxxz} = \chi^{(3)}_{zyyz} \qquad (2.3(d))$$

Ces quatre termes sont liés par la relation d'isotropie :

$$\chi^{(3)}_{xxxx} = \chi^{(3)}_{xxyy} + \chi^{(3)}_{xyxy} + \chi^{(3)}_{xyyx} \qquad (2.4)$$

De plus les règles de symétrie de Kleinman établissent que :

$$\chi^{(3)}_{xxyy} = \chi^{(3)}_{xyxy} = \chi^{(3)}_{xyyx} = \frac{1}{3}\chi^{(3)}_{xxxx} \qquad (2.5)$$

Le développement de la polarisation non linéaire du troisième ordre à la même fréquence que le champ incident dans le repère *(xyz)* s'exprime par :

$$P_i^{(3)}(\omega) = \frac{3\varepsilon_0}{8}\sum_{jkl}\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega;-\omega,\omega,\omega)E_j^{\ *}(\omega)E_k(\omega)E_l(\omega) \qquad (2.6)$$

Soit, d'après les égalités *(2.3)* :

$$P_x^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0}{8}\left[\chi_{xxxx}^{(3)}E_x^{\ *}E_xE_x + \chi_{xxyy}^{(3)}E_x^{\ *}E_yE_y + \chi_{xyxy}^{(3)}E_y^{\ *}E_xE_y + \chi_{xyyx}^{(3)}E_y^{\ *}E_yE_x\right] \qquad (2.7)$$

E_x et E_y sont les composantes du champ incident dans le repère *(xyz)*.

L'équation *(2.5)* permet alors d'obtenir :

$$P_x^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0}{8}\chi_{xxxx}^{(3)}\left[|E_x|^2E_x + \frac{1}{3}E_y^2E_x^* + \frac{2}{3}|E_y|^2E_x\right] \qquad (2.8(a))$$

$$P_y^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0}{8}\chi_{xxxx}^{(3)}\left[|E_y|^2E_y + \frac{1}{3}E_x^2E_y^* + \frac{2}{3}|E_x|^2E_y\right] \qquad (2.8(b))$$

Dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable, l'évolution des champs E_x et E_y lors de la propagation est liée à la polarisation non linéaire :

$$\frac{dE_x}{dz} = i\frac{2\pi}{\lambda n_0\varepsilon_0}P_x \qquad (2.9(a))$$

$$\frac{dE_y}{dz} = i\frac{2\pi}{\lambda n_0\varepsilon_0}P_y \qquad (2.9(b))$$

Le milieu étant isotrope, le repère *(xyz)* peut être choisi arbitrairement.

Nous choisissons donc : $E_x = A$ et $E_y = B$.

Dans ce cas, l'évolution des champs *A* et *B* est décrite par le système d'équations suivant :

$$\frac{dA}{dz} = i\frac{6\pi}{8n_0\lambda}\chi_{xxxx}^{(3)}\left[|A|^2A + \frac{1}{3}\left(2|B|^2A + B^2A^*\right)\right] \qquad (2.10(a))$$

$$\frac{dB}{dz} = i\frac{6\pi}{8n_0\lambda}\chi_{xxxx}^{(3)}\left[|B|^2B + \frac{1}{3}\left(2|A|^2B + A^2B^*\right)\right] \qquad (2.10(b))$$

Nous introduisons le terme $\gamma_0 = \frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi_{xxxx}^{(3)}$.

$$\boxed{\frac{dA}{dz} = i\gamma_0\left[|A|^2A + \delta\left(2|B|^2A + B^2A^*\right)\right]} \qquad (2.11(a))$$

$$\boxed{\frac{dB}{dz} = i\gamma_0\left[|B|^2B + \delta\left(2|A|^2B + A^2B^*\right)\right]} \qquad (2.11(b))$$

Le coefficient δ est nommé coefficient de biréfringence induite. Il vaut $\frac{1}{3}$ pour un milieu isotrope [2.2]. Ce terme quantifie les transferts d'énergie de A vers B. Les termes en $|A|^2 A$ ($|B|^2 B$) correspondent à l'automodulation de phase, et les termes en $|B|^2 A$ ($|A|^2 B$) à la modulation de phase croisée.

Nous remarquons qu'une polarisation linéaire se conserve : si B est nul, A subit uniquement de l'automodulation de phase et aucun transfert d'énergie de A vers B n'a lieu. Une polarisation circulaire se conserve également. Par exemple $B = iA$ conduit à $\frac{dB}{dz} = i\frac{dA}{dz}$.

Seule une polarisation elliptique subit des modifications dans un milieu isotrope. Il s'agit de la rotation de polarisation elliptique par biréfringence induite (*NER : Nonlinear Elliptic polarization Rotation*). Dans ce cas, la biréfringence induite par effet Kerr a pour conséquence la rotation du grand axe de l'ellipse (fig. 2.2) [2.1].

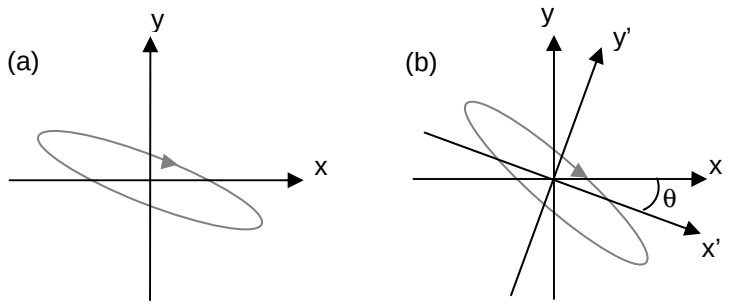

Figure 2.2 : Polarisation elliptique incidente (a) et après propagation (b)

Ce phénomène est étudié expérimentalement et appliqué au filtrage temporel dans le chapitre 3.

1.3. Modifications de la polarisation dans un milieu cristallin anisotrope

Dans le cas d'un matériau cristallin cubique (m3m) ou tétragonal (4/mmm), les relations *(2.3)* sont valides, mais la relation d'isotropie *(2.5)* n'est plus vérifiée. Les quatre termes $\chi^{(3)}_{xxxx}$, $\chi^{(3)}_{xxyy}$, $\chi^{(3)}_{xyxy}$, et $\chi^{(3)}_{xyyx}$ sont indépendants.

Le coefficient d'anisotropie du tenseur $\chi^{(3)}$, noté σ, quantifie l'écart par rapport à la situation d'isotropie :

$$\sigma = \frac{\chi^{(3)}_{xxxx} - \chi^{(3)}_{xxyy} - \chi^{(3)}_{xyxy} - \chi^{(3)}_{xyyx}}{\chi^{(3)}_{xxxx}} \qquad (2.12)$$

Si on conserve l'ordre des champs défini dans *(2.6)*, une relation supplémentaire est vérifiée [2.2] :

$$\chi^{(3)}_{xyxy} = \chi^{(3)}_{xyyx} \qquad (2.13)$$

L'anisotropie du tenseur $\chi^{(3)}$ s'écrit finalement :

$$\boxed{\sigma = \frac{\chi^{(3)}_{xxxx} - \chi^{(3)}_{xxyy} - 2\chi^{(3)}_{xyyx}}{\chi^{(3)}_{xxxx}}} \qquad (2.14)$$

Nous pouvons exprimer $P_x^{(3)}$ et $P_y^{(3)}$ d'après *(2.7)* et *(2.13)* :

$$P_x^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0}{8}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left|E_x\right|^2 E_x + \chi^{(3)}_{xxyy} E_x^{*} E_y^2 + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left|E_y\right|^2 E_x\right] \qquad (2.15(a))$$

$$P_y^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0}{8}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left|E_y\right|^2 E_y + \chi^{(3)}_{xxyy} E_y^{*} E_x^2 + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left|E_x\right|^2 E_y\right] \qquad (2.15(b))$$

D'après les équations (2.9) et (2.15), nous obtenons :

$$\frac{dE_x}{dz} = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\times\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left|E_x\right|^2 E_x + \chi^{(3)}_{xxyy} E_x^{*} E_y^2 + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left|E_y\right|^2 E_x\right] \qquad (2.16(a))$$

$$\frac{dE_y}{dz} = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\times\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left|E_y\right|^2 E_y + \chi^{(3)}_{xxyy} E_y^{*} E_x^2 + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left|E_x\right|^2 E_y\right] \qquad (2.16(b))$$

Le repère *(xyz)* correspond aux axes cristallins du matériau. Soit β l'angle entre l'axe *x* et la direction *a* de la composante *A* du champ incident (fig. 2.3).

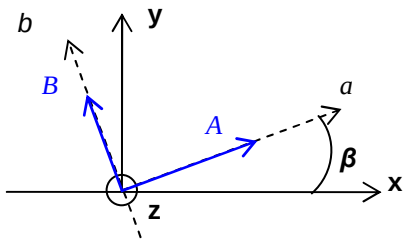

Figure 2.3 : Repères (xyz) et (abz), angle β.

Nous cherchons à exprimer $\frac{dA}{dz}$ et $\frac{dB}{dz}$ en fonction de *A* et *B*.

Nous avons :

$$E_x = \cos\beta\, A - \sin\beta\, B \qquad (2.17(a))$$

$$E_y = \sin\beta\, A + \cos\beta\, B \qquad (2.17(b))$$

Et également :

$$\frac{dA}{dz} = \cos\beta\,\frac{dE_x}{dz} + \sin\beta\,\frac{dE_y}{dz} \qquad (2.18(a))$$

$$\frac{dB}{dz} = -\sin\beta\,\frac{dE_x}{dz} + \cos\beta\,\frac{dE_y}{dz} \qquad (2.18(b))$$

$\frac{dE_x}{dz}$ s'exprime en fonction de *A* et *B* d'après *(2.16)* et *(2.17)* :

$$\frac{dE_x}{dz} = i\,\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\times\left[\Sigma_1\,\chi^{(3)}_{xxxx} + \Sigma_2\,\chi^{(3)}_{xxyy} + 2\Sigma_3\,\chi^{(3)}_{xyyx}\right] \qquad (2.19(a))$$

$$\begin{aligned}\Sigma_1 = {} & \cos^3\beta|A|^2 A + 2\cos\beta\sin^2\beta|B|^2 A - \sin\beta\cos^2\beta A^2 B^* \\ & - 2\sin\beta\cos^2\beta|A|^2 B - \sin^3\beta|B|^2 B + \cos\beta\sin^2\beta B^2 A^*\end{aligned} \qquad (2.19(b))$$

$$\begin{aligned}\Sigma_2 = {} & \cos\beta\sin^2\beta|A|^2 A - 2\cos\beta\sin^2\beta|B|^2 A - \sin^3\beta A^2 B^* \\ & + 2\sin\beta\cos^2\beta|A|^2 B - \sin\beta\cos^2\beta|B|^2 B + \cos^3\beta B^2 A^*\end{aligned} \qquad (2.19(c))$$

$$\begin{aligned}\Sigma_3 = {} & \cos\beta\sin^2\beta|A|^2 A + \left(\cos^3\beta - \cos\beta\sin^2\beta\right)|B|^2 A + \sin\beta\cos^2\beta A^2 B^* \\ & - \left(\sin^3\beta - \sin\beta\cos^2\beta\right)|A|^2 B - \sin\beta\cos^2\beta|B|^2 B - \cos\beta\sin^2\beta B^2 A^*\end{aligned} \qquad (2.19(d))$$

De la même manière,

$$\frac{dE_y}{dz} = i\,\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\times\left[\Sigma_4\,\chi^{(3)}_{xxxx} + \Sigma_5\,\chi^{(3)}_{xxyy} + 2\Sigma_6\,\chi^{(3)}_{xyyx}\right] \qquad (2.20(a))$$

$$\begin{aligned}\Sigma_4 = {} & \sin^3\beta|A|^2 A + 2\sin\beta\cos^2\beta|B|^2 A + \cos\beta\sin^2\beta A^2 B^* \\ & + 2\cos\beta\sin^2\beta|A|^2 B + \cos^3\beta|B|^2 B + \sin\beta\cos^2\beta B^2 A^*\end{aligned} \qquad (2.20(b))$$

$$\begin{aligned}\Sigma_5 = &\sin\beta\cos^2\beta\left|A\right|^2 A - 2\sin\beta\cos^2\beta\left|B\right|^2 A + \cos^3\beta\, A^2 B^* \\ &- 2\cos\beta\sin^2\beta\left|A\right|^2 B + \cos\beta\sin^2\beta\left|B\right|^2 B + \sin^3\beta\, B^2 A^*\end{aligned} \qquad \textit{(2.20(c))}$$

$$\begin{aligned}\Sigma_6 = &\sin\beta\cos^2\beta\left|A\right|^2 A + \left(\sin^3\beta - \sin\beta\cos^2\beta\right)\left|B\right|^2 A - \cos\beta\sin^2\beta\, A^2 B^* \\ &+ \left(\cos^3\beta - \cos\beta\sin^2\beta\right)\left|A\right|^2 B + \cos\beta\sin^2\beta\left|B\right|^2 B - \sin\beta\cos^2\beta\, B^2 A^*\end{aligned} \qquad \textit{(2.20(d))}$$

En remplaçant $\frac{dE_x}{dz}$ et $\frac{dE_y}{dz}$ par ces expressions dans les équations *(2.18)*, nous remarquons que dans l'expression de $\frac{dA}{dz}$ apparaît un terme en $\left|B\right|^2 B$. Ce terme correspond à un transfert d'énergie du champ *B* vers le champ *A* polarisé orthogonalement.

Le coefficient γ de ce terme de génération de polarisation orthogonale vaut d'après *(2.14), (2.18), (2.19), (2.20)* :

$$\gamma = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left(\cos^3\beta\sin\beta - \cos\beta\sin^3\beta\right) + \left(\chi^{(3)}_{xxyy} + 2\chi^{(3)}_{xyyx}\right)\left(\sin^3\beta\cos\beta - \sin\beta\cos^3\beta\right)\right] \qquad \textit{(2.21)}$$

$$\gamma = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\left(\cos^3\beta\sin\beta - \cos\beta\sin^3\beta\right)\left(\chi^{(3)}_{xxxx} - \chi^{(3)}_{xxyy} - 2\chi^{(3)}_{xyyx}\right)\right] \qquad \textit{(2.22)}$$

$$\gamma = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}\,\sigma\,\frac{\sin(4\beta)}{4} \qquad \textit{(2.23)}$$

$$\boxed{\gamma = i\,\gamma_0\,\sigma\,\frac{\sin(4\beta)}{4}} \qquad \textit{(2.24)}$$

Il est important de noter que ce terme de génération de polarisation orthogonale n'apparaît pas dans les équations *(2.16)*. Pour le mettre en évidence, il faut considérer un champ incident qui n'est pas polarisé suivant l'un des axes cristallins ($\beta \neq 0$).

Le calcul des autres coefficients est effectué en annexe (p. 179).

L'expression de l'équation d'évolution du champ A finalement obtenue est :

$$\frac{dA}{dz} = i\gamma_0\left(1-\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)\right)|A|^2 A \quad \text{.....automodulation de phase}$$

$$+ i\gamma_0 \frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|B|^2 B \quad \text{.....génération de polarisation croisée}$$

$$+ i2\gamma_0\left[\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)+\frac{1-\sigma}{3}\right]|B|^2 A \quad \text{.....modulation de phase croisée}$$

$$\left.\begin{aligned} &- i\gamma_0 \frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)A^2 B^* \\ &- i2\gamma_0 \frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|A|^2 B \\ &+ i\gamma_0\left[\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)+\frac{1-\sigma}{3}\right]B^2 A^* \end{aligned}\right\} \text{..... autres processus de mélange à 4 ondes} \qquad \textit{(2.25(a))}$$

De la même manière,

$$\frac{dB}{dz} = i\gamma_0\left(1-\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)\right)|B|^2 B \quad \text{.....automodulation de phase}$$

$$- i\gamma_0 \frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|A|^2 A \quad \text{.....génération de polarisation croisée}$$

$$+ i2\gamma_0\left[\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)+\frac{1-\sigma}{3}\right]|A|^2 B \quad \text{.....modulation de phase croisée}$$

$$\left.\begin{aligned} &+ i\gamma_0 \frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)B^2 A^* \\ &+ i2\gamma_0 \frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|B|^2 A \\ &+ i\gamma_0\left[\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)+\frac{1-\sigma}{3}\right]A^2 B^* \end{aligned}\right\} \text{..... autres processus de mélange à 4 ondes} \qquad \textit{(2.25(b))}$$

Les équations *2.25 (a)* et *(b)* sont totalement symétriques, *A* et *B* étant interchangeables (la différence de signe devant les deuxième, quatrième et cinquième termes provient de la définition de l'angle β).

Par comparaison avec les équations *(2.11)* correspondant au cas isotrope, nous retrouvons les termes d'automodulation de phase et de modulation de phase croisée, dépendant de $\chi^{(3)}_{xxxx}$, de σ et de l'angle β. Dans ce cas, le coefficient de biréfringence induite s'écrit : $\delta = \frac{1-\sigma}{3} + \frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)$.

Nous avons évoqué le terme en $|B|^2 B \ \left(|A|^2 A\right)$. Ce terme correspond à la génération d'une onde polarisée orthogonalement (XPW pour *Cross-Polarized Wave*) par rapport à l'onde incidente. Ce terme n'existe que pour un milieu dont la susceptibilité non linéaire est anisotrope $(\sigma \neq 0)$ et dépend de manière périodique de β.

Finalement, une onde polarisée soit linéairement, soit elliptiquement, peut subir des changements dans un milieu anisotrope.

Dans le cas d'une polarisation initiale linéaire (par exemple, $B(0) = 0$), une onde polarisée orthogonalement (XPW) est générée. Ce processus sera étudié en détail dans le chapitre 4. Son application à l'amélioration du contraste temporel d'impulsions femtosecondes est amplement décrite au cours du chapitre 6.

Si la polarisation incidente est elliptique ($A(0) \neq 0, B(0) \neq 0$), à cette contribution XPW s'ajoute la contribution de rotation de l'ellipse, de type NER. L'étude simultanée de ces processus fait l'objet du chapitre 5.

2. Automodulation de phase et autofocalisation

En plus des changements de polarisation, une onde se propageant dans un milieu non linéaire d'ordre trois subit des perturbations spectrales et spatiales. La présence de la susceptibilité non linéaire se traduit en effet par une modification de l'indice de réfraction qui s'écrit alors :

$$n = n_0 + n_2 I \qquad (2.26)$$

n_0 est l'indice de réfraction linéaire et n_2 désigne l'indice non linéaire du matériau, lié aux termes diagonaux du tenseur $\chi^{(3)}$ par [2.3] :

$$n_2{}^x = \frac{3}{4\varepsilon_0 c n_0^2}\chi^{(3)}_{xxxx} \qquad (2.27)$$

$\chi^{(3)}_{xxxx}$ s'exprime en m^2V^{-2}, n_2 en m^2W^{-1}. L'intensité du champ est $I = \frac{c\varepsilon_0 n_0}{2}|E|^2$.

La dépendance de l'indice de réfraction effectif *n* avec l'intensité *I(t,z)* est la cause de perturbations à la fois spectrales (automodulation de phase) et spatiales (autofocalisation) de l'onde.

Remarquons également que le premier terme des équations *(2.25)* a établi une expression générale de l'automodulation de phase pour tout champ se propageant dans un milieu anisotrope, dépendant de $\chi^{(3)}_{xxxx}$, de σ et β.

2.1. Automodulation de phase

La variation temporelle de l'indice de réfraction crée de l'automodulation de phase. En effet, durant sa propagation, dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable et d'une réponse instantanée du milieu, l'impulsion acquiert une phase non linéaire [2.4] :

$$\phi_{NL}(t) = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 L\, I(t) \qquad (2.28)$$

Cette phase dépendante du temps modifie la largeur et la forme du spectre comme on le vérifie en introduisant la notion de fréquence instantanée :

$$\omega(t) = \omega_0 - \delta\omega(t) \qquad (2.29)$$

$$\delta\omega(t) = -\frac{d}{dt}\phi_{NL}(t) \qquad (2.30)$$

La figure 2.4 représente l'exemple d'un profil temporel d'intensité de type gaussien et la variation $\delta\omega(t)$ associée dans le cas $n_2 > 0$. Le front avant de l'impulsion, pour lequel $\delta\omega(t) > 0$, est translaté vers les hautes longueurs d'onde, tandis que le front arrière est décalé vers les basses longueurs d'onde.

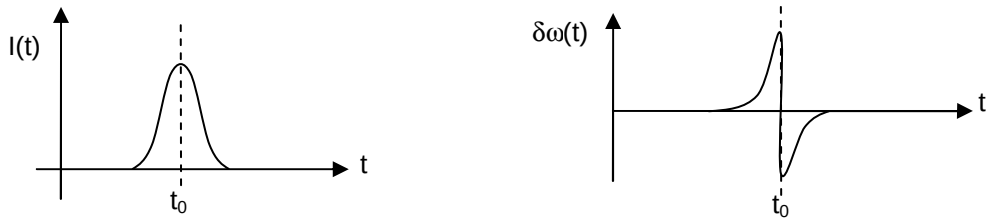

Figure 2.4: Dépendance temporelle de l'intensité et variation de la fréquence instantanée associée.

L'automodulation de phase est donc, dans la plupart des cas, responsable d'un élargissement du spectre, typiquement des bosses apparaissent aux longueurs d'onde extrêmes et un creux se forme au centre du spectre. La modification du spectre est également très fortement liée à la phase spectrale de l'impulsion.

La quantité $\frac{2\pi}{\lambda} n_2 \int_0^L I(t,z)dz$ est appelée intégrale B et quantifie usuellement la phase non linéaire accumulée lors de la propagation de l'impulsion dans la chaîne laser.

2.2. Autofocalisation

Une autre conséquence de l'effet Kerr est l'autofocalisation du faisceau, due à la variation de l'indice de réfraction avec l'intensité spatiale. En effet, si une onde présente une distribution transverse d'intensité non uniforme dans un matériau dont l'indice non linéaire est positif, celui-ci agit comme une lentille convergente, appelée lentille de Kerr (fig. 2.5(a)). Si le milieu non linéaire est long ou si l'intensité est trop importante, le faisceau focalise dans le matériau, en un point dit d'effondrement, ce qui est source de dommages (fig. 2.5(b)).

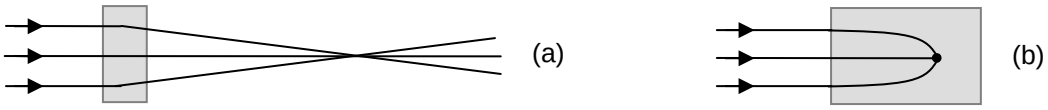

Figure 2.5 : Autofocalisation par effet Kerr

Ce phénomène, bien contrôlé, est à l'origine d'autoguidage d'impulsions par filamentation [2.5-2.7].

Notons que l'autofocalisation intervient toujours si la puissance de l'impulsion est supérieure à une certaine valeur, appelée puissance critique (P_{cr}), indépendamment du diamètre du faisceau.
La puissance critique est caractéristique du milieu non linéaire traversé et s'écrit [2.8] :

$$P_{cr} = \frac{\pi (0.61)^2 \lambda^2}{8 n_0 n_2} \qquad (2.31)$$

Par exemple dans l'air, dont l'indice non linéaire vaut 3.2×10^{-19} cm^2W^{-1}, la puissance critique est d'environ 3 GW.
La position du point d'autofocalisation est par contre liée à l'intensité initiale de l'impulsion.

L'automodulation de phase et l'autofocalisation sont des phénomènes bien connus, que nous aurons l'occasion d'observer, et d'utiliser, au cours des réalisations expérimentales décrites dans cette thèse.

Le modèle théorique développé dans ce chapitre décrit les modifications de la polarisation d'une onde se propageant dans un milieu non linéaire. Il inclut les cas d'un milieu dont la susceptibilité non linéaire du troisième ordre est isotrope, ou anisotrope. Il est adapté à une polarisation incidente linéaire ou elliptique. Il est ainsi approprié à plusieurs configurations expérimentales. Les filtres non linéaires successivement développés et étudiés au cours de ma thèse reposent sur ces modifications non linéaires de la polarisation de l'impulsion femtoseconde. Le modèle théorique décrit ici sera donc exploité dans toute la suite du manuscrit.

BIBLIOGRAPHIE :

[2.1] R. W. Boyd (1992) *"Nonlinear Optics"* (Academic Press, Boston), p. 164-171.

[2.2] D.C. Hutchings, J.S. Aitchison and J.M. Arnold (1997) *"Nonlinear refractive coupling and vector solitons in anisotropic cubic media"*, Journal of Optical Society of America B 14, 869-879.

[2.3] R. DeSalvo, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan and E. W. Van Stryland (1993) *"Z-scan measurements of the anisotropy of nonlinear refraction and absorption in crystals"*, Optics Letters 18, 194-196.

[2.4] R. W. Boyd (1992) *"Nonlinear Optics"* (Academic Press, Boston), p. 275.

[2.5] J. F. Ripoche (1998) *"Mesure du profil temporel exact d'impulsions laser femtosecondes intenses"*, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique.

[2.6] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier and G. Mourou (1995) *"Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses"*, Optics Letters 20, 73-75.

[2.7] H. R. Lange, G. Grillon, J. F. Ripoche, M. A. Franco, B. Lamouroux, B. S. Prade, A. Mysyrowicz, E. T. J. Nibbering and A. Chiron (1998) *"Anomalous long-range propagation of femtosecond laser pulses through air : moving focus or pulse self-guiding ?"*, Optics Letters 23, 120-122.

[2.8] R. W. Boyd (1992) *"Nonlinear Optics"* (Academic Press, Boston), p. 257-260.

Chapitre 3

Rotation non linéaire de polarisation elliptique dans l’air

Chapitre 3

Rotation non linéaire de polarisation elliptique dans l'air

1. Description du dispositif expérimental de filtrage non linéaire 52

1.1. Caractérisation de la source 52

1.2. Montage expérimental 53

1.3. Modèle théorique associé au filtre non linéaire 54

1.4. Conclusion 56

2. Influence de la phase spectrale sur l'efficacité du filtre 57

2.1. Contrôle de la phase spectrale 57

2.2. Influence de la phase spectrale du deuxième ordre 58

2.2.1. Evolution du spectre de l'impulsion 58

2.2.2. Effet Kerr retardé 59

2.3. Influence de la phase spectrale du troisième ordre 60

2.3.1. Hypothèses : code de simulation complet 60

2.3.2. Signe de la phase cubique : cas du xénon 62

2.4. Conclusion 63

3. Caractérisation de l'impulsion initiale et de l'impulsion filtrée 64

3.1. Configuration retenue : caractérisation de l'impulsion initiale 64

3.1.1. Allure temporelle et phase spectrale 64

3.1.2. Phase non linéaire accumulée 65

3.2. Amélioration du contraste temporel : corrélation grande dynamique 66

3.3. Caractérisation spatiale de l'impulsion filtrée 67

3.4. Caractérisation spectrale de l'impulsion filtrée 67

4. Conclusion 69

Bibliographie 70

Les changements de polarisation subis par une onde se propageant dans un milieu non linéaire, présentés dans le chapitre 2, ont fait l'objet de nombreux travaux, expérimentaux et théoriques. Par exemple, une onde polarisée linéairement injectée dans une fibre biréfringente connaît des changements de polarisation dépendant de l'intensité initiale [3.1]. Les applications sont multiples : mise en forme spatiale et temporelle d'impulsions [3.2], filtrage temporel [3.3, 3.4], filtre passe-haut [3.5]…. L'avantage de l'utilisation de fibres optiques est bien sûr la possibilité d'avoir une interaction non linéaire sur une très longue distance.

Dans le cas d'un milieu isotrope, la rotation d'une polarisation elliptique par biréfringence non linéaire induite a également été largement étudiée [3.6, 3.7]. On parle dans ce cas d'un processus de type NER (*Nonlinear Elliptic polarization Rotation)*. Ce dispositif a été utilisé pour déclencher le blocage de modes [3.8], pour mesurer la susceptibilité non linéaire de différents milieux [3.9], ainsi que pour améliorer le contraste temporel d'impulsions courtes [3.10], et plus récemment dans [3.11].

Dans ce chapitre, nous exploitons la rotation par biréfringence induite d'une polarisation elliptique dans l'air. Ce processus fait l'objet d'investigations essentiellement expérimentales, réalisées pour mettre au point un filtre temporel non linéaire efficace en vue de l'amélioration du contraste d'impulsions femtosecondes d'énergie environ 1 mJ.

L'objectif de ce chapitre est d'exposer les conditions de fonctionnement du filtre, les caractéristiques du faisceau filtré, les avantages de cette méthode de filtrage, ainsi que ses limites.

La première partie décrit le dispositif expérimental conçu et rappelle les équations théoriques associées établies au cours du chapitre précédent. J'expose dans un second paragraphe l'influence capitale de la phase spectrale de l'impulsion initiale sur le bon fonctionnement du filtre. La troisième partie rassemble les caractéristiques du faisceau filtré. Enfin je conclurai en montrant que ces résultats, quoiqu'encourageants, ne permettent pas l'implémentation définitive de ce filtre dans un système laser.

Ce travail a fait l'objet d'une collaboration entre le LOA et Pascal d'Oliveira ainsi que Thierry Auguste du CEA/DRECAM/SPAM (Service des Photons, Atomes et Molécules, Département de Recherche sur l'Etat Condensé, les Atomes et les Molécules, Commissariat à l'Energie Atomique, à Gif-sur-Yvette) dans le cadre du contrat SHARP.

1. Description du dispositif expérimental de filtrage non linéaire

L'application du processus de rotation de polarisation elliptique par biréfringence induite à l'amélioration du contraste temporel d'impulsions femtosecondes a déjà été démontrée, notamment par Homoelle *et al.* [3.11]. Dans cette expérience, le milieu non linéaire employé est un guide d'onde creux empli de xénon, placé entre deux lames quart d'onde et deux polariseurs croisés. L'efficacité de couplage dans le guide d'onde est de 60%. Dans cet article, l'amélioration du contraste pour une impulsion incidente d'énergie quelques microjoules est estimée meilleure que deux ordres de grandeur.

Toutefois, cette méthode n'est pas adaptée au filtrage d'impulsions plus énergétiques.

Nous avons modifié le montage en utilisant l'air comme milieu non linéaire. Le faisceau est focalisé directement dans l'air pour atteindre le niveau d'intensité optimal. Le filtre est ainsi utilisable au niveau millijoule.

1.1. Caractérisation de la source

Les expériences ont été réalisées avec un laser de développement du laboratoire dont la cadence est 1 kHz. Ce système est basé sur la technique d'amplification à dérive de fréquences dans des cristaux de saphir dopé au titane. L'oscillateur à blocage de modes émet des impulsions de 4 nJ dont le spectre, centré autour de 800 nm, mesure à mi-hauteur 50 nm. Ce faisceau est envoyé dans un étireur à triplet de Öffner qui étire l'impulsion à une durée proche de 300 ps. Celle-ci est ensuite amplifiée jusqu'à 1 mJ dans un amplificateur régénératif puis dans un amplificateur multipassages pour atteindre 3 mJ. Après compression, l'énergie maximale disponible est 1.2 mJ (fig.3.1).

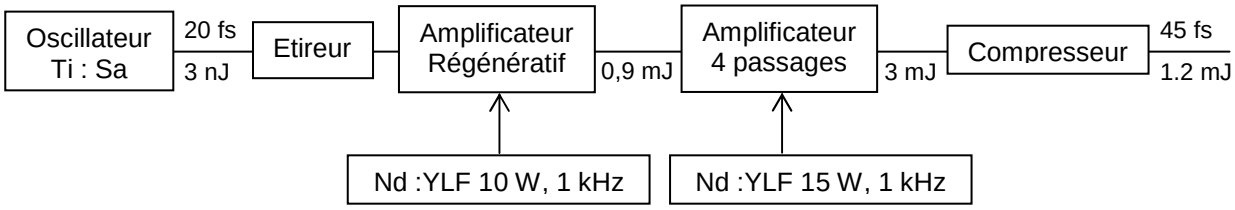

Figure 3.1 : Laser CPA 1.2 mJ, 45 fs, 1 kHz.

Les impulsions après amplification et compression ont une durée de 50 fs environ pour un spectre de 22 nm dont la longueur d'onde centrale est 809 nm (fig. 3.2(b)). Un dispositif SPIDER [3.12] permet de mesurer l'intensité temporelle et la phase spectrale de l'impulsion (fig. 3.2). Le résiduel

de phase spectrale très faible (± 0.5 rad) signifie que l'impulsion est correctement comprimée, sa durée est limitée par transformée de Fourier.

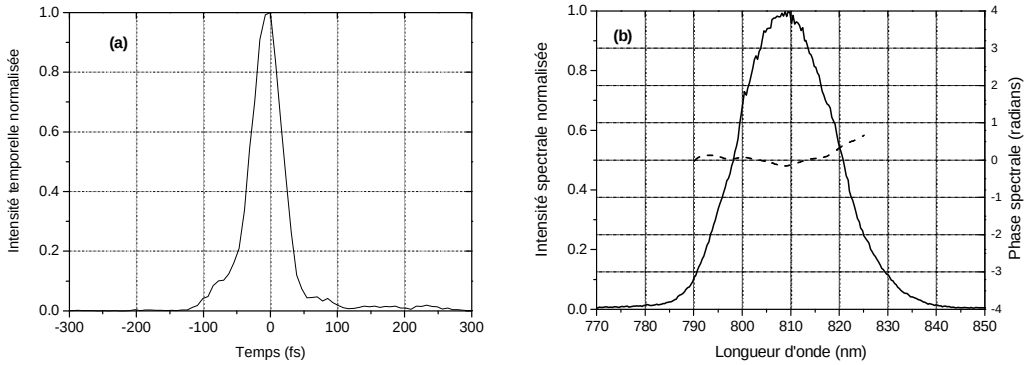

Figure 3.2 : Mesure SPIDER (a) intensité temporelle, (b) phase spectrale et intensité spectrale ($\lambda_0 = 809\ nm, \Delta\lambda = 22\ nm$) de l'impulsion comprimée.

1.2. Montage expérimental

Le dispositif expérimental de filtrage est relativement simple (fig. 3.3).

Figure 3.3 : Dispositif expérimental du filtre non linéaire.

Le faisceau incident polarisé linéairement traverse une première lame quart d'onde, dont l'axe rapide est tourné d'un angle α par rapport à la direction de polarisation initiale. Cette lame génère un faisceau polarisé elliptiquement, ensuite focalisé par une lentille de 600 mm. La rotation du grand axe de l'ellipse a lieu durant la propagation, au voisinage du foyer.

Le faisceau étant de nouveau collimaté, la seconde lame λ/4 est croisée par rapport à la première, c'est-à-dire que si aucun effet non linéaire n'a lieu le faisceau retrouve sa direction de polarisation originale et n'a pas subi de déphasage. Un analyseur fait ensuite office de discriminateur, il permet de transmettre la partie intense de l'impulsion dont la polarisation a tourné.

Les polariseurs de Glan sont en calcite, traités antireflet large bande spectrale autour de 800 nm. Les lames d'onde sont achromatiques d'ordre 0. Le taux d'extinction de ce montage est de 7.10^{-4}, mesuré avec le régime nanoseconde de l'amplificateur régénératif. Le taux d'extinction est la « fuite » mesurée après l'analyseur si aucun effet non linéaire n'a lieu.

En régime femtoseconde, lorsqu'il y a interaction non linéaire, j'ai vérifié expérimentalement que la transmission du filtre est optimale pour $\alpha = 22.5°$, conformément aux valeurs rapportées dans la littérature [3.7, 3.11]. Il ne se passe rien si $\alpha = 0°$ ou $\alpha = 45°$ (polarisation linéaire ou circulaire, cf. p. 38).

1.3. Modèle théorique associé au filtre non linéaire

Ce paragraphe rappelle les équations d'évolution des champs établies dans le chapitre 2 pour un milieu isotrope (p. 37). Considérons un repère de calcul (*xyz*) dont les axes *x* et *y* sont les axes neutres de la première lame λ/4. La polarisation elliptique générée est donc décrite par les champs *A* et *B*, projections du champ initial d'amplitude E_0 sur *x* et *y* (fig. 3.4).

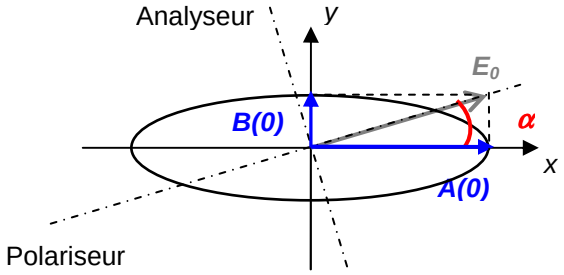

Figure 3.4 : Champ E_o initial, champs A et B utilisés pour la modélisation.

Dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable et pour des ondes planes, l'évolution des champs A et B est décrite par les équations *(3.1)* :

$$\frac{dA}{dz} = i\gamma_0\left[|A|^2 A + \delta\left(2|B|^2 A + B^2 A^*\right)\right] \qquad (3.1(a))$$

$$\frac{dB}{dz} = i\gamma_0\left[|B|^2 B + \delta\left(2|A|^2 B + A^2 B^*\right)\right] \qquad (3.1(b))$$

Je rappelle que $\gamma_0 = \frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}$ et $\delta = \frac{1}{3}$.

Les conditions initiales correspondent aux deux composantes A(0) et B(0), décalées en phase de π/2 : $A(0) = E_0 \cos\alpha$ et $B(0) = i\,E_0 \sin\alpha$. Après interaction sur une distance L et après passage par la deuxième lame d'onde, le champ transmis par l'analyseur s'écrit $C(L) = A(L)\sin\alpha + i\,B(L)\cos\alpha$ et l'intensité mesurée est $I_{out} = \frac{c\varepsilon_0 n_0}{2}|C(L)|^2$.

La transmission du filtre est le rapport : $\frac{I_{out}}{I_0}$ ($I_0 = \frac{c\varepsilon_0 n_0}{2}|E_0|^2$).

Le système d'équation *(3.1)* est résolu numériquement grâce à un programme codé avec le logiciel de calcul formel Maple. La grandeur pertinente pour les simulations est le produit $\gamma_0 E_0^2 L$. La figure 3.5 montre ainsi la transmission prévue théoriquement pour une onde plane en fonction de l'intensité initiale et de la longueur L d'interaction, pour différentes valeurs de α.

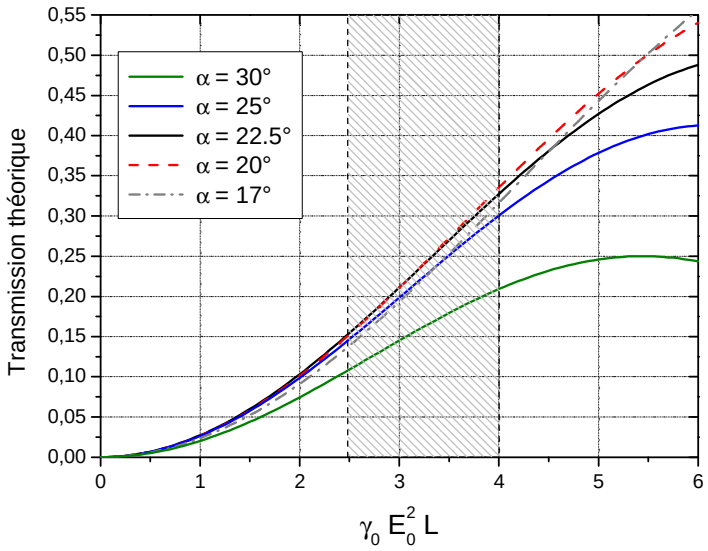

Figure 3.5 : Transmission théorique pour une onde plane en fonction de $\gamma_0 E_0^2 L$ *, pour* $\alpha = 30°$ *,* $\alpha = 25°, \alpha = 22.5°, \alpha = 20°, \alpha = 17°$ *. L'espace hachuré est la zone de fonctionnement du filtre.*

Cette figure nous permet en premier lieu de conclure quant à la valeur optimale de l'angle α.

En effet, rappelons que $\gamma_0 = \frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}$ et $n_2 = \frac{3}{4\varepsilon_0 c n_0^2}\chi^{(3)}_{xxxx}$.

Nous obtenons une autre expression de $\gamma_0 E_0^2 L$:

$$\gamma_0 E_0^2 L = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 I_0 L = \phi_{NL} \qquad (3.2)$$

La quantité $\gamma_0 E_0^2 L$ correspond à la phase non linéaire accumulée par l'onde polarisée elliptiquement pendant l'interaction (chapitre 2, p. 44). Dans notre expérience, cette grandeur vaut environ 3 à 4 radians. Le calcul de cette valeur est détaillé p. 65.

Pour cette valeur de $\gamma_0 E_0^2 L$, la figure 3.5 montre que la valeur de l'angle α pour laquelle la transmission est optimisée se situe autour de 22.5°, ce qui est en accord avec les observations expérimentales. Dans toute la suite, on considérera que $\alpha = 22.5°$.

D'autre part, la figure 3.6 représente la courbe théorique de rendement, pour $\alpha = 22.5°$, toujours en fonction de $\gamma_0 E_0^2 L$ mais en échelle logarithmique.

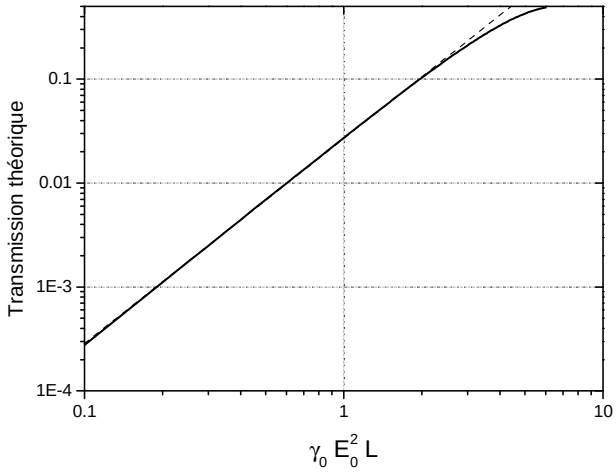

Figure 3.6 : Transmission théorique en fonction de $\gamma_0 E_0^2 L$, pour $\alpha = 22.5°$.

La droite figure une dépendance quadratique.

Cette courbe démontre que, jusqu'à environ 10% d'efficacité, le rendement évolue de manière quadratique avec le produit $\gamma_0 E_0^2 L$. Cela confirme que, en première approximation, l'intensité de l'onde transmise présente une dépendance cubique, notamment temporelle, par rapport à l'intensité de l'onde initiale. Le contraste du faisceau transmis doit donc être significativement amélioré.

1.4. Conclusion

La variation de l'efficacité de transmission en fonction des paramètres de l'expérience (ellipticité, intensité incidente, non linéarité du milieu, longueur d'interaction) est établie de manière théorique.

Pour une longueur d'interaction donnée, l'intensité du faisceau joue un rôle prépondérant sur l'efficacité du processus.

2. Influence de la phase spectrale sur l'efficacité du filtre

Dans nos expériences, l'énergie incidente est limitée à 850 μJ pour une durée minimale d'impulsion d'environ 50 fs. Nous avons mesuré le diamètre du faisceau au foyer : 120 μm. L'intensité au foyer atteindrait donc au maximum 3.10^{14} Wcm^{-2}, ce qui est considérable. Divers phénomènes parasites sont susceptibles d'intervenir, tels que l'automodulation de phase, l'autofocalisation du faisceau, et l'ionisation de l'air.

En effet, lorsque le champ électrique est de l'ordre de grandeur ou supérieur au champ atomique, il devient possible d'ioniser le gaz, créant un plasma. L'ionisation introduit une variation temporelle de l'indice de réfraction du milieu qui tend à défocaliser le faisceau. L'impulsion subit donc un déphasage et des modifications spectrales. L'effet Kerr étant négligeable par rapport à l'ionisation, il est important de conserver l'intensité dans un régime où l'ionisation de l'air est faible. L'intensité ne doit pas excéder 10^{14} Wcm^{-2} [3.13].

Le processus optimisé correspond donc à une situation d'équilibre entre ces phénomènes et s'est révélé très instable en termes de transmission et de qualité de l'impulsion filtrée.

Le contrôle de la phase spectrale de l'impulsion initiale s'est avéré extrêmement important pour maîtriser aussi précisément que possible le niveau d'intensité de l'impulsion au moment de l'interaction non linéaire et la répartition temporelle de l'énergie.

2.1. Contrôle de la phase spectrale

A énergie incidente fixée, pour à la fois obtenir un rendement de transmission correct et préserver le spectre de l'impulsion filtrée, le contrôle très précis de l'intensité (c'est à dire de la durée de l'impulsion) et de la répartition temporelle de l'énergie est absolument nécessaire. Nous avons effectué ce contrôle en introduisant des défauts de phase spectrale, des deuxième et troisième ordres. La phase spectrale est modifiée en utilisant un Dazzler (filtre dispersif acousto-optique développé par la société Fastlite [3.14]) et en déréglant le compresseur du laser (fig. 3.7).

Le compresseur est constitué de deux réseaux parallèles séparés d'une distance L (tirage). Soit *i* l'angle d'incidence sur le premier réseau, θ l'angle de diffraction, N le nombre de traits par millimètre des réseaux. θ et *i* sont liés par la loi de diffraction des réseaux :

$$\sin\theta - \sin i = p\lambda N \qquad (3.3)$$

p est l'ordre de diffraction $(p = -1)$.

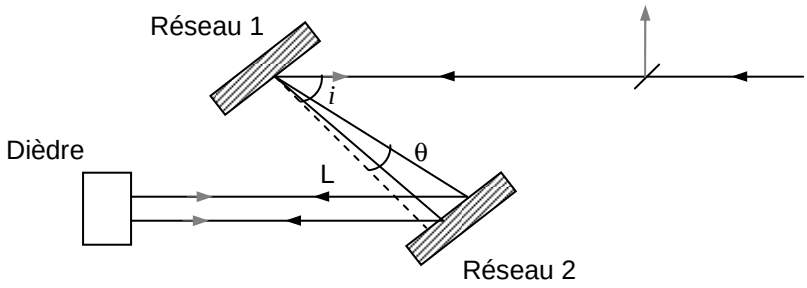

Figure 3.7 : Schéma du compresseur

Les coefficients du deuxième et du troisième ordre de la phase spectrale introduite par un tel compresseur valent [3.15] :

$$\varphi_{comp}^{(2)} = -\frac{L\lambda^3 N^2}{\pi c^2 \cos^2\theta} \qquad (3.4)$$

$$\varphi_{comp}^{(3)} = -\frac{3\lambda}{2\pi c}\left(1 - \lambda N \frac{\sin\theta}{\cos^2\theta}\right) \qquad (3.5)$$

Nous modifions donc la phase spectrale des deuxième et troisième ordres en jouant sur le tirage L du compresseur et en changeant l'angle d'incidence sur le réseau.

L'ajustement précis de la phase spectrale ($\varphi^{(2)}$ et $\varphi^{(3)}$ combinés) permet de contrôler l'intensité et la répartition temporelle de l'énergie. Un bon compromis entre l'efficacité en transmission (≈ 23%) et le comportement spectral de l'impulsion filtrée a été expérimentalement obtenu pour l'ajout des quantités suivantes : $\varphi^{(2)} = 7000\, fs^2$ et $\varphi^{(3)} = -200{,}000\, fs^3$. Nous verrons que ces valeurs combinées de phase spectrale conduisent à des changements significatifs du profil temporel de l'impulsion : augmentation de la durée et ajout de pré-impulsions. L'influence des coefficients $\varphi^{(2)}$ et $\varphi^{(3)}$ (signe, valeur) est étudiée séparément dans les deux paragraphes suivants.

2.2. Influence de la phase spectrale du deuxième ordre

2.2.1. Evolution du spectre de l'impulsion

Le signe de la phase spectrale du deuxième ordre n'a pas d'incidence sur le rendement, mais influence le comportement spectral. La figure 3.8 représente les spectres expérimentaux obtenus après filtrage, avec $\varphi^{(3)} = -200{,}000\, fs^3$, pour $\varphi^{(2)} = 7000\, fs^2$ (a), dans ce cas le rendement est de 23%, et pour $\varphi^{(2)} = -7000\, fs^2$ (b), le rendement est alors de 18%.

Une phase spectrale du second ordre positive conduit à un élargissement du spectre (fig. 3.8(a)), alors qu'une phase spectrale négative entraîne plutôt un rétrécissement (fig. 3.8(b)). Ceci s'explique par les propriétés spectrales de l'automodulation de phase [3.16]. Ces propriétés sont explicitées en annexe (p. 185). Pour ne pas diminuer la largeur spectrale, nous choisissons d'ajouter un chirp positif.

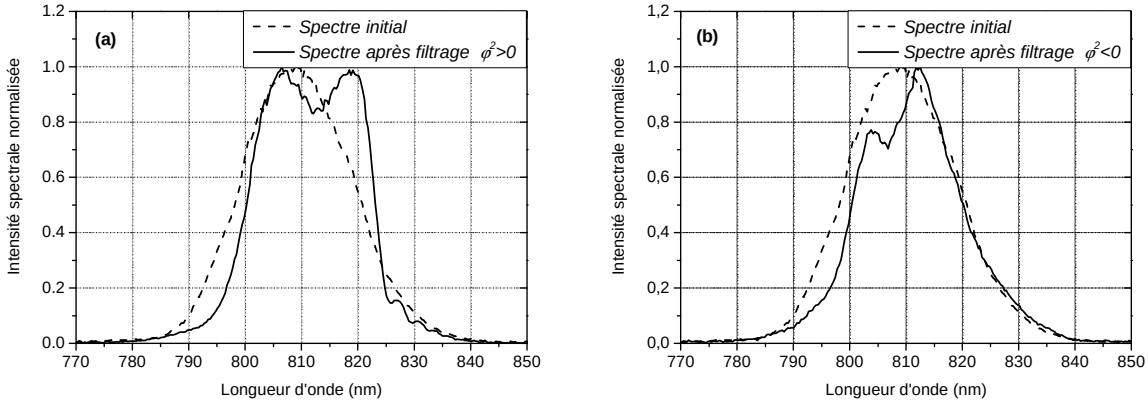

Figure 3.8: Evolution du spectre en ajoutant de la phase spectrale du second ordre
(a) $\varphi^{(2)} > 0$, largeur à mi-hauteur du spectre après filtrage 24 nm, centré à 812 nm
(b) $\varphi^{(2)} < 0$, largeur à mi-hauteur du spectre après filtrage 20 nm, centré à 810 nm

Notons que l'automodulation de phase induite par le processus et révélée par ces spectres est également responsable de l'instabilité du filtre.

2.2.2. Effet Kerr retardé

D'autre part, nous remarquons sur tous les spectres enregistrés un décalage vers les hautes longueurs d'onde. Ce décalage spectral s'explique par l'effet Kerr retardé de l'air.
En effet, la réponse non linéaire de l'air comprend une contribution qui n'est pas instantanée. Rappelons que la susceptibilité non linéaire modifie la valeur de l'indice de réfraction :

$$n = n_0 + \Delta n \qquad (3.6)$$

Dans le cas d'un milieu à réponse électronique non résonnante, la contribution non linéaire s'écrit simplement $\Delta n(t) = n_2 I(t)$. Ce terme instantané correspond à la déformation du nuage électronique sous l'action du champ.
Dans certains cas, s'ajoute une contribution retardée, d'origine nucléaire (réorientation des molécules) :

$$\Delta n(t) = n_2 I(t) + \int_{-\infty}^{t} R(t-t')I(t')dt \qquad (3.7)$$

La fonction $R(t)$ dépend du milieu, et de la durée de l'impulsion. Cette contribution est nulle pour les gaz atomiques ou moléculaires symétriques, ce qui n'est pas le cas de l'air.
Quand il y a effet Kerr retardé, l'indice non linéaire présente un front avant plus raide (fig. 3.9(a)). La variation $\delta\omega(t)$ de la fréquence instantanée par rapport à la fréquence d'origine est représentée figure 3.9(b)). La création de fréquences dans le rouge est ainsi favorisée [3.13, 3.17].

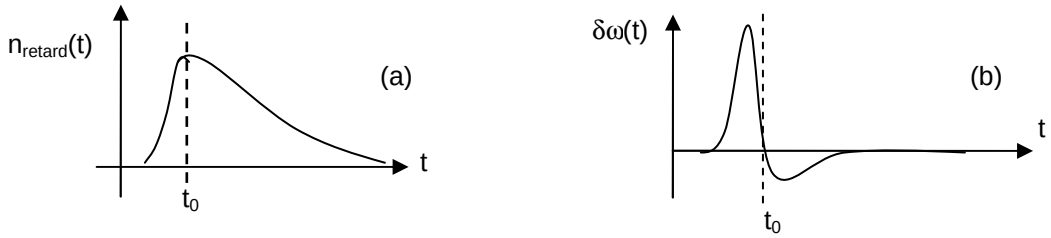

Figure 3.9 : Contribution de l'effet Kerr retardé

L'effet Kerr retardé est d'autant plus important que l'impulsion est courte [3.17]. Ce phénomène n'est pas négligeable dans nos expériences.

2.3. Influence de la phase spectrale du troisième ordre

L'influence de la phase spectrale du troisième ordre sur la valeur de transmission s'est avérée critique. La globalité de nos expériences a montré qu'un ajout très important de phase spectrale cubique négative ($\varphi^{(3)} = -200{,}000\ fs^3$) était indispensable pour obtenir un rendement convenable (environ 20%). Une phase cubique négative correspond à l'ajout de pré-impulsions sur le profil temporel.

Deux points à commenter apparaissent. D'une part, une grande quantité de phase (en valeur absolue) est requise. D'autre part, la phase cubique doit être négative. En effet, si la phase spectrale du troisième ordre ajoutée est positive, le rendement est alors très faible (quelques %).

2.3.1. Hypothèses : code de simulation complet

Durant nos travaux, le CEA/DRECAM a développé un code complexe, prenant en compte, dans l'approximation paraxiale, les modulations spatio-temporelles gaussiennes de l'impulsion, l'automodulation de phase et la modulation de phase croisée, le potentiel d'ionisation de l'air et l'effet Kerr retardé.

Les modélisations reproduisant les conditions de l'expérience valident la nécessité d'une très grande quantité de phase cubique.

Les quantités combinées de $\varphi^{(2)}$ et $\varphi^{(3)}$ définissent la répartition temporelle de l'énergie de l'impulsion considérée. La figure 3.10(a) représente l'allure temporelle de l'impulsion, pour différentes valeurs de $\varphi^{(3)}$, avec $\varphi^{(2)} = 7000\, fs^2$ fixé à la valeur expérimentale. L'intensité est normalisée par rapport à celle de l'impulsion parfaitement comprimée ($\varphi^{(2)} = 0$, $\varphi^{(3)} = 0$).
Cette figure montre que les grandes quantités en valeur absolue de phase cubique ($\varphi^{(3)} > 100{,}000\ fs^3$) correspondent alors à des changements significatifs du profil temporel.

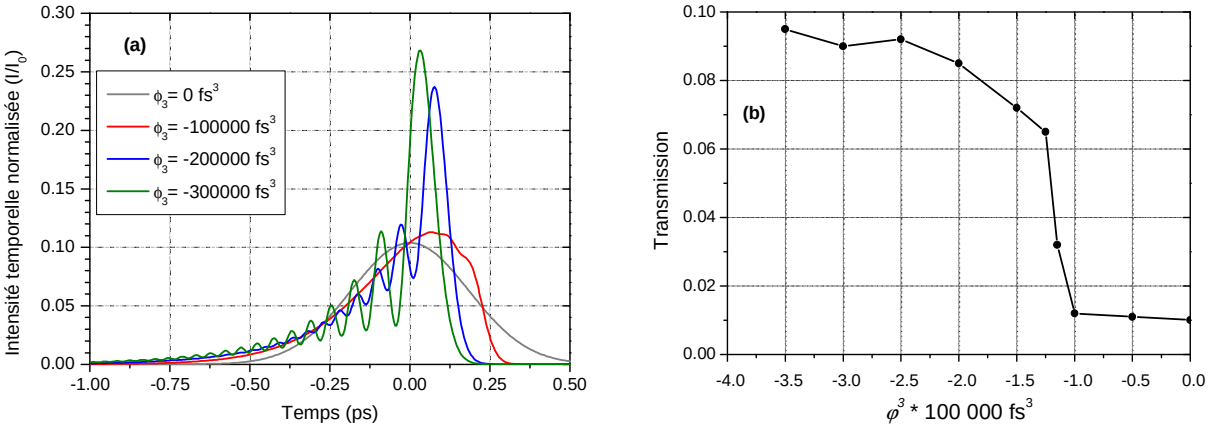

Figure 3.10: (a) Intensité temporelle normalisée de l'impulsion avant filtrage pour différentes valeurs de $\varphi^{(3)}$ ($\varphi^{(2)} = 7000\, fs^2$). I_0 est l'intensité obtenue pour $\varphi^{(2)} = 0$, $\varphi^{(3)} = 0$.
(b) Transmission théorique correspondante pour différentes valeurs de $\varphi^{(3)}$ ($\varphi^{(2)} = 7000\, fs^2$).

D'une part, des pré-impulsions sont générées, nous y reviendrons par la suite.
D'autre part, l'intensité crête de l'impulsion principale est finement ajustée. Ainsi, à une quantité donnée de phase cubique correspond une valeur d'intensité crête à laquelle est associée la transmission du filtre, comme le montre la figure 3.10(b). Aux grandes valeurs de $\varphi^{(3)}$ (en valeur absolue) correspond une bonne transmission.

Nous remarquons cependant que le meilleur rendement obtenu d'après le code n'excède pas 10%, soit deux fois moins que les mesures expérimentales.

L'ajustement de l'intensité crête de l'impulsion n'est pas la seule influence de la phase cubique sur le fonctionnement du filtre. En effet, un autre moyen expérimental d'ajuster la valeur de l'intensité est de diminuer l'énergie incidente. Même avec une énergie plus faible, sans ajout de

phase spectrale, la transmission du filtre n'atteint pas 23%. De plus, la transmission expérimentale reste très faible si la quantité de phase spectrale du troisième ordre est positive.

L'importance capitale du signe de cette quantité n'est pas reproduite par le modèle. Soulignons tout de même que la prise en compte de l'effet Kerr retardé dans le programme de simulation a permis d'améliorer légèrement (quelques %) la transmission dans le cas $\varphi^{(3)} < 0$ par rapport au cas $\varphi^{(3)} > 0$. Il est possible que les pré-impulsions dues à la phase cubique négative, bien que moins intenses, activent l'effet Kerr retardé pour le passage de l'impulsion principale. En effet, le délai de ce phénomène est de l'ordre d'une centaine de femtosecondes [3.18]. L'influence de cet effet pourrait être sous-estimée par le code.

2.3.2. Signe de la phase cubique : cas du xénon

Des expériences complémentaires réalisées avec du xénon, gaz noble dont la réponse non linéaire est instantanée, tendent à confirmer l'hypothèse selon laquelle l'influence du signe de la phase cubique est très vraisemblablement liée à l'effet Kerr retardé. Le milieu non linéaire employé est alors une cellule de gaz xénon. La pression de gaz est variable et permet d'ajuster la non linéarité du milieu. A pression atmosphérique, l'indice non linéaire du xénon vaut 8×10^{-23} m^2W^{-1} [3.17]. Cette valeur varie linéairement avec la pression. Pour comparaison, celui de l'air à pression atmosphérique est de 3.2×10^{-23} m^2W^{-1}. Le potentiel d'ionisation du xénon est comparable à celui de l'air [3.13].

Expérimentalement, la possibilité de contrôler la non-linéarité du milieu permet une plus grande souplesse sur les paramètres laser, notamment en ce qui concerne la phase spectrale. Les résultats expérimentaux suivants sont obtenus pour $\varphi^{(2)} = 0$.

La figure 3.11 représente l'efficacité de transmission expérimentale du filtre en fonction de la pression de gaz, pour trois valeurs différentes de phase spectrale cubique : $\varphi^{(3)} = 0$, $\varphi^{(3)} = 100{,}000\ fs^3$, et $\varphi^{(3)} = -100{,}000\ fs^3$.

La transmission varie quadratiquement avec la non-linéarité du milieu, comme prévu par le modèle théorique dont les résultats sont présentés dans le premier paragraphe de ce chapitre (p. 56).

A pression constante, l'efficacité obtenue pour $\varphi^{(3)} \neq 0$ est moins élevée que si la phase est nulle, car cela entraîne une diminution de l'intensité crête $\left(I\left(\varphi^{(3)} \neq 0\right) < I\left(\varphi^{(3)} = 0\right)\right)$.

D'autre part, les courbes de rendement obtenues pour $\varphi^{(3)} = 100{,}000\ fs^3$ et $\varphi^{(3)} = -100{,}000\ fs^3$ suivent exactement la même dépendance. Le problème de l'irréversibilité du signe de la phase du troisième ordre n'existe pas dans cette disposition.

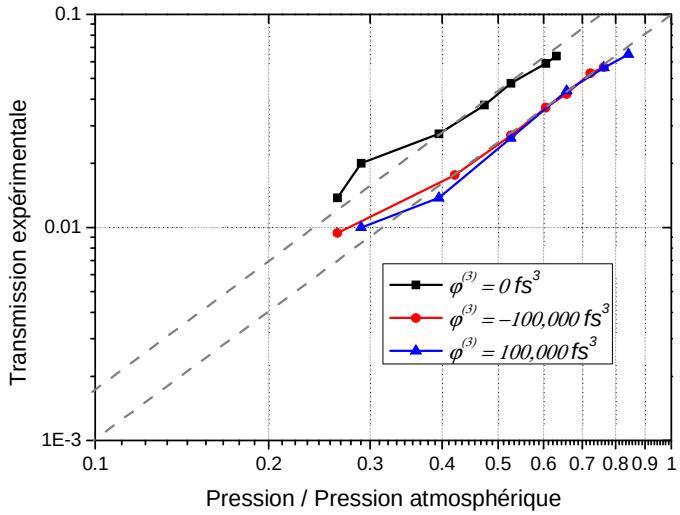

Figure 3.11 : Transmission expérimentale en fonction de la pression de xénon, pour différentes valeurs de phase cubique ($\varphi^{(3)} = 0$, $\varphi^{(3)} = 100{,}000\ fs^3$, et $\varphi^{(3)} = -100{,}000\ fs^3$). Les droites figurent une dépendance quadratique.

Ces résultats confirment l'influence de la contribution non linéaire retardée de l'air sur l'importance du signe de la phase spectrale du troisième ordre.

Nous n'avons pas donné suite à cette configuration pour l'application au filtrage, car l'efficacité maximale de transmission mesurée est de 7%. De plus, le spectre de l'impulsion était fortement modulé.

2.4. Conclusion

Les conditions expérimentales permettant la meilleure transmission dans l'air ont été déterminées. Les quantités suivantes de phase spectrale doivent être ajoutées à l'impulsion initiale grâce au compresseur et au Dazzler de la chaîne : $\varphi^{(2)} = 7000\ fs^2$ et $\varphi^{(3)} = -200{,}000\ fs^3$.

Ces valeurs sont combinées pour obtenir les caractéristiques du profil temporel (pré-impulsions et intensité crête) optimisées pour la rotation de polarisation elliptique dans l'air.

Ces grandes valeurs de phase nécessaires sont un inconvénient du filtre et demandent un ajustement quotidien.

Dans cette configuration, le rendement du filtre est d'environ 23%. L'impulsion filtrée possède donc une énergie de l'ordre de 190 µJ qu'il est nécessaire de caractériser.

3. Caractérisation de l'impulsion initiale et de l'impulsion filtrée

3.1. Configuration retenue : caractérisation de l'impulsion initiale

3.1.1. Allure temporelle et phase spectrale

Rappelons les quantités de phase spectrale ajoutée à l'impulsion initiale : $\varphi^{(2)} = 7000\, fs^2$ et $\varphi^{(3)} = -200{,}000\, fs^3$. La mesure SPIDER de cette impulsion permet de connaître expérimentalement l'allure de l'intensité temporelle et de la phase spectrale (fig. 3.12).

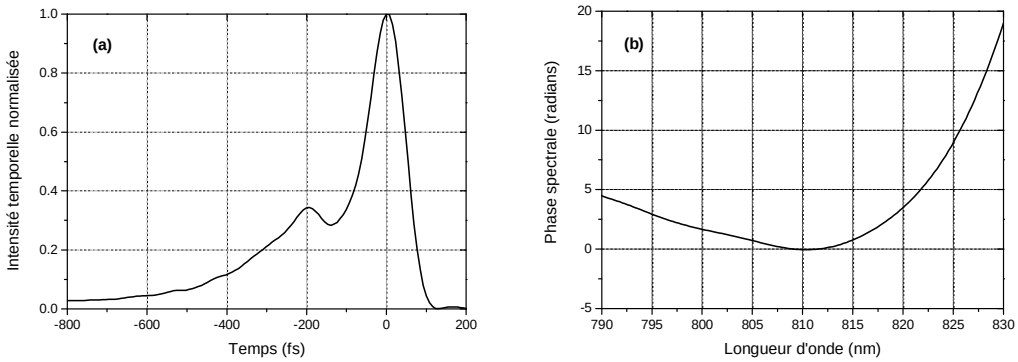

Figure 3.12 : Mesure SPIDER (a) intensité temporelle, (b) phase spectrale de l'impulsion initiale.

Le profil temporel de l'impulsion montre bien une dissymétrie très importante générée par la phase cubique. La durée de l'impulsion principale donnée par la mesure est de 120 fs.

Pour évaluer l'intensité de l'impulsion au foyer, il faut considérer que celle-ci est plus longue que l'impulsion parfaitement comprimée et que la phase spectrale distribue de l'énergie dans les pré-impulsions. Nous considérons donc la courbe théorique de la figure 3.10(a) (p. 61). Cette courbe montre que $\dfrac{I\left(\varphi^{(2)} = 7000\, fs^2, \varphi^{(3)} = -200000\, fs^3\right)}{I\left(\varphi^{(2)} = 0\, fs^2, \varphi^{(3)} = 0\, fs^3\right)} \approx 0.25$.

L'intensité au foyer de l'impulsion comprimée étant 3.10^{14} Wcm^{-2}, nous estimons que l'intensité crête au foyer dans les conditions de l'expérience vaut $\mathbf{7.10^{13}\ Wcm^{-2}}$.

Un point important est l'ionisation du milieu. Pour la valeur d'intensité de l'impulsion lors de l'interaction, d'après [3.19], le ratio d'ionisation de l'azote est seulement de 10^{-5}. On peut donc penser que l'ionisation ne joue pas un rôle majeur dans le processus.

3.1.2. Phase non linéaire accumulée

Il est possible d'évaluer la quantité de phase non linéaire accumulée par effet Kerr :

$$\phi_{NL} = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 L I \,. \qquad (2.7)$$

L'indice non linéaire de l'air vaut 3.2×10^{-19} cm^2W^{-1}.
En admettant que la longueur d'interaction correspond à la distance de Rayleigh, nous obtenons une valeur minimale de la phase non linéaire accumulée pendant la propagation : $\phi_{NL} \approx 2.9\, rad$.

Pour cette valeur de phase non linéaire, l'automodulation de phase n'est pas négligeable, comme nous l'avait montré l'évolution du spectre de l'impulsion lors du filtrage (p. 59). L'automodulation de phase peut ultérieurement nuire à la qualité temporelle de l'impulsion.

D'autre part, d'après la courbe de rendement théorique apparaissant figures 3.5 et 3.6 (p. 55, 56), $\phi_{NL} \approx 2.9\, rad$ correspond à une efficacité de transmission de 20% environ. Cette valeur est proche de la valeur expérimentale (23%). Pourtant, le calcul est effectué pour des ondes planes. La valeur réelle de transmission devrait tenir compte des modulations spatio-temporelles de l'onde, et donc être plus faible.
Il faut rappeler que ce modèle ne prenait en compte ni l'ionisation éventuelle du milieu, ni l'effet Kerr retardé, dont l'influence a été démontrée.
De plus, la valeur de ϕ_{NL} est certainement sous-estimée puisque la longueur d'interaction n'est pas connue précisément.

Il est désormais nécessaire de mesurer le contraste temporel de l'impulsion filtrée, ainsi que ses caractéristiques spectrales et spatiales.

3.2. Amélioration du contraste temporel : corrélation grande dynamique

L'amélioration du contraste a été évaluée au moyen d'un corrélateur grande dynamique commercial (*Sequoïa*, prêté par la société Amplitude Technologies). Les signaux injectés dans l'appareil avant et après filtrage sont de même énergie (190 µJ) et parcourent le même trajet optique (montage polarimétrique). Ainsi les corrélations obtenues sont directement comparables. Les résultats apparaissent figure 3.13.

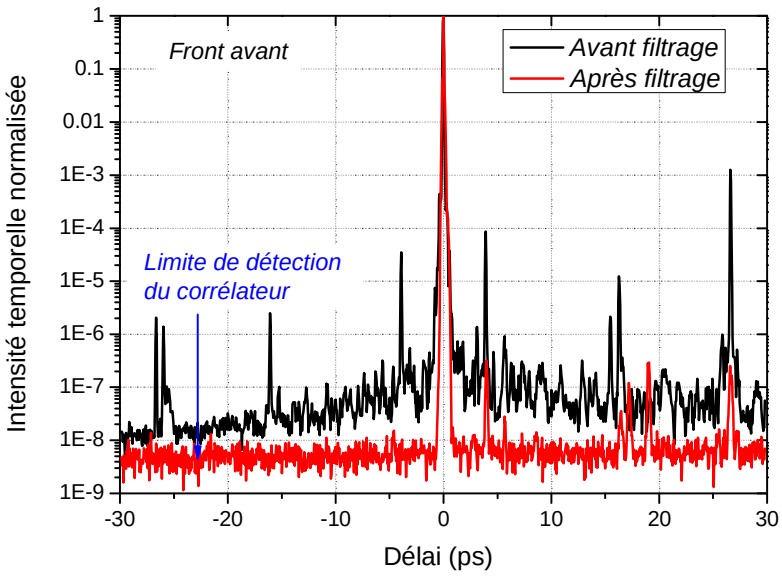

Figure 3.13 : Corrélation grande dynamique de l'impulsion avant et après filtrage. Le rendement de conversion est alors de 20%. La limite de détectivité de l'appareil est 4×10^{-9}.

L'impulsion initiale présente un fond d'émission spontanée amplifiée d'intensité relative 2×10^{-8} à ± 20 ps autour de l'impulsion principale. Un grand nombre d'impulsions parasites sont présentes, essentiellement dues aux éléments polarisants de l'amplificateur régénératif. Pour la valeur d'énergie disponible pour la mesure, la limite de détectivité du corrélateur utilisé était de 4×10^{-9}. En conséquence, après filtrage, le fond d'ASE n'est pas visible, la dynamique de mesure n'est pas suffisante. On observe tout de même que les flancs caractéristiques de l'impulsion sur la plage temporelle ± 10 ps sont lissés après filtrage, les fronts de montée de l'impulsion sont très raides. Les pré-impulsions ont également disparu, ce qui permet d'estimer l'amélioration du contraste entre 3 et 4 ordres de grandeur. Cette valeur correspond au taux d'extinction du montage polarimétrique. Les post-impulsions résiduelles apparaissant sur les deux courbes sont générées par les lames d'onde.

3.3. Caractérisation spatiale de l'impulsion filtrée

Un autre point important pour l'utilisation ultérieure de l'impulsion est l'évolution spatiale du faisceau lors du filtrage. Le faisceau filtré ne montre aucune distorsion spatiale, comme illustré figure 3.14. La figure 3.15 représente une coupe horizontale (a) et verticale (b) du faisceau avant et après filtrage. Les images ont été enregistrées en champ proche, après l'analyseur.

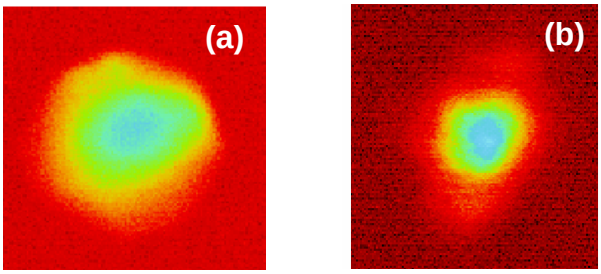

Figure 3.14 : Images du profil spatial du faisceau avant (a) et après (b) filtrage.

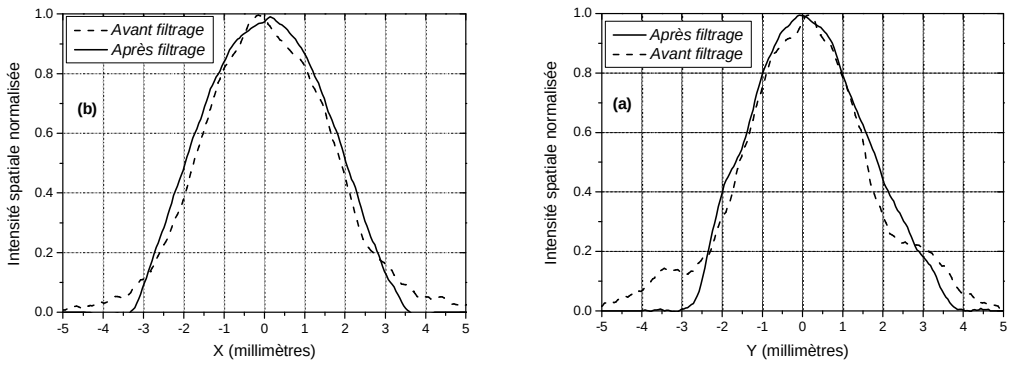

Figure 3.15 : Coupes des profils spatiaux X (a) et Y (b) avant et après filtrage.

L'absence de distorsion du profil spatial est une qualité indispensable pour envisager l'amplification de cette impulsion.

3.4. Caractérisation spectrale de l'impulsion filtrée

Le spectre de l'impulsion mesuré après filtrage est celui de la figure 3.8(a), de nouveau représenté figure 3.16(a). Une mesure SPIDER a été effectuée pour mesurer la phase spectrale de l'impulsion filtrée. Le résultat apparaît sur la figure 3.16 (b).

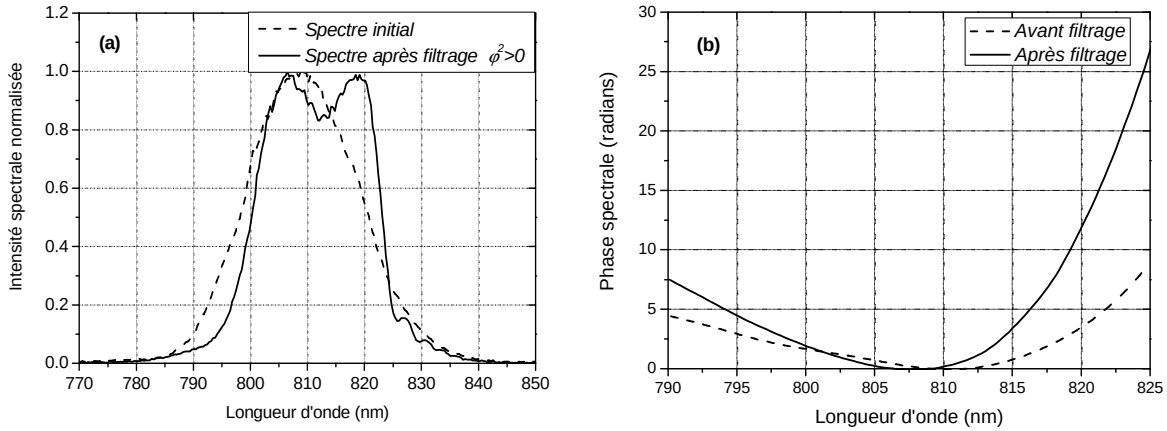

Figure 3.16 : Mesure du spectre (a) et mesure SPIDER de la phase spectrale (b) de l'impulsion avant et après filtrage. Le rendement de conversion est d'environ 23%.

Un fit au quatrième ordre de cette phase est calculé sur la plage spectrale 790 nm – 825 nm.

$$\varphi(\lambda)=\frac{1}{2}\left[2\pi c\left(\frac{1}{\lambda}-\frac{1}{\lambda_0}\right)\right]^2\varphi^{(2)}+\frac{1}{6}\left[2\pi c\left(\frac{1}{\lambda}-\frac{1}{\lambda_0}\right)\right]^3\varphi^{(3)}+\frac{1}{24}\left[2\pi c\left(\frac{1}{\lambda}-\frac{1}{\lambda_0}\right)\right]^4\varphi^{(4)} \qquad (3.9)$$

Les valeurs de fit calculées sont $(\lambda_0 = 810nm)$:

$\varphi^{(2)} = 10400\, fs^2$, $\varphi^{(3)} = -220000\, fs^3$, $\varphi^{(4)} = 190\, fs^4$.

Le résiduel a une amplitude de 0.5 rad.

Les valeurs sont bien sûr très élevées car nous avons ajouté initialement une importante quantité de phase spectrale. A cette quantité s'ajoute la dispersion des éléments et la phase accumulée par effet Kerr. Cependant, il faut noter que la phase mesurée après filtrage est continue et n'est pas distordue. Elle peut être compensée lors de l'étirement et l'amplification pour le deuxième CPA, à l'aide d'un deuxième Dazzler par exemple.

Le besoin d'ajouter puis de compenser autant de phase pour un fonctionnement correct du filtre reste tout de même un inconvénient du dispositif.

4. Conclusion

Les expériences de polarisation elliptique par biréfringence induite dans l'air ont montré que le filtre non linéaire fonctionne au millijoule. Sous certaines conditions de phase spectrale, la transmission est élevée (23%), les impulsions générées ont une énergie de près de 200 μJ. La qualité spatiale du faisceau est préservée. L'amélioration du contraste, bien que la mesure soit limitée par la dynamique de l'appareil, est estimée être déterminée par le montage polarimétrique. Le contraste peut donc être augmenté de 3 à 4 ordres de grandeur.

Deux modèles théoriques ont été développés. Ils permettent de comprendre une partie des tendances observées expérimentalement.

Les résultats présentés ont donné lieu à une publication [3.20].

Cependant, la phase spectrale initiale nécessaire au bon fonctionnement du filtre est bien sûr une contrainte. L'ajout de phase demande un ajustement quotidien et il est indispensable de compenser après filtrage ces quantités énormes. Des observations similaires concernant l'influence de la phase sur l'efficacité de ce filtre ont été relevées, pour le deuxième ordre, par [3.21].

De plus, l'automodulation de phase est responsable de la modulation du spectre, ce qui peut nuire ultérieurement aux qualités temporelles de l'impulsion.

Kalashnikov *et al.*, partenaires du contrat SHARP, ont développé au Max Born Institut de Berlin le premier double CPA expérimental. Le filtre non linéaire de ce système est similaire au procédé que je viens de caractériser. Il s'agit de rotation de polarisation elliptique dans l'air d'un faisceau millijoule dans une configuration multipassages [3.21, 3.22]. Plusieurs focalisations successives du faisceau allongent la longueur d'interaction et la transmission atteint alors 40%. Après amplification de l'impulsion filtrée, une corrélation grande dynamique montre un front arrière fortement perturbé. Ceci correspond peut être en partie aux distorsions temporelles causées par la phase non linéaire accumulée.

Enfin, ce filtre est très instable. Le système a été testé sur une autre chaîne laser du laboratoire et les caractéristiques sont difficilement reproductibles. La transmission est extrêmement sensible au profil spatial incident. Le filtre n'est pas implémentable de manière définitive pour une utilisation quotidienne.

L'étude des modifications de polarisation d'une onde polarisée elliptiquement lors de sa propagation dans des milieux cristallins dont la susceptibilité non linéaire est anisotrope est développée dans le chapitre 5.

BIBLIOGRAPHIE :

[3.1] H. G. Winful (1985), *"Self-induced polarization changes in birefringent optical fibers"*, Applied Physics Letters 47, 213.

[3.2] B. Nikolaus, D. Grischkowsky, and A. C. Balant (1983), *"Optical pulse reshaping based on the nonlinear birefringence of single-mode optical fibers"*, Optics Letters 8, 189-191.

[3.3] J. L. Tapie and G. Mourou (1992) *"Shaping of clean, femtosecond pulses at 1.053 μm for chirped-pulse amplification"*, Optics Letters 17, 136-138.

[3.4]. Y. Beaudoin, C. Y. Chien, J. S. Coe, J. L. Tapie and G. Mourou (1992) *"Ultrahigh-contrast Ti:sapphire/Nd:glass terawatt laser system"*, Optics Letters 17, 865-867.

[3.5] M. Horowitz and Y. Silberberg (1997) *"Nonlinear filtering by use of intensity-dependent polarization rotation in birefringent fibers"*, Optics Letters 22, 1760-1762.

[3.6]. R. W. Boyd (1992), *"Nonlinear Optics"* (Academic Press, Boston), p. 167-171.

[3.7] R. H. Stolen, I. Botineau and A. Ashkin (1982), *"Intensity discrimination of optical pulses with birefringent fibers"*, Optics Letters 7, 512-514.

[3.8] K. Sala, M. Richardson and N. Isenor (1977), *"Passive mode locking of lasers with the optical Kerr effect modulator"*, IEEE Journal of Quantum Electronics QE-13, 915.

[3.9] M. Lefkir and G. Rivoire (1997), *"Influence of transverse effects on measurement of third-order nonlinear susceptibility by self-induced polarization state changes"*, Journal of Optical Society of America B 14, 2856-2864.

[3.10] K. Sala and M. C. Richardson (1978) *"A passive non resonant technique for pulse contrast enhancement and gain isolation"*, Journal of Applied Physics 49, 2268.

[3.11] D. Homoelle, A. L. Gaeta, V. Yanovsky and G. Mourou (2002) *"Pulse contrast enhancement of high-energy pulses by use of a gas-filled hollow waveguide"*, Optics Letters 27, 1646-1648.

[3.12] C. Dorrer, B. de Beauvoir, C. Leblanc, S. Ranc, J. P. Rousseau, P. Rousseau, J. P. Chambaret and F. Salin (1999) *"Single-shot real-time characterization of chirped-pulse amplification systems by spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction"*, Optics Letters 24, 1644-1646.

[3.13] J. F. Ripoche (1998) *"Mesure du profil temporel exact d'impulsions laser femtosecondes intenses"*, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique.

[3.14] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, C. Spielmann and P. Tournois (2000) *"Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter : pulse compression and shaping"*, Optics Letters 25, 575-577.

[3.15] G. Chériaux (1997) *"Influences des distorsions de phase sur le profil d'impulsions femtosecondes dans l'amplification à derive de frequences"*, Thèse de doctorat de l'Université Paris XI.

[3.16] E. T. J. Nibbering, M. A. Franco, B. S. Prade, G. Grillon, J. P. Chambaret and A. Mysyrowicz (1996) *"Spectral determination of the amplitude and the phase of intense ultrashort optical pulses"*, Journal of Optical Society of America B, 13, 317-329.

[3.17] E. T. J. Nibbering, G. Grillon, M. A. Franco, B. S. Prade and A. Mysyrowicz (1997) *"Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N2 and O2 by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses"*, Journal of Optical Society of America B, 14, 650-660.

[3.18] A. Chiron, B. Lamouroux, R. Lange, J. F. Ripoche, M. Franco, B. Prade, G. Bonnaud, G. Riazuelo and A. Mysyrowicz (1999) *"Numerical simulations of the nonlinear propagation of femtosecond optical pulses in gases"*, The European Physical Journal D 6, 383-396.

[3.19] C. Cornaggia and P. Hering (2000) *"Nonsequential double ionization of small molecules induced by a femtosecond laser field"*, Physical Review A 62, 023403.

[3.20] A. Jullien, F. Auge-Rochereau, G. Chériaux, J. P. Chambaret, P. D'Oliveira, T. Auguste and F. Falcoz (2004) *"High-efficiency, simple setup for pulse cleaning at the millijoule level by nonlinear induced birefringence"*, Optics Letters 29, 2184-2186.

[3.21] M. P. Kalashnikov, E. Risse, H. Schönnagel and W. Sandner (2005) *"Double CPA : a way to temporally clean pulses ?"*, Optics Letters 30, 923-925.

[3.22] M. P. Kalashnikov, E. Risse, H. Schönnagel, A. Husakou, J. Herrmann and W. Sandner (2004) *"Characterization of a nonlinear filter for the front-end of a high contrast double-CPA Ti:sapphire laser"*, Optics Express 12, 5088.

Chapitre 4

Génération d’une onde polarisée orthogonalement dans des cristaux non linéaires

Chapitre 4

Génération d'une onde polarisée orthogonalement dans des cristaux non linéaires

1. Introduction au processus de génération de polarisation croisée 75

1.1. Modèle théorique "simplifié" 76

1.1.1. Hypothèses 76

1.1.2. Equations couplées d'évolution des champs dans le cristal 76

1.1.3. Interprétation 77

- Dépendance du rendement avec l'orientation du cristal 78
- Dépendance du rendement avec l'intensité 79

1.2. Résultats expérimentaux préliminaires 80

1.2.1. Choix du cristal 80

1.2.2. Efficacité de conversion XPW à 620 nm 81

1.3. Intérêts du processus XPW pour le filtrage non linéaire 83

2. Efficacité de conversion du processus XPW 85

2.1. Modèle théorique complet : cas d'une onde plane 85

2.2. Efficacité effective 86

2.3. Limites expérimentales de l'efficacité de conversion XPW (un cristal) 88

2.4. Dispositif XPW incluant deux cristaux : amélioration de l'efficacité de conversion 90

2.4.1. Interférences d'ondes XPW 90

2.4.2. Application du dispositif à deux cristaux : rendement à haute intensité (800 nm) 92

2.4.3. Dispositif d'imagerie entre les cristaux 93

- Imagerie passive 93
- Imagerie active : lentille de Kerr 94

3. Estimation de l'amélioration du contraste 98

4. Conclusion 101

Bibliographie 102

Dans le cadre de l'étude de phénomènes non linéaires d'ordre trois modifiant la polarisation d'une onde pour l'application au filtrage d'impulsions ultra-brèves, le chapitre 3 a montré les limites de la rotation de polarisation elliptique par biréfringence induite dans l'air.

Nous nous intéressons donc désormais à la génération d'une onde polarisée orthogonalement (XPW pour *cross-polarized wave*) à partir d'une onde de polarisation linéaire se propageant dans un cristal. La première mise en évidence expérimentale de cette conversion a été réalisée dans un cristal de β-borate de baryum (BBO) [4.1]. Dans ce cas, la génération de polarisation croisée résulte d'une cascade d'effets non linéaires du deuxième ordre, équivalente à un effet du troisième ordre. Le rendement de transmission est alors très faible pour des impulsions à spectre large, en raison de l'accord de phase nécessaire.

Nous allons nous consacrer au phénomène de génération de polarisation croisée gouverné directement par la partie réelle de la susceptibilité non linéaire du troisième ordre de matériaux cristallins, tels que le vanadate d'yttrium (YVO_4) [4.2] ou encore le fluorure de baryum (BaF_2).

Les résultats présentés dans ce chapitre et les suivants font l'objet d'une collaboration active avec Nikolaï Minkovski, Stoïan Kourtev et Solomon Saltiel de l'Université de Sofia, en Bulgarie.

Ce chapitre s'organise de la manière suivante : j'expose d'abord les fondements théoriques du processus, ainsi que quelques résultats expérimentaux préliminaires. Ensuite, en vue de l'application au filtrage temporel, je développerai deux points particulièrement importants : l'efficacité de conversion du processus et l'amélioration du contraste attendue.

1. Introduction au processus de génération de polarisation croisée

Au cours du chapitre 2 (p. 38-43), j'ai étudié de manière théorique les modifications de la polarisation subies par une onde se propageant dans un milieu cristallin, cubique ou tétragonal, dont la susceptibilité non linéaire $\chi^{(3)}$ est anisotrope $(\sigma \neq 0)$. Lorsque cette onde est polarisée linéairement, j'ai montré que, sous certaines conditions d'orientation du cristal, une onde polarisée orthogonalement est générée.

Le modèle théorique alors développé prend en compte, pour des ondes planes, tous les processus de mélange à quatre ondes impliqués lors de l'interaction.

Dans ce paragraphe, nous proposons un modèle plus simple, qui permet de comprendre les comportements observés numériquement et expérimentalement. Ce modèle a été amplement développé par Minkovski *et al.* [4.3].

Les observations résultantes seront confrontées aux premiers résultats expérimentaux de génération de polarisation croisée, obtenus à 620 nm.

1.1. Modèle théorique "simplifié"

1.1.1. Hypothèses

La polarisation incidente sur le cristal est linéaire et se propage le long de l'axe *z* du cristal, axe de symétrie d'ordre 4. Le cristal est caractérisé par ses axes *(xyz)*, qui définissent le repère de calcul. Soit β l'angle entre l'axe *x* et la direction de polarisation incidente (fig. 4.1). Soient *A* et *B* les amplitudes respectives du champ fondamental et du champ généré avec une polarisation croisée (XPW) pendant l'interaction.

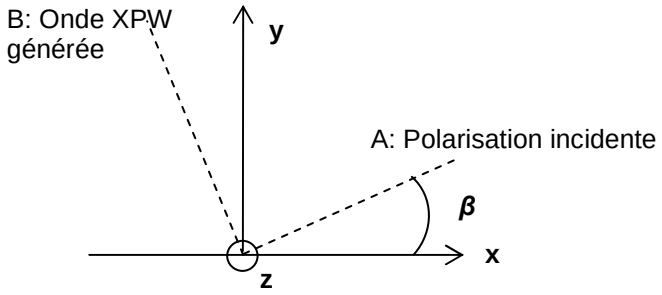

Figure 4.1 : Champs A et B impliqués dans le processus non linéaire, axes cristallographiques du cristal (xyz), angle β.

1.1.2. Equations couplées d'évolution des champs dans le cristal

Le calcul est effectué pour des ondes planes, dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable. En prenant en compte uniquement l'automodulation de phase sur la polarisation d'entrée et le transfert d'énergie de *A* vers *B*, sans déplétion du champ fondamental ($B<A$), le système d'équations décrivant l'évolution des champs *A* et *B* s'écrit :

$$\frac{dA}{dz} = i\gamma_0\left[1-\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)\right]|A|^2 A \qquad \textit{(4.1(a))}$$

$$\frac{dB}{dz} = i\gamma_0\frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|A|^2 A \qquad \textit{(4.1(b))}$$

Je rappelle les expressions de :

$$\gamma_0 = \frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx} \qquad (4.2)$$

$$\sigma = \frac{\chi^{(3)}_{xxxx} - 2\chi^{(3)}_{xyyx} - \chi^{(3)}_{xxyy}}{\chi^{(3)}_{xxxx}} \qquad (4.3)$$

Les effets d'automodulation de la phase du faisceau initial et de génération de polarisation croisée dépendent tous deux de σ et de l'angle β, mais dans des proportions différentes.
Pour une meilleure lisibilité des équations, nous posons :

$$\gamma_1 = \gamma_0\left[1 - \frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)\right] \qquad (4.4)$$

$$\gamma_2 = -\gamma_0\frac{\sigma}{4}\sin(4\beta) \qquad (4.5)$$

Soit :

$$\frac{dA}{dz} = i\gamma_1|A|^2 A \qquad (4.6(a))$$

$$\frac{dB}{dz} = -i\gamma_2|A|^2 A \qquad (4.6(b))$$

1.1.3. Interprétation

Dans le cadre de ces approximations, définissons le rendement de conversion η comme le rapport d'intensité entre *B* et *A* après propagation dans le milieu non linéaire de longueur *L*.
La résolution des équations *(4.6)*, avec comme conditions initiales $A(0) = A_0$ et $B(0) = 0$ donne :

$$A(L) = A_0\exp(-i\gamma_1 A_0^2 L) \qquad (4.7(a))$$

$$B(L) = A_0\frac{\gamma_2}{\gamma_1}\left[\exp.(-i\gamma_1 A_0^2 L) - 1\right] \qquad (4.7(b))$$

η s'écrit alors [4.3] :

$$\boxed{\eta = \left|\frac{B(L)}{A(L)}\right|^2 \propto \left(\frac{\gamma_2}{\gamma_1}\right)^2 \sin^2\left(\gamma_1\frac{A_0^2 L}{2}\right)} \qquad (4.8)$$

Le rendement η dépend de la valeur de σ (fixée par le cristal utilisé) et de l'angle β à travers γ_1 et γ_2.

η présente également une dépendance en fonction du terme $A_0^2 L$. La grandeur relative pertinente pour les simulations est $\gamma_0 A_0^2 L$. A_0^2 est proportionnel à l'intensité crête incidente sur le cristal $\left(I_0 = \frac{c\varepsilon_0 n_0}{2} A_0{}^2 \right)$.

Etudions séparément l'évolution du rendement en fonction des deux paramètres β et $A_0^2 L$. Dans les simulations, σ est pris égal à -1.2 (voir paragraphe 1.2.1, p. 80-81).

- *Dépendance du rendement avec l'orientation du cristal, $A_0^2 L$ fixé.*

L'orientation du cristal est modifiée en tournant celui-ci dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation. La figure 4.2 représente l'évolution théorique du rendement XPW en fonction de β, à basse intensité incidente (a) et haute intensité (b).

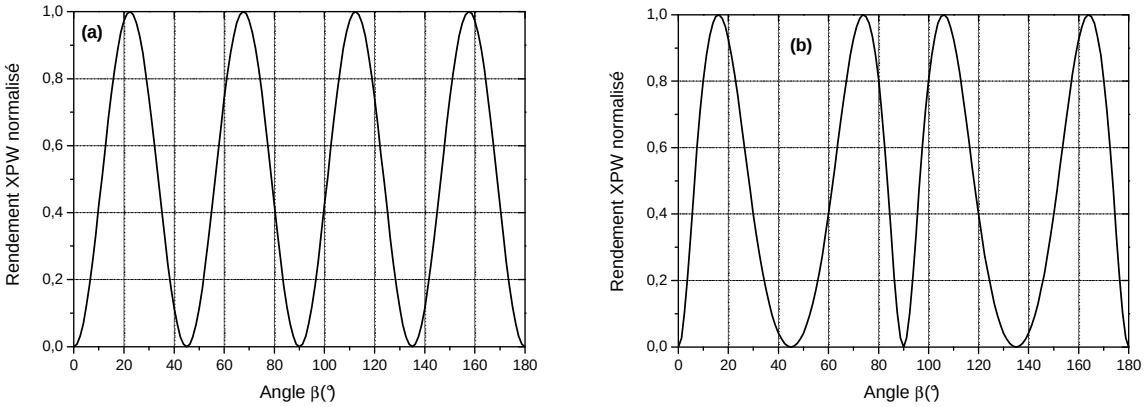

Figure 4.2 : Rendement XPW théorique en fonction de β, σ = -1.2.
(a) : $\gamma_0 A_0^2 L = 0.3$; (b) : $\gamma_0 A_0^2 L = 3$.

Notons que pour les longueurs de matériau considérées (*L* vaut quelques millimètres), le régime significatif d'intensité crête incidente sur le cristal pour la génération de polarisation croisée est de l'ordre de 10^{11}-10^{12} Wcm^{-2} (cf chapitre 6).

A basse intensité, c'est-à-dire $\gamma_1 A_0^2 L < 1$, l'équation *(4.8)* se simplifie :

$$\eta = \gamma_2^2 A_0^4 L^2 \propto \sigma^2 \sin^2(4\beta) \qquad (4.9)$$

η est alors directement proportionnel à $\sin^2(4\beta)$, ce qui explique la courbe sinusoïdale de période $\frac{\pi}{4}$ selon β observée figure 4.2(a). Les maxima de signal XPW sont obtenus pour $\beta = \frac{\pi}{8} \pm m\frac{\pi}{4}$.

A haute intensité ($A_0^2 L$ grand), l'équation *(4.8)* ne se simplifie pas. Les termes en γ_1 dépendent de β, et modifient l'évolution de η. La dépendance du rendement selon β s'éloigne d'une loi sinusoïdale et présente une dissymétrie (fig. 4.2(b)).

- *Dépendance de η avec $A_0^2 L$, angle β fixé.*

L'orientation du cristal est optimisée (classiquement $\beta = 22.5°$). Comme le montre l'équation *(4.8)*, le rendement, à bas flux, est une fonction quadratique du produit $A_0^2 L$. Si $A_0^2 L$ augmente davantage, cette dépendance n'est plus vérifiée et η présente des oscillations sinusoïdales (fig. 4.3).

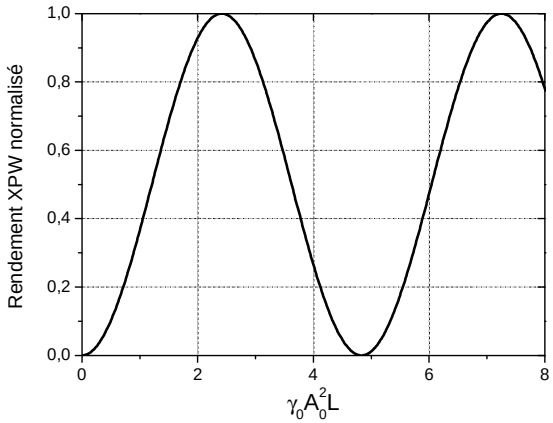

Figure 4.3 : Rendement XPW théorique en fonction de $\gamma_0 A_0^2 L$ pour β=22.5°, $\sigma = -1.2$.

La raison de cette évolution périodique, toujours en considérant des ondes planes, est l'accumulation de différence de phase non linéaire entre les deux ondes qui empêche l'amplification cohérente du signal XPW tout au long du cristal.

Ce modèle théorique a permis de vérifier les points fondamentaux de la génération de polarisation croisée établis au chapitre 2 :

- la dépendance en fonction de σ (nécessité de $\sigma \neq 0$)
- la périodicité du rendement en fonction de β.

Nous avons également mis en évidence, à bas flux, la dépendance quadratique du rendement avec l'intensité incidente sur le cristal et la longueur du cristal.

1.2. Résultats expérimentaux préliminaires

1.2.1. Choix du cristal

Avant de détailler les critères qui régissent le choix du cristal, précisons que les valeurs d'anisotropie de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois de matériaux sont relativement peu répandues dans la littérature. La liste des cristaux cités par la suite est donc non exhaustive. Notons qu'une manière expérimentale d'accéder à cette valeur est le protocole expérimental "Z-scan", utilisé généralement pour déterminer la valeur de l'indice non linéaire [4.4, 4.5].

Le cristal requis doit satisfaire plusieurs critères. En premier lieu, il possède au moins un plan isotrope en optique linéaire, ce qui correspond par exemple aux symétries cristallines cubiques ou tétragonales. Ainsi, deux ondes polarisées orthogonalement dans ce plan ne présentent pas d'écart de vitesse de groupe.

Bien sûr, le matériau doit être transparent pour les longueurs d'onde utiles (600 nm, 800 nm, 1.06 μm) c'est-à-dire présenter un gap supérieur à 4 eV. Les semi-conducteurs dont l'anisotropie est connue sont éliminés ainsi que d'autres cristaux, tels que le KDP ou le TiO_2 [4.6].

Une fois cette sélection effectuée, le tableau 4.1 regroupe les propriétés de quelques cristaux dont l'anisotropie σ est répertoriée :

Cristaux	**Symétrie**	**Gap (eV)**	**n_2 (10^{-20} m^2W^{-1})**	**σ**
YVO_4	Tétragonal	6	16 [4.3]	+ 0.95 [4.3]
BaF_2	Cubique	9.21 [4.6]	2 [4.7, 4.8]	- 1.2 [4.5, 4.7]
CaF_2	Cubique	9.92 [4.6]	1.3 [4.7]	- 0.6 [4.7]
CdF_2	Cubique	9.54 [4.6]	11.7 [4.7]	+ 0.04 [4.7]
MgF_2	Tétragonal	11.27 [4.6]	0.7 [4.7]	
LiF	Cubique	11.60 [4.6]	0.7 [4.7]	- 0.35 [4.7]
NaCl	Cubique	7.21 [4.6]	4.7 [4.7]	- 0.29 [4.7]
MgO	Cubique	7.77 [4.6]	4.7 [4.7]	- 0.63 [4.7]

Tableau 4.1 : Symétrie et propriétés non linéaires (λ = 1 μm) de quelques cristaux dont l'anisotropie σ est non nulle en vue d'une application au processus de génération de polarisation croisée.

On établit alors une préférence pour les cristaux de symétrie cubique au détriment des structures tétragonales. En effet, tous les plans d'un cristal tétragonal ne sont pas isotropes. Si

l'onde incidente ne se propage pas exactement le long de l'axe *z* du cristal, un signal parasite généré par biréfringence linéaire se mêle au signal XPW. L'orientation d'un tel échantillon est donc extrêmement critique, ce qui a été vérifié lors des premières expériences de génération de polarisation croisée utilisant un cristal d'yttrium de vanadate (YVO_4, groupe de symétrie *4/mmm*) [4.3]. Un cristal cubique, dont tous les plans sont isotropes, ne présente pas cet inconvénient.

Ensuite rappelons que le rendement de conversion XPW dépend de $\chi^{(3)}_{xxxx}$, à travers γ_0, et de σ. Le choix du cristal tient compte de ces deux valeurs. Idéalement, le cristal doit présenter une forte valeur d'anisotropie pour optimiser le rendement XPW et une valeur d'indice non linéaire modérée pour limiter l'automodulation de phase durant le processus. Cette constatation rend inutilisable un cristal tel que le fluorure de cadmium (CdF_2) dont l'anisotropie est extrêmement faible et l'indice non linéaire élevé.

Enfin, d'une manière plus pratique, certains cristaux sont très sensibles à l'humidité, fragiles, ou difficiles à faire croître. C'est le cas par exemple des cristaux de NaCl, LiF ou MgO.

D'après ces informations, le meilleur candidat est le fluorure de baryum (BaF_2). Ce cristal sera utilisé pour toutes les expériences. C'est un cristal cubique centrosymétrique (groupe de symétrie *m3m*). Ses caractéristiques non linéaires sont un bon compromis puisque son anisotropie σ vaut -1.2, valeur élevée en absolu, alors que son indice non linéaire est modéré $\chi^{(3)}_{xxxx} = 1.59\times10^{-22}\, m^2V^{-2}$ soit $n_2 = 2\times10^{-20}\, m^2W^{-1}$. Ces caractéristiques laissent présager une bonne efficacité de conversion XPW, sans automodulation de phase excessive, ce qui sera vérifié par la suite.

En conclusion, remarquons que le fluorure de calcium (CaF_2) pourrait éventuellement être employé et qu'il serait utile de mesurer l'anisotropie d'autres cristaux cubiques (YAG, …).

1.2.2. Efficacité de conversion XPW à 620 nm

Les expériences auxquelles fait référence l'article [4.3] ont été réalisées avec le laser à colorants du laboratoire émettant à 620 nm des impulsions d'une durée de 100 fs. Ce type de lasers fait partie de la première génération des lasers femtosecondes [4.9].

L'oscillateur est un laser à colorants en anneau qui fonctionne en mode impulsionnel grâce au blocage de modes par collision des impulsions, ou CPM pour *Colliding-Pulse Mode-locking*. Le milieu de gain est la rhodamine 6G dissoute dans un jet d'éthylène glycol, pompé en continu par un laser argon. Le blocage de modes passif est réalisé par la présence dans le résonateur d'un autre jet d'éthylène glycol teinté par le colorant DODCI (absorbant saturable) pour synchroniser les modes

en phase. Enfin des prismes de compression temporelle intra-cavité compensent la dispersion de vitesse de groupe. Cet oscillateur émet des impulsions de 50 fs, à 620 nm, à une cadence de 100 MHz. L'amplification de ces impulsions se fait directement, sans étirement, par simple passage dans des amplificateurs à colorants pompés par un laser Nd :YAG. L'énergie totale de la chaîne est de quelques millijoules.

Les impulsions utilisées pour les expériences de XPW ont une énergie maximale de 60 μJ à une cadence de 10 Hz, et une durée de 100 fs. Le laser est focalisé avec une lentille f = 300 mm sur un cristal de BaF_2, 10 mm × 10 mm, non traité antireflet, d'épaisseur 1 mm, repéré par son angle β.

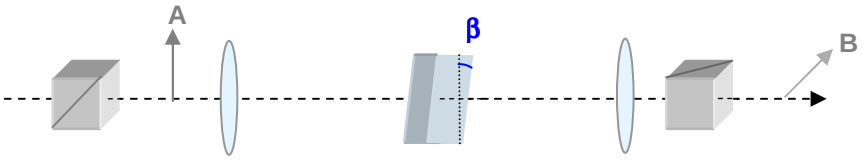

Figure 4.4 : Dispositif expérimental de génération de XPW.

L'intensité crête incidente sur le cristal est de l'ordre de 10^{11}-10^{12} Wcm^{-2}. J'aurai par la suite l'occasion de revenir sur ce point. Le cristal est placé entre polariseur et analyseur croisés (fig. 4.4). L'analyseur permet de transmettre l'onde convertie.

Il est possible de vérifier que le cristal a été convenablement taillé en tournant celui-ci dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation. A énergie incidente modérée et fixée, le signal XPW doit présenter des maxima égaux tous les 45° (cf fig. 4.2, p. 78).

L'orientation du cristal étant optimisée, la courbe expérimentale de rendement XPW à 620 nm en fonction de l'énergie incidente, comprise entre 1 μJ et 80 μJ, apparaît figure 4.5.

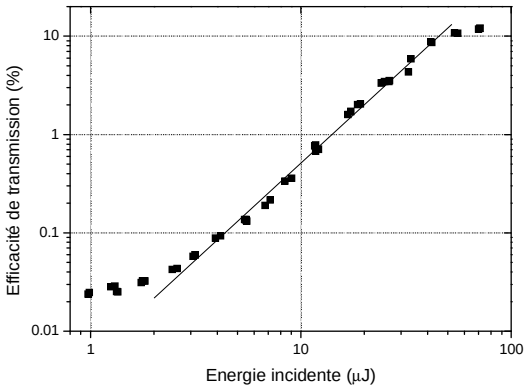

Figure 4.5 : Courbe expérimentale de rendement XPW en fonction de l'énergie incidente pour un cristal de BaF_2 de 1 mm. La droite figure une dépendance quadratique.

Le cristal n'étant jamais déplacé au cours de l'expérience, l'énergie est bien sûr directement proportionnelle à l'intensité incidente.

Les premiers points de mesure obtenus pour une énergie incidente inférieure à 2 μJ correspondent au bruit dû à la biréfringence résiduelle du cristal. La dépendance quadratique du rendement avec l'intensité est vérifiée. La saturation de l'efficacité intervient à environ 10%, l'énergie incidente est alors d'environ 50 μJ, la dépendance quadratique n'est plus valide.

Le modèle théorique utilisé dans ce paragraphe ne peut s'appliquer que pour un rendement de conversion de quelques pour-cent (hypothèse de non déplétion du champ A). Il ne permet donc pas d'expliquer la valeur observée pour la saturation. Pour cela, il est nécessaire de compléter le modèle par la prise en compte de tous les processus non linéaires impliqués et le caractère fini de l'intensité spatio-temporelle de l'onde. C'est l'objet de la deuxième partie de ce chapitre.

1.3. Intérêts du processus XPW pour le filtrage non linéaire

La génération de polarisation croisée paraît particulièrement appropriée au nettoyage temporel d'impulsions femtosecondes. Le processus lui-même présente trois principaux avantages.

C'est un effet non linéaire du troisième ordre. L'onde générée présente donc une dépendance temporelle cubique par rapport à l'onde incidente, ce qui laisse prévoir une importante diminution du piédestal d'ASE et de l'intensité des impulsions parasites.

De plus, comme l'efficacité de conversion dépend de la valeur de l'intensité crête de l'impulsion sur le cristal, le filtre pourra être adapté sur des chaînes laser de diverse durée, de diverse énergie, en ajustant la taille du faisceau sur le cristal. En effet, nous avons obtenu des rendements équivalents, présentés au cours des chapitres 4, 5 et 6, sur des sources de durée comprise entre 45 fs et 300 fs, et d'énergie allant du microjoule au millijoule. Il est même envisageable de filtrer des impulsions plus énergétiques.

Enfin, l'utilisation d'un matériau cristallin solide comme milieu d'interaction laisse présager une meilleure stabilité que celle obtenue par la méthode de filtrage par plasma dans l'air présentée au chapitre précédent.

D'autre part, le cristal retenu, BaF_2, présente lui aussi plusieurs avantages immédiats.

Il est cubique en optique linéaire, les deux ondes polarisées orthogonalement sont automatiquement en accord de phase et se propagent à la même vitesse. Cette propriété autorise une

conversion XPW dans des cristaux de longueur quelques millimètres avec des distorsions spatiales et spectrales minimes.

La valeur de l'indice non linéaire est modérée, le processus de conversion n'introduit donc pas d'automodulation de phase excessive, nous aurons l'occasion de le vérifier.

Dans le même temps, la valeur importante de σ autorise des efficacités de conversion correctes, 10% démontrés expérimentalement dans le paragraphe précédent. Cette valeur de transmission permet d'envisager l'implémentation du filtre dans une chaîne laser.

Enfin, le gap de ce matériau est de 9.1 eV, il est donc transparent sur une large bande spectrale. Les valeurs des coefficients du tenseur $\chi^{(3)}$ ne varient pas dans le visible et le proche infrarouge [4.8]. Cela rend le processus adéquat pour les impulsions à spectre très large et pour divers systèmes laser. Effectivement, les paragraphes et chapitres suivants montrent que des rendements équivalents sont obtenus à 620 nm, 800 nm et 1057 nm, longueurs d'onde des actuelles chaînes laser femtosecondes.

D'excellentes conditions sont réunies pour mettre au point un filtre non linéaire fonctionnel, efficace et robuste, basé sur la génération de polarisation croisée dans du BaF_2.

Le support théorique explique correctement les comportements observés expérimentalement selon l'orientation du cristal et l'augmentation de l'intensité incidente. Il peut être amélioré pour estimer l'efficacité de conversion maximale et l'exacte amélioration du contraste prévisible.

2. Efficacité de conversion du processus XPW

2.1. Modèle théorique complet : cas d'une onde plane

Pour poursuivre les simulations, nous utilisons le modèle théorique complet présenté au chapitre 2 (p. 42). Il inclut tous les processus intervenant lors de l'interaction (automodulation de phase, génération de polarisation croisée, modulation de phase croisée, autres mélanges à quatre ondes). La déplétion du champ fondamental est prise en compte. La loi de conservation de l'énergie est respectée.

Dans les équations couplées *(2.16)*, pour faciliter la résolution numérique, les termes sont regroupés selon leur dépendance en fonction de β :

$$\frac{dA}{dz} = i\gamma_1 |A|^2 A - i\gamma_2 \left(|B|^2 B - A^2 B^* - 2|A|^2 B \right) + i\gamma_3 \left(2|B|^2 A + B^2 A^* \right) \qquad \textit{(4.10(a))}$$

$$\frac{dB}{dz} = i\gamma_1 |B|^2 B + i\gamma_2 \left(|A|^2 A - B^2 A^* - 2|B|^2 A \right) + i\gamma_3 \left(2|A|^2 B + A^2 B^* \right) \qquad \textit{(4.10(b))}$$

Avec :

$\gamma_1 = \gamma_0 \left[1 - \frac{\sigma}{2} \sin^2(2\beta) \right]$, $\gamma_2 = -\gamma_0 \frac{\sigma}{4} \sin(4\beta)$, $\gamma_3 = \gamma_0 \left[\frac{\sigma}{2} \sin^2(2\beta) + \frac{1-\sigma}{3} \right]$ et $\gamma_0 = \frac{6\pi}{8\lambda n_0} \chi^{(3)}_{xxxx}$.

Les conditions initiales du processus XPW en polarisation linéaire sont toujours : $A(0) = A_0$ et $B(0) = 0$.

Avec le logiciel de calcul formel Maple, j'ai adapté un programme permettant de résoudre numériquement les équations d'évolution des champs *(4.10)* pour différentes configurations. Remarquons que ce programme général est adaptable à tout milieu non linéaire, dont la susceptibilité du troisième ordre est anisotrope ou non, pour une polarisation incidente linéaire ou elliptique.

Ce modèle permet de calculer l'efficacité de conversion XPW selon divers paramètres.

Tout d'abord, la figure 4.6(a) représente l'évolution de l'efficacité en fonction de $\gamma_0 A_0^2 L$, β étant fixé à sa valeur usuelle de 22.5°. γ_0 est fixe pour un milieu non linéaire donné.

Sur cette courbe, $0 < \gamma_0 A_0^2 L < 8$. Cependant, remarquons qu'expérimentalement, $\gamma_0 A_0^2 L < 6$, nous aurons l'occasion de le vérifier.

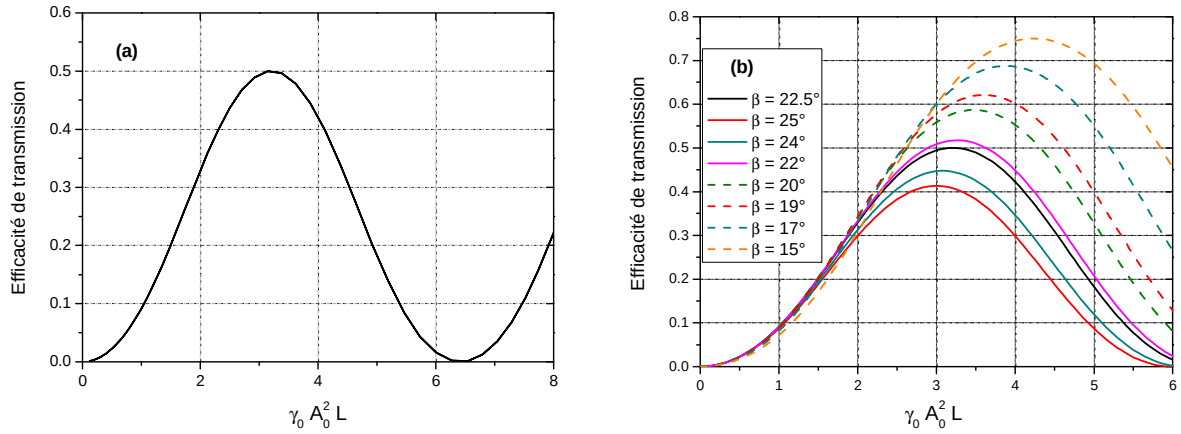

Figure 4.6 : Transmission théorique dans le cas d'une onde plane en fonction de $A_0^2 \times L$ pour β=22.5° (a) et pour différentes valeurs de β (b).

On retrouve un comportement sinusoïdal (paragraphe 1.1.3, p. 79). Là encore la raison de l'oscillation du signal XPW est la phase non linéaire accumulée pendant la propagation ou lors de l'augmentation de l'intensité. Le rendement maximal que l'on peut atteindre est d'environ 50%.

En fait, cette valeur maximale pour le cas idéal d'une onde plane dépend fortement de la valeur de β, comme l'illustre la figure 4.6(b). Si on augmente la valeur de $A_0^2 L$, la valeur de β donnant le meilleur rendement n'est plus 22.5° mais $15° < \beta < 20°$. Cette déviation a déjà été observée au cours du premier paragraphe de ce chapitre (fig. 4.2(b), p. 78). L'influence de β est capitale. Le rendement maximum peut dépasser alors 70%.

Ceci n'est valide que pour une onde étendue infiniment dans l'espace et le temps.

2.2. Efficacité effective

Pour compléter cette étude et considérer des ondes réelles, c'est-à-dire finies spatialement et temporellement, nous définissons η_{eff}, l'efficacité théorique effective pour des ondes présentant une modulation d'intensité spatiale et temporelle.

En première approximation, $\eta_{eff} = K\eta$.

η est l'efficacité pour une onde plane à laquelle est appliqué un facteur correctif K obtenu en intégrant simplement les distributions d'intensités élevées au cube lors de l'interaction $\left(I_{XPW}(x,y,t) \propto I_0^3(x,y,t)\right)$.

Pour une onde gaussienne spatialement et possédant une forme temporelle gaussienne également (cas usuel), $K = \frac{8}{45}$. Le calcul de cette valeur est détaillé en annexe (p. 189). Il est par ailleurs intéressant de noter que K atteint 0.48 pour un faisceau qui aurait un profil spatial supergaussien d'ordre élevé, voire rectangulaire (*top-hat*). Une solution pour augmenter l'efficacité de conversion est donc de mettre en forme le faisceau pour que la distribution d'intensité soit uniforme en champ lointain, dans le plan du cristal.

Nous avons procédé à l'intégration numérique des équations couplées *(4.10)* en prenant en compte une modulation d'intensité temporelle et spatiale. Dans ce cas d'onde réelle, les contributions d'intensité différente constituant l'onde diminuent l'influence de la valeur de β relevée au paragraphe précédent (fig. 4.6(b)). Ainsi, le rendement global calculé pour une onde réelle est pratiquement équivalent pour $15° < \beta < 25°$ dans la gamme des valeurs de $\gamma_0 A_0^2 L$ considérées ($\gamma_0 A_0^2 L \leq 6$).

Dans toute la suite, nous considérerons pour les calculs que β vaut 22.5°.

La figure 4.7 représente l'efficacité du processus pour différentes formes d'impulsions et de faisceaux en fonction de I×L.

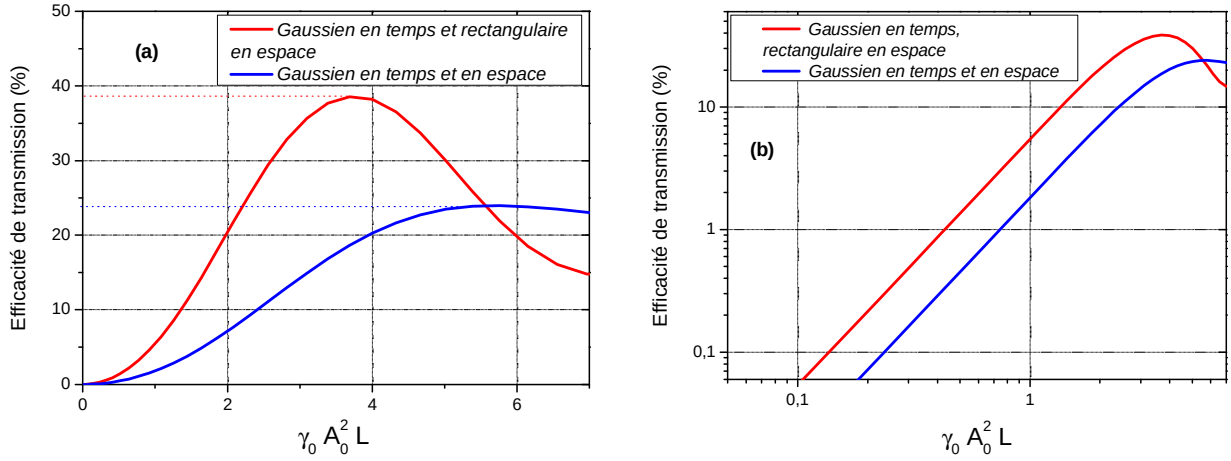

Figure 4.7 : Evolution de l'efficacité de conversion en fonction de $\gamma_0 A_0^2 L$, pour différentes distributions spatiales et temporelles. (a) : échelle linéaire. (b) : échelle logarithmique.

Si l'impulsion présente une forme spatiale et temporelle gaussienne, les oscillations sinusoïdales du rendement disparaissent, un palier est atteint. En effet, du point de vue spatial et temporel, l'onde est constituée d'une infinité de contributions d'intensité différente. Les efficacités de conversion de chacune de ces contributions s'équilibrent et créent un rendement moyen.

Le rendement maximum de conversion est alors environ 24%. Cette valeur passerait à 38% avec un faisceau spatialement *top-hat*. Il est néanmoins difficile d'obtenir un tel profil spatial en champ lointain.

Ces deux courbes suivent une dépendance quadratique avec $A_0^2 \times L$ jusqu'au-delà de 10% de rendement (fig. 4.7(b)).

Ces observations sont liées à la non-linéarité du processus et au caractère fini des ondes. Les résultats peuvent être comparés directement aux études expérimentales, essentiellement le cas gaussien-gaussien. Cette configuration correspond en effet aux faisceaux expérimentaux que nous employons. L'efficacité de conversion XPW peut donc dépasser 20%.

2.3. Limites expérimentales de l'efficacité de conversion XPW (un cristal)

Pour illustrer ces considérations, nous souhaitons atteindre un rendement expérimental proche de la valeur théorique maximale en étudiant l'influence d'une part de l'intensité incidente et d'autre part de la longueur du cristal.

Des mesures ont été effectuées avec le laser CPA à 800 nm présenté au chapitre 3 (p. 52) et des cristaux de BaF_2 de différente longueur. Le laser, dont l'énergie est variable entre 20 μJ et 200 μJ, est focalisé avec une lentille de 1 m. Les cristaux sont positionnés dans le plan focal.

La figure 4.8(a) représente la transmission XPW mesurée en fonction de l'énergie incidente pour un cristal fin de 2 mm et un cristal plus épais de 6 mm.

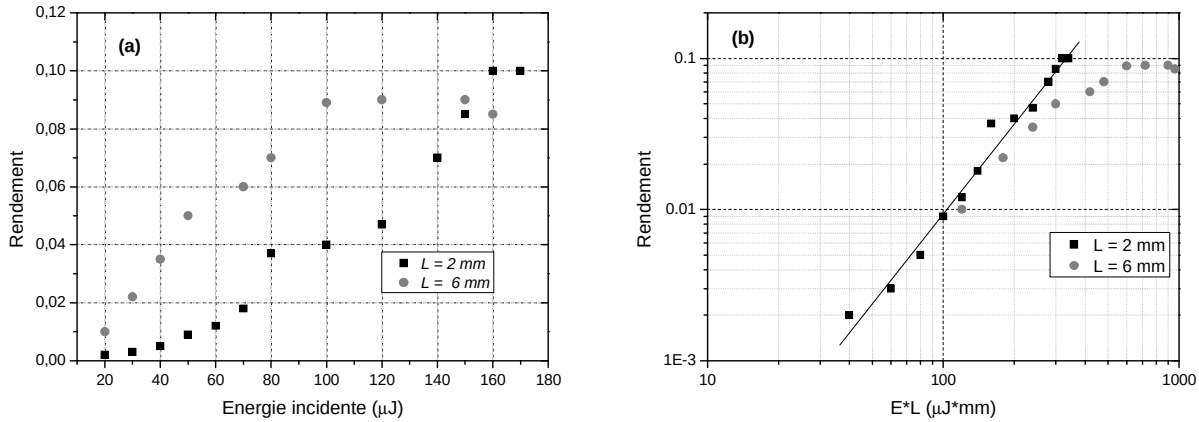

Figure 4.8 : Efficacité de conversion comparée pour des cristaux de 2 mm et 6 mm.
(a) Rendement en fonction de l'énergie incidente, échelle linéaire.
(b) Rendement en fonction de Energie×Longueur, échelles logarithmiques.
La droite figure une dépendance quadratique.

Le rendement maximal obtenu pour les deux configurations est environ 10%, comme mesuré à 620 nm (cf fig. 4.5, p. 82).

Pour une meilleure comparaison avec les courbes théoriques du paragraphe précédent, j'ai tracé en échelle logarithmique le rendement mesuré en fonction du produit *Energie incidente (E)* × *Longueur du cristal (L)* (fig. 4.8(b)). La section du faisceau sur le cristal et la durée de l'impulsion ne varient pas au cours de l'expérience. L'intensité crête *I* est donc proportionnelle à *E*. L'abscisse du graphe est ainsi proportionnelle au produit $I \times L$ et l'allure de la courbe est comparable aux courbes théoriques.

Dans le cas du cristal de 2 mm, l'efficacité suit la loi quadratique théorique jusqu'au rendement maximal, de 10%, atteint pour une énergie incidente de 160 µJ. Au-delà de cette valeur, un continuum est généré et le seuil de dommage du cristal est quasiment atteint. Il n'est donc pas possible d'augmenter davantage l'intensité pour atteindre la valeur de transmission maximale théorique.

Le cas du cristal de 6 mm est différent mais guère plus efficace. La courbe expérimentale suit très peu la dépendance quadratique en intensité. A produit $I \times L$ constant, le cristal de 2 mm est toujours plus efficace. De plus, la transmission obtenue avec le cristal long amorce une saturation dès 5% et atteint difficilement 10%. La lentille de Kerr générée à ces hautes intensités par l'interaction semble être à l'origine du phénomène. L'autofocalisation du faisceau fondamental, qui n'est en effet pas prise en compte dans le modèle théorique, entraîne une augmentation de l'intensité du faisceau. Cela génère trop d'automodulation de phase pour une conversion efficace et entraîne l'apparition de continuum et points chauds qui endommagent le cristal dans son volume. Je reviendrai sur le rôle de la lentille de Kerr, désastreux pour un cristal long, à la fin de ce paragraphe.

En conclusion, deux limites empêchent l'augmentation de l'efficacité de conversion du processus XPW du dispositif incluant un unique cristal.

D'une part, l'autofocalisation du faisceau fondamental rend les cristaux épais, c'est-à-dire plus longs que 2 mm ou 3 mm) inutilisables, des phénomènes parasites apparaissent qui empêchent une conversion efficace. D'autre part, le seuil de dommage de la surface du cristal empêche, pour des cristaux fins, d'augmenter suffisamment l'intensité incidente pour dépasser 10% d'efficacité.

2.4. Dispositif XPW incluant deux cristaux : amélioration de l'efficacité de conversion

Ce problème est résolu en utilisant un filtre incluant plusieurs cristaux fins (1 mm ou 2 mm). Nous avons développé un schéma à deux cristaux. Ce dispositif permet de prolonger la dépendance quadratique du rendement avec $I \times L$ au-delà de 10% et d'obtenir de meilleures efficacités. Le principe repose sur les interférences constructives des signaux XPW générés dans les deux cristaux imagés l'un sur l'autre.

2.4.1. Interférences d'ondes XPW

La démonstration est pour l'instant limitée aux basses intensités et je considère le cas de deux cristaux.

Le premier cristal génère un champ XPW nommé E_{XPW}. En supposant que le champ incident n'est pas déplété, celui-ci génère dans le deuxième cristal, correctement orienté, un autre champ XPW, $E_{XPW}' = \rho E_{XPW}$ où ρ est le rapport d'efficacité entre les deux cristaux. Dans la plupart des cas expérimentaux, les deux cristaux ont la même longueur. Les champs E_{XPW} et E_{XPW}' résultent du même effet dans le même matériau, où l'accord de phase est parfaitement réalisé, ils présentent donc les mêmes caractéristiques temporelles. De plus, si les deux cristaux sont imagés l'un sur l'autre, ce point sera explicité par la suite, le profil spatial du signal incident est similaire sur les deux échantillons, E_{XPW} et E_{XPW}' sont donc spatialement identiques et ρ vaut 1. En conséquence, ces deux champs peuvent interférer dans le deuxième cristal et l'efficacité globale est multipliée par 4 par rapport à l'efficacité du seul premier cristal.

Le laser à colorants a permis la validation expérimentale de ce phénomène. Le schéma de l'expérience est représenté figure 4.9, deux cristaux identiques de longueur 1 mm sont placés près du foyer d'une lentille de 500 mm. Nous notons β_1 et β_2 les angles respectifs entre l'axe x cristallographique du premier et du second cristal et la direction de polarisation incidente, dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation.

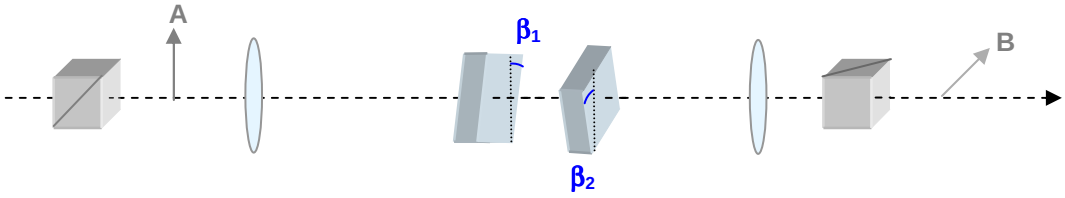

Figure 4.9 : Dispositif expérimental de génération de polarisation croisée incluant deux cristaux.

Je rappelle que l'amplitude du champ XPW généré par un seul cristal s'exprime :

$$B_1(\beta_1) \propto \sin(4\beta_1) \qquad (4.11)$$

Comme les deux cristaux sont situés l'un après l'autre, la dépendance angulaire de l'intensité finale s'écrit de la forme :

$$(B_2(\beta_1, \beta_2))^2 \propto (\sin(4\beta_1) + \sin(4\beta_2))^2 \qquad (4.12)$$

Lorsque le premier cristal est fixé à une orientation : $\beta_1 = \frac{\pi}{8} + m\frac{\pi}{4}$ (positions des maxima d'intensité), l'intensité du signal XPW s'exprime comme :

$$(B_2(\beta_1, \beta_2))^2 \propto (1 + \sin(4\beta_2))^2 \qquad (4.13)$$

Un schéma à deux cristaux transmettra donc quatre fois plus de signal qu'un seul cristal, pour les angles $\beta_2 = \frac{\pi}{8} + m\frac{\pi}{2}$.

Les résultats expérimentaux apparaissent figure 4.10. La courbe représentant la transmission obtenue avec un seul cristal en fonction de β_1 est habituelle.

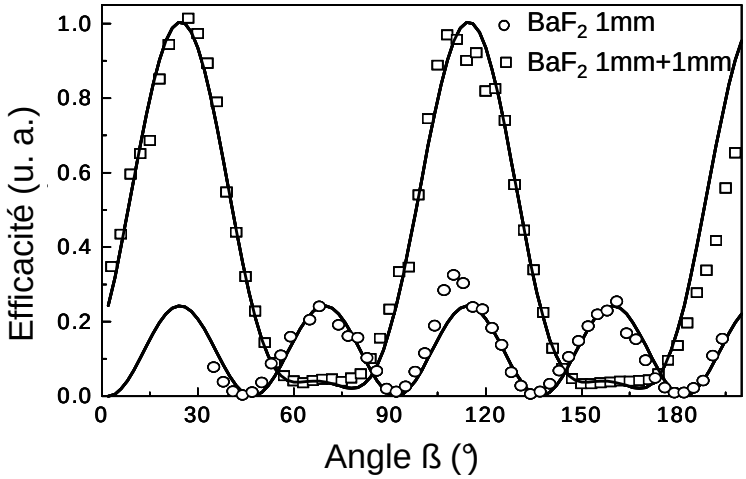

Figure 4.10 : Evolution de l'efficacité en fonction des angles β pour un et deux cristaux. Dans le cas des deux cristaux, β_1 est fixé et vaut 22.5°, β_2 est variable.

Nous constatons surtout que, dans le cas de deux cristaux, lorsque l'orientation du premier est optimisée et fixée, la rotation du deuxième cristal dans le plan *(xy)* permet soit la suppression du signal XPW lorsque les interférences sont destructives, soit une augmentation de l'efficacité d'un facteur 4 pour des interférences constructives. Les estimations théoriques correspondantes apparaissent en ligne continue sur la figure, en bon accord avec les mesures. Les calculs utilisent le modèle détaillé dans les paragraphes précédents, pour les basses intensités. Pour ces niveaux

d'intensité, ce schéma incluant deux cristaux identiques a théoriquement la même efficacité qu'un seul cristal, de longueur double.

Nous avons montré la possibilité de générer des interférences constructives entre les signaux XPW émis dans deux cristaux distincts.

2.4.2. Application du dispositif à deux cristaux : rendement à haute intensité (800 nm)

Afin d'étudier à plus haute intensité le schéma incluant deux cristaux, nous l'avons testé dans les mêmes conditions que celles présentées au paragraphe 2.3, avec le laser à 800 nm. Les courbes comparées d'efficacité en fonction de l'intensité pour un cristal de 2 mm, un cristal de 6 mm et deux cristaux de 2 mm apparaissent figure 4.11.

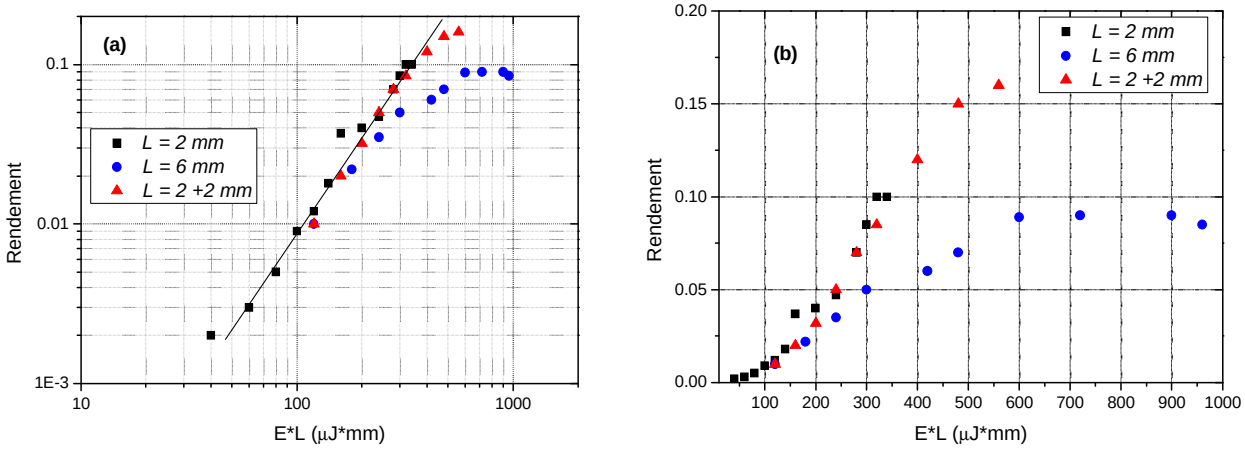

Figure 4.11 : Efficacité de conversion comparée pour des cristaux de 2 mm, 6 mm, deux cristaux de 2 mm.
(a) Rendement en fonction de Energie×Longueur, échelles logarithmiques.
La droite figure une dépendance quadratique.
(b) Rendement en fonction de Energie×Longueur, échelles linéaires.

Dans le cas du dispositif à deux cristaux, le premier est placé au foyer de la lentille de focalisation et fixe, la position du second est optimisée selon l'énergie incidente. Pour le meilleur rendement, la distance entre les deux cristaux est d'environ 5 cm (cf paragraphe suivant).

Sur la courbe (a), les efficacités des trois dispositifs sont tracées en échelle logarithmique. On voit ainsi que le schéma (2 mm + 2 mm) suit parfaitement la loi quadratique prévue. Pour un produit $I \times L$ fixé, l'efficacité est la même que pour le simple cristal de 2 mm. Cela signifie que pour un rendement donné, l'intensité incidente est deux fois moindre sur le système à deux cristaux, car la quantité de matériau traversé est double. Mais le fait que deux cristaux distincts soient utilisés nous affranchit du problème d'autofocalisation dans des cristaux longs.

Uniquement dans ces conditions, la dépendance quadratique du rendement avec $I \times L$ est prolongée au-delà de 10%. Il est possible d'augmenter le rendement global jusqu'à 17% avec ce faisceau (fig. 4.11(b)). La courbe d'efficacité des deux cristaux quitte alors la loi quadratique, comme le prévoient les calculs théoriques pour une onde gaussienne dans l'espace et le temps. La saturation intervient pour un rendement de 17% car le faisceau expérimental n'est pas parfaitement gaussien. Nous verrons (chapitre 6) que si le faisceau incident est spatialement très propre, le rendement obtenu avec deux cristaux de 2 mm dépasse 20%.

L'intensité incidente sur chaque cristal est réduite, l'utilisation de deux cristaux minces permet d'éviter l'autofocalisation du faisceau dans le cristal. La qualité des cristaux est donc préservée, le processus gagne en stabilité et est assez fiable pour être reproductible de manière routinière. Dans le même temps, le rendement obtenu avec ce dispositif est meilleur qu'avec un unique cristal et peut atteindre environ 20%.

Le filtre basé sur l'utilisation de plusieurs cristaux (ou plusieurs passages dans un cristal) dont les signaux XPW interfèrent permet d'optimiser totalement le processus de génération de polarisation croisée. Ce dispositif fait l'objet d'un dépôt de brevet entre le laboratoire et la société Thales Laser, enregistré sous le numéro national FR 04 12694 [4.10] et a donné lieu à une publication [4.11].

2.4.3. Dispositif d'imagerie entre les cristaux

Il convient maintenant de détailler le processus qui réalise l'imagerie entre les cristaux utilisés. Deux types de dispositifs sont envisagés.

- *Imagerie passive*

Une manière évidente de procéder est d'utiliser une optique de focalisation, par exemple un miroir concave. Un unique cristal dans une configuration double passage est employé (fig. 4.12).

Figure 4.12 : Dispositif de filtrage double passages dans un cristal

Cette solution fonctionne très bien pour générer les interférences des signaux XPW. Elle est sans doute généralisable à un système multi-passages. Le retour de l'énergie non filtrée vers le laser peut être neutralisé par l'emploi d'un isolateur. L'inconvénient de cette méthode est la grande précision d'ajustement nécessaire pour la position du miroir de repli qui rend critique l'alignement du filtre.

- *Imagerie active : lentille de Kerr*

Dans la plupart de nos expériences, nous n'utilisons pas de miroir. L'imagerie se fait alors grâce à la lentille de Kerr générée dans le premier cristal. Cette lentille est responsable d'une autofocalisation du faisceau dont nous tirons cette fois profit. La position optimale entre les deux cristaux dépend bien sûr de l'intensité incidente.

En effet, rappelons l'expression de la puissance critique pour l'autofocalisation (chap. 2, p. 46):

$$P_{cr} = \frac{\pi (0.61)^2 \lambda^2}{8 n_0 n_2} \qquad (4.14)$$

La puissance critique pour le BaF_2 vaut 2.1 MW à 620 nm et 3.6 MW à 800 nm ($n_0 = 1.3$, $n_2 \approx 2\times10^{-20}\, m^2 W^{-1}$). Dans nos expériences, la puissance mise en jeu est toujours supérieure à la puissance critique.

Une approximation pour calculer la focale de la lentille de Kerr correspondante est donnée par [4.12]:

$$f_{Kerr} = \frac{2\pi n_0}{\lambda} \frac{\omega_0^2}{\sqrt{\frac{P}{P_{cr}} - 1}} \qquad (4.15)$$

Nous faisons l'hypothèse que le faisceau est spatialement gaussien et que la face d'entrée du cristal est placée au waist. Soient z_0 la distance de Rayleigh du faisceau initial et ω_0 le diamètre au foyer (fig. 4.13).

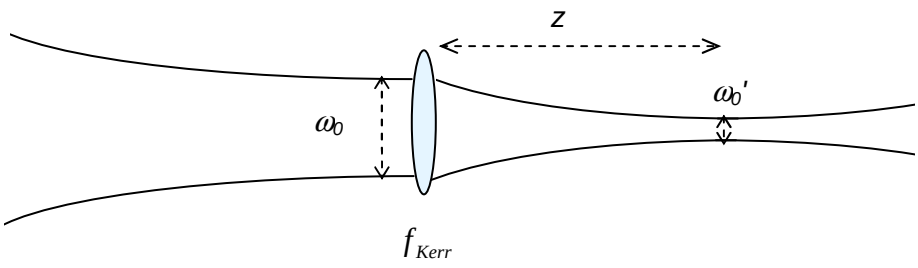

Figure 4.13: Focalisation d'un faisceau avec une lentille au waist

Le faisceau présentera un nouveau waist de taille ω_0' à une distance z selon les formules classiques de propagation des faisceaux gaussiens suivantes [4.13] :

$$\omega_0' = \frac{\omega_0}{\sqrt{1+\left(\frac{z_0}{f_{Kerr}}\right)^2}} \qquad (4.16)$$

$$z = \frac{f_{Kerr}}{1+\left(\frac{f_{Kerr}}{z_0}\right)^2} \qquad (4.17)$$

Les calculs suivants ne sont qu'approximatifs. Ils apportent quelques pistes de compréhension du phénomène.

Considérons tout d'abord le cas où l'intensité incidente sur le cristal est élevée.
Il y a alors autofocalisation du faisceau fondamental et il existe une position optimale du deuxième cristal. Les paramètres du laser correspondent aux conditions expérimentales du paragraphe 2.4.2 : $\omega_0 \approx 150\ \mu m$, $\lambda = 800\ nm$, $z_0 \approx 20\ mm$, $E \approx 100\ \mu J$, et la durée de l'impulsion est de l'ordre de 50 fs. La puissance de l'impulsion est donc : $P \approx 2\ GW > P_{cr}$.

Dans ce cas, les formules *(4.15)-(4.17)* donnent : $f_{Kerr} \approx 9\ mm$, $z \approx 7\ mm$, $\omega_0' \approx 0.5\,\omega_0$.

Un foyer se forme après le premier cristal. Il existe donc un plan image de ce cristal sur lequel est positionné le deuxième échantillon. La figure 4.14 schématise le processus.

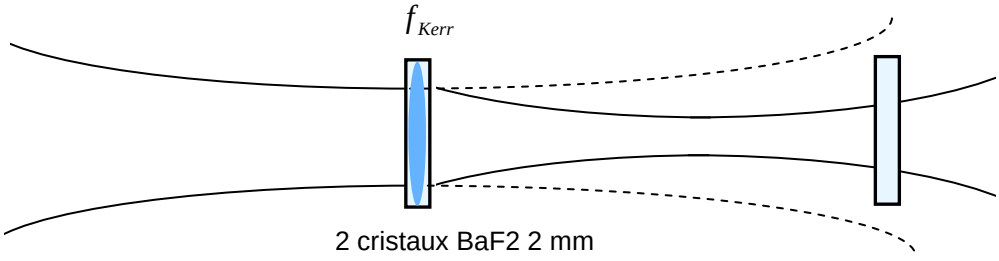

Figure 4.14 : Dispositif XPW incluant deux cristaux à haute intensité.
La lentille de Kerr dans le deuxième cristal n'est pas prise en compte. La ligne discontinue représente la propagation du faisceau fondamental en l'absence de lentille de Kerr.

Nous considérons qu'en première approximation le faisceau fondamental et le faisceau XPW se propagent de la même manière.

La distance optimale entre les deux cristaux doit être ajustée pour chaque niveau d'énergie. A haute intensité, cette distance peut valoir plusieurs centimètres, d'après nos observations expérimentales.

Remarquons que ces considérations confirment, comme nous l'avions constaté expérimentalement (paragraphe 2.3, p. 88-89), que l'utilisation de cristaux longs (4 mm, 6 mm par exemple) est à prohiber. L'autofocalisation du faisceau est à l'origine de surintensités dans le cristal qui génèrent de l'automodulation de phase et endommagent le matériau.

A basse intensité, la situation est différente. Considérons les conditions expérimentales du paragraphe 2.4.1. Les deux cristaux mesurent 1 mm.
Les données initiales sont les suivantes : $\omega_0 \approx 100\ \mu m$, $\lambda = 620\ nm$, $z_0 \approx 12\ mm$, $E = 10\ \mu J$, et la durée de l'impulsion est de l'ordre de 100 fs. La puissance de l'impulsion est donc : $P \approx 0.1\ GW$.
Nous obtenons : $f_{Kerr} \approx 20\ mm$, $z \approx 8\ mm$, $\omega_0' \approx 0.85\,\omega_0$.
La focalisation par lentille de Kerr est faible. En effet la valeur de ω_0', très proche de celle de ω_0, montre que la propagation du faisceau n'est pas modifiée de manière significative. Il n'y a pas réellement de deuxième foyer après le premier cristal comme dans le cas haute intensité. Les interférences des signaux XPW sont alors générées en plaçant les deux cristaux très proches l'un de l'autre (fig. 4.15).

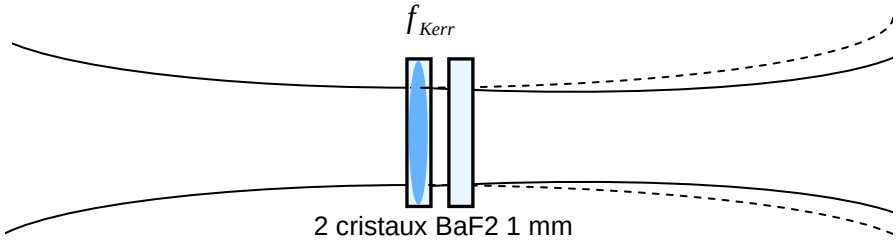

Figure 4.15 : Dispositif XPW incluant deux cristaux à basse intensité.
La lentille de Kerr dans le deuxième cristal n'est pas prise en compte. La ligne discontinue représente la propagation du faisceau fondamental en l'absence de lentille de Kerr.

Les cristaux ne sont pas rigoureusement imagés l'un sur l'autre mais ils sont placés dans la zone de Rayleigh, où le profil d'intensité et la phase spatiale restent constantes. Les interférences sont donc possibles. La distance optimale entre les deux cristaux est alors quasiment nulle.

Les bons résultats de ce dispositif à deux cristaux en terme de rendement global ont été établi expérimentalement dans le paragraphe 2.4.2.

Pour optimiser totalement le dispositif et l'étendre au cas de multiples cristaux, il faudrait également prendre en compte la phase non linéaire et la phase due à la focalisation du champ fondamental et du champ XPW, ainsi que les modifications éventuelles des profils spatiaux. Il est en effet envisageable que le faisceau fondamental soit modifié spatialement et génère dans le deuxième cristal un rendement meilleur que dans le premier.

Des investigations théoriques et expérimentales complémentaires sont actuellement en cours [4.14] et notamment dans [4.15].

A ce stade, il est nécessaire d'ajouter quelques considérations sur la stabilité d'un tel système, utilisant la lentille de Kerr pour lier les effets non linéaires qui interviennent dans chacun des deux cristaux. Bien que la lentille de Kerr fluctue avec l'énergie du laser, le dispositif ne présente pas d'instabilité excessive.

En effet, cette méthode a été validée sur plusieurs chaînes à différents niveaux d'énergie. Nous avons toujours noté expérimentalement une tolérance de plusieurs millimètres sur la position du deuxième cristal. Cela signifie que même si la focale de la lentille non linéaire change, le rendement global du dispositif varie peu. Cette souplesse pour le positionnement des cristaux est un point important. De plus, toujours expérimentalement, nous avons constaté que le système à deux cristaux présente une transmission plus stable que lorsqu'un cristal unique en simple passage est utilisé. En effet, les deux cristaux auto-compensent les fluctuations du laser. Si l'énergie du laser augmente, l'intensité sur le premier cristal est plus grande, le rendement XPW dans celui-ci est plus élevé. En conséquence, la lentille de Kerr est plus forte, la taille du faisceau sur le deuxième cristal augmente, l'intensité diminue et le rendement de celui-ci également. Au contraire, si l'énergie du laser baisse, le rendement est plus faible dans le premier cristal. La lentille de Kerr est également moins forte, la taille du faisceau sur le deuxième cristal diminue, et le rendement est ainsi plus élevé dans le deuxième cristal. Le rendement global est à peu près stable.

Le système fonctionne dans une situation d'équilibre.

Les mesures de corrélation grande dynamique présentées au chapitre 6, qui demandent plusieurs heures d'alignement et d'acquisition, témoignent de la bonne stabilité du dispositif, malgré l'ensemble des non-linéarités mises en jeu.

Nous avons établi la limite théorique de conversion XPW pour un faisceau gaussien à 23%. Un dispositif incluant deux cristaux dont les signaux XPW interfèrent permet de s'approcher de cette limite de manière fiable. Ces données permettent d'évaluer l'amélioration théorique du contraste par génération de polarisation croisée, dernier point à estimer avant l'application au filtrage temporel.

3. Estimation de l'amélioration du contraste

L'un des intérêts immédiats du phénomène non linéaire de génération de polarisation croisée pour le filtrage temporel d'impulsions est la dépendance temporelle cubique en première approximation de l'onde générée par rapport à l'onde incidente, ce qui permet d'envisager une importante réduction de l'intensité du fond d'ASE et des impulsions parasites. Il faut néanmoins tenir compte de l'efficacité de transmission du filtre et du taux d'extinction fini des polariseurs discriminant les deux ondes.

Considérons que l'impulsion incidente est la somme de deux impulsions. La première correspond à l'impulsion femtoseconde principale dont l'intensité est notée $I_{IN,fs}$. La seconde est le fond nanoseconde d'ASE d'intensité $I_{IN,ns}$. De la même manière, nous introduisons $I_{OUT,fs}$ et $I_{OUT,ns}$ pour décrire l'impulsion mesurée après l'analyseur, ainsi que $I_{XPW,fs}$ et $I_{XPW,ns}$ relatifs à l'intensité des champs générés dans le cristal. Les valeurs de contraste avant et après filtrage sont notées : $C_{in} = \frac{I_{IN,fs}}{I_{IN,ns}}$ et $C_{out} = \frac{I_{OUT,fs}}{I_{OUT,ns}}$. τ est le coefficient de croisement des polariseurs.

Supposons que le processus XPW ait lieu sans déplétion de la pompe. On peut écrire :

$$I_{XPW,fs} = \gamma_2^2 L^2 I_{IN,fs}^3 \qquad (4.18a))$$

$$I_{XPW,ns} = \gamma_2^2 L^2 I_{IN,ns}^3 \qquad (4.18(b))$$

On note η_{fs} et η_{ns} les valeurs d'efficacité de conversion XPW pour l'impulsion ultra-courte et pour le fond d'ASE, considérés comme des ondes planes :

$$\eta_{fs} = \frac{I_{XPW,fs}}{I_{IN,fs}} \qquad (4.19(a))$$

$$\eta_{ns} = \frac{I_{XPW,ns}}{I_{IN,ns}} \qquad (4.19(b))$$

Les équations (*4.18(a,b)*) et (*4.19(a,b)*) permettent d'obtenir :

$$\eta_{fs} = \eta_{ns} C_{in}^2 \qquad (4.20)$$

Le signal femtoseconde mesuré après l'analyseur est la somme de l'impulsion femtoseconde XPW générée et de la fuite de l'impulsion incidente à travers les polariseurs croisés. Il en va de même pour le signal nanoseconde.

En conséquence :

$$I_{OUT,fs} = I_{XPW,fs} + \tau I_{IN,fs} = \eta_{fs} I_{IN,fs} + \tau I_{IN,fs} \qquad (4.21(a))$$

$$I_{OUT,ns} = I_{XPW,ns} + \tau I_{IN,ns} = \eta_{ns} I_{IN,ns} + \tau I_{IN,ns} \qquad (4.21(b))$$

Le contraste de l'impulsion filtrée s'écrit donc :

$$C_{out} = \frac{I_{OUT,fs}}{I_{OUT,ns}} = C_{in} \frac{\eta_{fs} + \tau}{\eta_{ns} + \tau} \qquad (4.22)$$

D'après (*4.20*),

$$C_{out} = C_{in}^3 \frac{\eta_{fs} + \tau}{\eta_{fs} + \tau C_{in}^2} \qquad (4.23)$$

Cette formule est valable quel que soit le délai temporel Δt autour de l'impulsion principale considéré pour $I_{IN,ns}(\Delta t)$. Ainsi nous pourrons tracer le profil temporel attendu après filtrage de n'importe quelle impulsion.

D'autre part, en pratique, nous avons accès à la valeur réelle de l'efficacité η_{eff} et non à celle qui serait obtenue avec des ondes planes. Nous savons qu'en première approximation $\eta_{eff} = K\eta_{fs}$ avec *K=8/45* pour un faisceau gaussien spatialement et temporellement (paragraphes précédents).
Finalement, la formule *(4.23)* devient :

$$\boxed{C_{out} = C_{in}^3 \frac{\frac{\eta_{eff}}{K} + \tau}{\frac{\eta_{eff}}{K} + \tau C_{in}^2}} \qquad (4.24)$$

Trois paramètres apparaissent comme essentiels pour l'amélioration du contraste : le taux d'extinction des polariseurs, l'efficacité de conversion et, bien sûr, le contraste initial.

Cette formule est illustrée figure 4.16. Le contraste de l'impulsion nettoyée est représenté en fonction de celui de l'impulsion initiale pour différentes valeurs de τ. η_{eff} est pris égal à 15%.

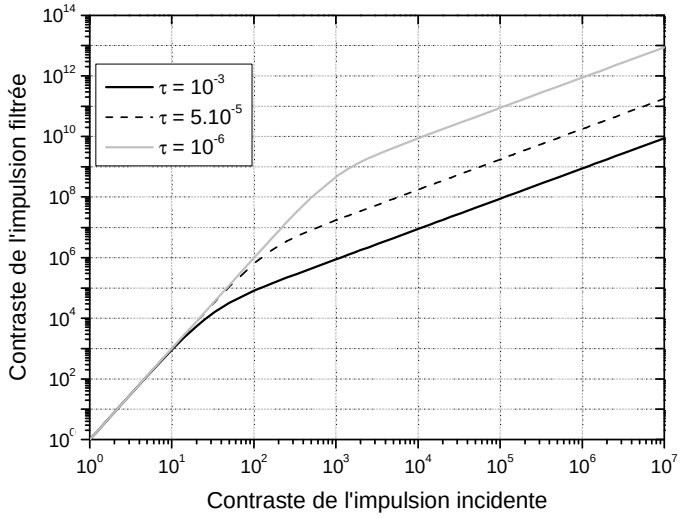

Figure 4.16 : Calcul du contraste de l'impulsion filtrée pour trois valeurs du taux d'extinction des polariseurs.

L'efficacité de conversion influence très peu l'évolution de ces courbes. Le contraste initial du laser est de l'ordre de $10^{-6}/10^{-7}$ dans une chaîne CPA classique. L'élément déterminant pour le contraste final de l'impulsion filtrée est donc le taux d'extinction des polariseurs. Pour les grandes valeurs du contraste initial, le contraste final est une fonction linéaire de cette valeur.

Des polariseurs classiques présentent un taux d'extinction généralement compris entre 4 et 5 ordres de grandeur (courbe $\tau = 5\times10^{-6}$). La courbe $\tau = 10^{-3}$ souligne les problèmes que l'on peut attendre d'un dispositif expérimental trop complexe qui dégrade le taux d'extinction jusqu'à 10^{-3} ou pire ; l'amélioration du contraste en serait pénalisée. Par contre, il est possible de générer des impulsions présentant un contraste de 10^{-12} avec des polariseurs très performants (10^{-6} d'extinction).

4. Conclusion

Le processus de génération d'une onde polarisée orthogonalement à partir d'une polarisation linéaire dans des cristaux de BaF_2 présente d'excellentes performances pour l'application du phénomène au filtrage temporel d'impulsions courtes.

L'amélioration du contraste autorisée par un tel système est limitée principalement par les polariseurs utilisés et peut donc valoir 5 ou 6 ordres de grandeur.

Nous avons conçu un dispositif original breveté pour optimiser la génération de polarisation croisée basé sur l'imagerie successive de plusieurs cristaux. Les signaux XPW générés par ces cristaux interfèrent constructivement. Ce dispositif permet d'atteindre un rendement de conversion d'environ 20% tout en préservant la viabilité des cristaux et en assurant la stabilité du système.

Un rendement et des comportements équivalents ont été obtenus à 620 nm et 800 nm, pour des impulsions de durée 45 fs et 100 fs, d'énergie comprise entre 10 µJ et 200 µJ.

Toutes les conditions sont réunies pour l'implémentation du filtre sur une chaîne émettant des impulsions de 1 mJ. Les résultats expérimentaux obtenus en ce sens, ainsi que la caractérisation temporelle, spectrale et spatiale de l'impulsion filtrée, seront présentés au chapitre 6.

Mais avant cela, nous allons poursuivre les investigations concernant la propagation d'ondes intenses dans un milieu non linéaire (en l'occurrence un cristal cubique de BaF_2) dans le chapitre suivant. En effet il est intéressant de confronter le processus de XPW pour une polarisation incidente linéaire avec le cas d'une polarisation elliptique. Cette dernière solution représente peut être une alternative pour la conception d'un autre filtre non linéaire.

BIBLIOGRAPHIE :

[4.1] G. I. Petrov, O. Albert, N. Minkovski, J. Etchepare and S. M. Saltiel (2001) *"Cross polarized wave generation by effective cubic nonlinear optical interaction"*, Optics Letters 26, 355-357.

[4.2] N. Minkovski, S. M. Saltiel, G. I. Petrov, O. Albert and J. Etchepare (2002) *"Polarization rotation induced by cascaded third-order processes"*, Optics Letters 27, 2025-2027.

[4.3] N. Minkovski, G. I. Petrov, S. M. Saltiel, O. Albert and J. Etchepare (2004) *"Non linear polarization rotation and orthogonal polarisation generation experienced in a single beam configuration"*, Journal of Optical Society of America B 21, 1659-1664.

[4.4] M. Sheik-Bahae, A. A. Saïd, T. H. Wei, D. J. Hagan and E. W. Van Stryland (1990) *"Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam"*, IEEE Journal of Quantum Electronics 26, 760.

[4.5] R. DeSalvo, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan and E. W. Van Stryland (1993) *"Z-scan measurements of the anisotropy of nonlinear refraction and absorption in crystals"*, Optics Letters 18, 194-196.

[4.6] M. Sheik-Bahae, D. C. Hutchings, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland (1991) *"Dispersion of bound electronic nonlinear refraction in solids"*, IEEE Journal of Quantum Electronics 27, 1296-1309.

[4.7] R. Adair, L. L. Chaseand S. A. Payne (1989) *"Nonlinear refractive index of optical crystals"*, Physical Review B 39, 3337-3350.

[4.8] R. DeSalvo, A. A. Said, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland and M. Sheik-Bahae (1996) *"Infrared to ultraviolet measurements of two photons absorption and n_2 in wide bandgap solids"*, IEEE Journal of Quantum Electronics 32, 1324 (1996).

[4.9] M. M. Murname and R. W. Falcone (1988) *"High-power femtoseconde dye-laser system"*, Journal of Optical Society of America B 5, 1573-1575.

[4.10] O. Albert, J. Etchepare, A. Jullien, G. Chériaux, S. Saltiel and N. Minkovski, *"Filtre non linéaire d'impulsions femtosecondes à contraste élevé"*, brevet LOA – Thales Laser déposé le 30 Novembre 2004. Numéro national d'enregistrement : 04 12694

[4.11] A. Jullien, O. Albert, G. Chériaux, J. Etchepare, N. Minkovski, S. Kourtev and S. M. Saltiel, *"Highly efficient temporal cleaner for femtosecond pulses based on cross-polarized wave generation in a dual crystal scheme"*, soumis à Applied Physics B Lasers and Optics (2005).

[4.12] S. A. Akhmanov, V. A. Vysloukh, A. S. Chirkin (1992) *"Optics of femtoseconde laser pulses"*, American Institute of Physics, p. 103.

[4.13] B. E. A. Saleh, M. C. Teich *"Fundamental of photonics"*, John Wiley & sons, INC, p. 95.

[4.14] S. Kourtev, N. Minkovski, S. M. Saltiel, A. Jullien, O. Albert, G. Chériaux and J. Etchepare (2005) *"Two Crystals Scheme for efficient cross-polarized wave generation in cubic crystals"*, Proceedings of Laser technology and Lasers IV International Symposium, Plovdiv, Bulgaria.

[4.15] A. Jullien, O. Albert, G. Chériaux, J. Etchepare, N. Minkovski, S. Kourtev and S. M. Saltiel (2006) *"A two crystal arrangement to fight efficiency saturation in cross-polarized wave generation"*, Optics Express 14, 2760-2769.

Chapitre 5

Génération de polarisation croisée et rotation de polarisation elliptique dans des cristaux

Chapitre 5
Génération de polarisation croisée et rotation de polarisation elliptique : étude comparative

1. Introduction : description du dispositif expérimental 107

2. Modèle théorique 109
2.1. Rappel des équations de propagation des champs 109
2.2. Quelques résultats des simulations 110
2.3. Conclusion 112

3. Résultats expérimentaux 114
3.1. Polarisation elliptique : mise en évidence de la rotation de l'ellipse 114
3.2. Polarisation elliptique ou linéaire : comparaison de l'efficacité de transmission 115
3.2.1. Transmission selon α et β 115
3.2.2. Transmission selon l'intensité incidente 117
3.3. Automodulation de phase 118

4. Conclusion : application au filtrage temporel 120

Bibliographie 121

Le chapitre 3 est consacré à l'étude de la rotation de polarisation elliptique dans un milieu dont la susceptibilité non linéaire est isotrope (NER). Le chapitre 4 décrit la propagation d'une lumière polarisée linéairement dans des cristaux cubiques dont la susceptibilité non linéaire du troisième ordre est anisotrope, ce qui autorise la génération de polarisation croisée (XPW). Le fluorure de baryum s'est imposé comme un matériau adéquat.

Il paraît ainsi intéressant d'étudier un processus mêlant NER et XPW : la propagation non linéaire d'une polarisation elliptique dans un cristal cubique. Ceci permet de généraliser notre étude concernant les interactions non linéaires dans des cristaux cubiques.

De plus, ce nouveau schéma peut être une alternative attractive pour le filtrage non linéaire d'impulsions femtosecondes, en terme de rendement par exemple.

La première partie de ce chapitre décrit les conditions expérimentales. Le deuxième paragraphe rappelle le modèle théorique décrivant les processus non linéaires dans un cristal cubique caractérisé par l'anisotropie σ de sa susceptibilité d'ordre 3. Le paragraphe 3 est consacré aux réalisations expérimentales. Enfin je conclurai quant à l'application des deux systèmes au filtrage temporel d'impulsions femtosecondes.

1. Introduction : description du dispositif expérimental

Nous voulons comparer les caractéristiques du système de filtrage obtenues avec d'une part une polarisation elliptique incidente et d'autre part une polarisation linéaire. Cette comparaison s'établit en termes de transmission et de dépendance du rendement avec l'orientation du cristal.
L'étude comparative est limitée à un système incluant un seul cristal de BaF_2.

Deux sources laser ont été utilisées pour ces expériences : le laser à 620 nm présenté au chapitre 4 (p. 81), et le laser kilohertz à 800 nm déjà mentionné (chap. 3, p. 52; chap. 4 p. 88) dont l'énergie est ici limitée à quelques centaines de microjoules.
Pour l'étude des phénomènes de conversion, nous utilisons un cristal de BaF_2 de longueur L = 2 mm placé au foyer d'une lentille.

Le montage expérimental, représenté figure 5.1(a), permet de comparer diverses configurations. Il comprend deux polariseurs et deux lames quart d'onde exactement croisés selon les modalités du montage NER présenté au chapitre 3 (p. 53).

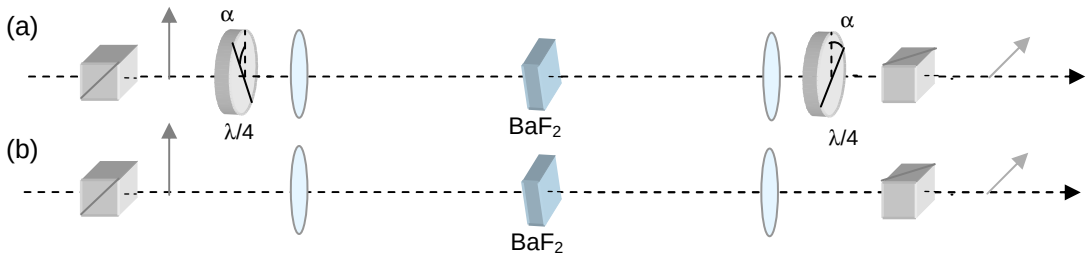

Figure 5.1 : Dispositifs expérimentaux. La lumière incidente est polarisée elliptiquement (a) ou linéairement (b).

On appelle α l'angle de la direction de polarisation en sortie du premier polariseur et l'axe rapide de la première λ/4. La deuxième lame et l'analyseur permettent d'éliminer la contribution de la partie de l'impulsion dont la polarisation n'a pas tourné. Si $\alpha = 0°$, la polarisation incidente sur le cristal est linéaire et le montage est équivalent au dispositif classique de génération de polarisation croisée (figure 5.1(b)).

Ce dispositif permet donc de comparer les deux types de filtres.

2. Modèle théorique

2.1. Rappel des équations de propagation des champs

Soit a_0 l'amplitude du champ initial polarisé linéairement.

La première lame λ/4 du montage fixe la polarisation incidente. Son axe rapide est tourné d'un angle α par rapport à la direction de polarisation du premier polariseur. Nous définissons un repère *(rℓz)* associé à cette lame (figure 5.2 (a)). L'onde est donc décrite par les champs *A* et *B*, dirigés respectivement le long des axes *r* et *ℓ*. Le cristal de BaF_2 est caractérisé par ses axes cristallographiques *(xyz)* et s'oriente d'un angle β par rapport au repère *(rℓz)* (fig. 5.2 (b)).

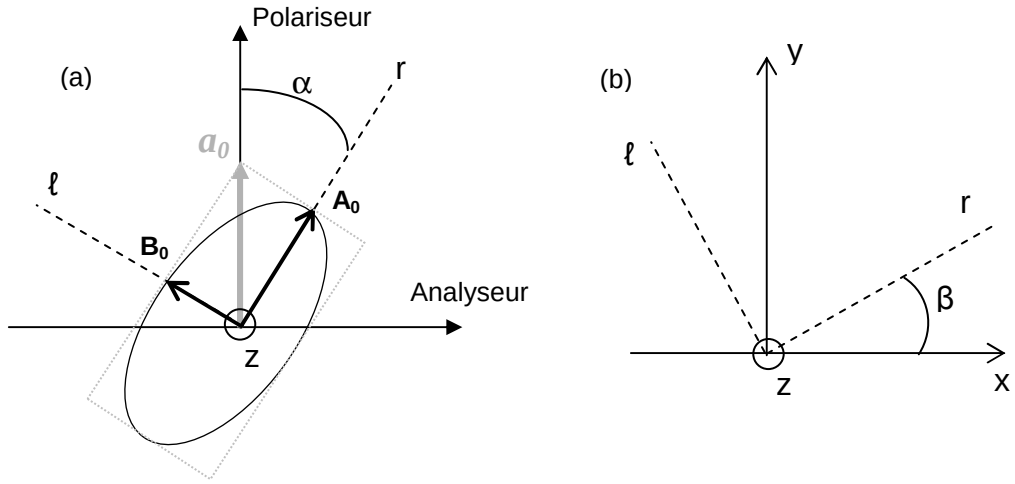

Figure 5.2 : Champs impliqués dans le processus non linéaire et repères utilisés pour la modélisation. (a) : direction des polarisations incidente et transmise, axes (rℓ) de la lame λ/4, angle α. (b) :axes cristallographiques du cristal(xy), angle β.

Les équations d'évolution des champs A et B dans cette configuration ont été établies au chapitre 2 (p. 42). Pour faciliter les calculs numériques suivants, les différents termes sont regroupés selon leur dépendance en β :

$$\frac{dA}{dz} = i\gamma_1 |A|^2 A - i\gamma_2 \left(|B|^2 B - A^2 B^* - 2|A|^2 B \right) + i\gamma_3 \left(2|B|^2 A + B^2 A^* \right) \qquad (5.1(a))$$

$$\frac{dB}{dz} = i\gamma_1 |B|^2 B + i\gamma_2 \left(|A|^2 A - B^2 A^* - 2|B|^2 A \right) + i\gamma_3 \left(2|A|^2 B + A^2 B^* \right) \qquad (5.1\ (b))$$

Avec : $\gamma_1 = \gamma_0 \left[1 - \frac{\sigma}{2} \sin^2(2\beta) \right]$, $\gamma_2 = -\gamma_0 \frac{\sigma}{4} \sin(4\beta)$, $\gamma_3 = \gamma_0 \left[\frac{\sigma}{2} \sin^2(2\beta) + \frac{1-\sigma}{3} \right]$, $\gamma_0 = \frac{6\pi}{8\lambda n_0} \chi^{(3)}_{xxxx}$.

Rappelons que σ désigne l'anisotropie du tenseur $\chi^{(3)}$ et vaut -1.2 pour le BaF_2.

La principale différence entre les termes en γ_2 d'une part et les termes en γ_1 et γ_3 d'autre part, est leur périodicité selon la valeur de l'angle β. Pour une révolution complète du cristal, les termes en γ_2 présentent 8 maxima, et les autres seulement 4.

Dans le cas d'une polarisation incidente linéaire, les conditions initiales s'écrivent : $A(0) = a_0$ et $B(0) = 0$. L'intensité mesurée après l'analyseur est proportionnelle à $|B(L)|^2$.

Une polarisation elliptique présente par contre deux composantes décalées en phase de $\pi/2$: $A(0) = a_0 \cos\alpha$ et $B(0) = ia_0 \sin\alpha$. En sortie du cristal non linéaire, les champs $A(L)$ et $B(L)$ sont des quantités complexes. Après l'analyseur, le champ s'écrit $C(L) = A(L)\sin\alpha + iB(L)\cos\alpha$ et l'intensité mesurée est proportionnelle à $|C(L)|^2$.

2.2. Quelques résultats des simulations

Pour évaluer les rôles des différents processus (automodulation de phase, modulation de phase croisée et mélange à 4 ondes), nous avons tracé systématiquement quelques courbes de transmission théorique en fonction de la valeur de l'angle β (fig. 5.3). J'ai obtenu ces courbes par la résolution des équations couplées *(5.1)*, réalisée numériquement avec l'aide du logiciel Maple.

Deux niveaux d'intensité sont considérés (basse intensité : $\gamma_0 a_0^2 L = 0.3$, figures (a), (c) et (e); haute intensité : $\gamma_0 a_0^2 L = 2$, figures (b), (d) et (f)), ainsi que deux configurations de polarisation (linéaire $\alpha = 0°$, elliptique $\alpha = 22.5°$). Plusieurs possibilités sont envisagées : d'abord le cas complet où tous les termes γ sont non nuls ($\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3 \neq 0$, figures (a) et (b)), ensuite une configuration pour laquelle seul γ_2 est non nul ($\gamma_1, \gamma_3 = 0$, figures (c) et (d)), enfin le cas où seul γ_2 est nul ($\gamma_2 = 0$, figures (e) et (f)). Les courbes résultant des simulations apparaissent figure 5.3.

Considérons tout d'abord le cas complet $(\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3 \neq 0)$, à bas flux. Il s'agit de la figure 5.3(a). Deux observations s'imposent. D'une part, la périodicité selon β est différente si la polarisation est linéaire (période $\pi/4$) ou elliptique (période $\pi/2$). La transmission en polarisation linéaire paraît donc essentiellement gouvernée par γ_2 alors que si la polarisation est elliptique, les termes en γ_1 et γ_3 sont prépondérants.

D'autre part, la transmission obtenue avec une polarisation incidente elliptique ($\alpha = 22.5°$) est meilleure que dans le cas linéaire.

Cette dernière remarque n'est plus valide à haute intensité (fig. 5.3(b)). Les transmissions pour les deux valeurs de α considérées sont sensiblement équivalentes. Par contre, la périodicité des courbes est la même qu'à basse intensité. Toutefois, le lobe généré avec une lumière elliptique n'est plus symétrique comme à bas flux. Cette dissymétrie s'explique en "décomposant" le processus.

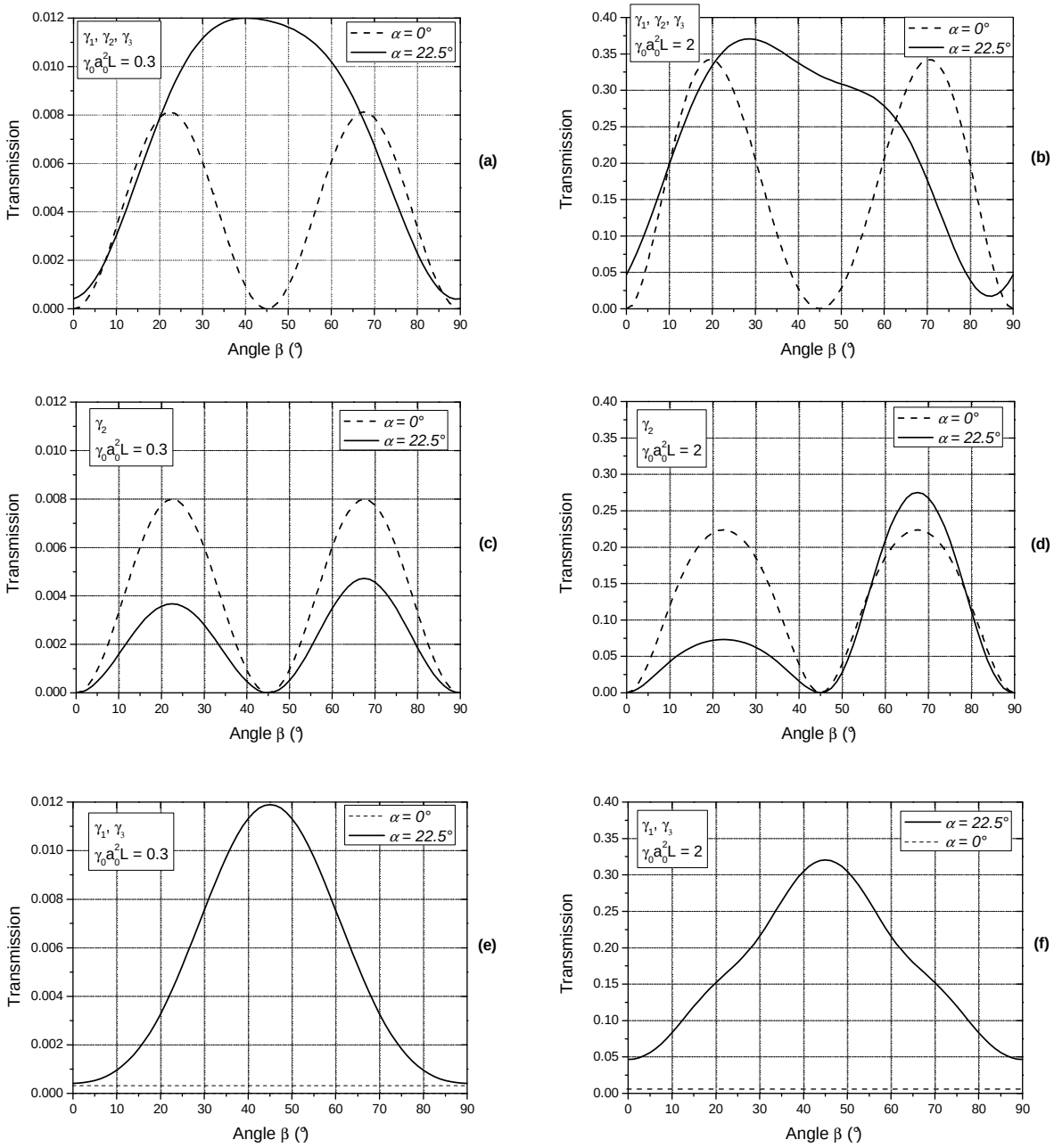

Figure 5.3 : Contribution des différents processus à l'efficacité de transmission évaluée numériquement. (a), (c) et (e): $\gamma_0 a_0^2 L = 0.3$; (b), (d) et (f): $\gamma_0 a_0^2 L = 2$.

Pour ce faire, onsidérons maintenant les graphes 5.3 (c) et (d). Seul γ_2 est non nul. A ce propos, notons que le terme majoritaire gouverné par γ_2 décrit les transferts d'énergie de B vers A (équation *(5.1(a)*) et de A vers B (équation *(5.1(b)*). Il s'agit de la génération de polarisation croisée.
Si la polarisation initiale est linéaire, les comportements observés alors sont semblables à ceux décrits dans le chapitre précédent (modèle simple). De plus, à basse intensité, la valeur de transmission est la même que pour la configuration complète (fig. 5.3 (a), $\alpha = 0°$). Cela est quasiment vérifié à haute intensité (courbes (b) et (d), $\alpha = 0°$). Cette observation confirme que la génération de polarisation croisée en linéaire ne dépend en première approximation que de γ_2.
Dans le cas elliptique, l'équation d'évolution du champ *B*, par exemple, s'écrit :

$$\frac{dB}{dz} = i\gamma_2\left(\left|A\right|^2 A - B^2 A^* - 2\left|B\right|^2 A\right) \qquad (5.2)$$

Les termes $\left|B\right|^2 A$ et $B^2 A^*$ ne sont pas négligeables. La résolution de l'équation différentielle donne une solution en intensité de la forme : $\frac{(\sin 4\beta)^2}{(1+K\sin 4\beta)^2}$ avec $K = \gamma_0 a_0^2 L$. Si l'intensité est élevée, on s'éloigne du comportement simple en $(\sin 4\beta)^2$. Ceci explique la dissymétrie des lobes du graphe 5.3(d) ($\alpha = 22.5°$). Cette dissymétrie correspond à celle observée figure 5.3(b).

Le cas γ_2 nul, illustré figures 5.3 (e) et (f), peut être évoqué rapidement. En effet, $\gamma_2 = 0$ est équivalent à un milieu isotrope $(\sigma = 0)$. La transmission est nulle en polarisation linéaire. Si la polarisation est elliptique, il s'agit d'un cas de rotation de polarisation par biréfringence induite. La périodicité du signal transmis est celle de γ_1 et γ_3 ($\pi/2$). Rappelons que le terme en γ_1 est le terme d'automodulation de phase et que le terme majoritaire gouverné par γ_3 est la modulation de phase croisée.

2.3. Conclusion

En conclusion, notre modèle montre que le signal transmis dépend de l'orientation du cristal par rapport aux axes de l'ellipse, ou à la direction de la polarisation incidente, ce qui va imposer les caractéristiques du montage retenu. L'étude de ces dépendances permet de comparer les efficacités des deux options.

De plus, il est possible d'évaluer les processus dominants en mesurant la périodicité du signal mesuré avec l'angle β.

L'étude théorique montre que la transmission du filtre en polarisation linéaire est gouvernée par γ_2, terme de génération de polarisation croisée, alors que les termes γ_1 et γ_3 (modulation non linéaire de la phase) sont prépondérants dans le cas d'une polarisation elliptique. Cette dernière configuration apparaît donc plus sensible à l'automodulation de phase, ce qu'il importe de vérifier expérimentalement.

Enfin, à haute intensité, les deux systèmes semblent présenter un rendement équivalent. Nous allons également le vérifier expérimentalement.

A ce titre, je rappelle que les simulations présentées ci-dessus sont réalisées pour une onde infiniment plane. Dans ce cas, les valeurs de transmission calculées sont supérieures à celles qui correspondent à une onde réelle, gaussienne dans le temps et dans l'espace. Nous avons vu au chapitre 4 (p. 86-87) que l'application d'un coefficient de correction permet d'obtenir une valeur de transmission qui tient compte de la nature gaussienne de l'onde. Les courbes théoriques qui apparaissent dans les paragraphes suivants ont été corrigées de cette manière et la transmission théorique peut donc être comparée à celle expérimentale.

3. Résultats expérimentaux

Les résultats expérimentaux sont organisés de la manière suivante : la première partie concerne la mesure directe de la rotation de l'ellipse. Le deuxième paragraphe compare l'efficacité de conversion obtenue pour diverses ellipticités et orientations du cristal. Enfin, nous étudions l'influence de l'automodulation de phase pour chacun des processus.

3.1. Polarisation elliptique : mise en évidence de la rotation de l'ellipse

Le premier cas considéré est celui d'une polarisation incidente elliptique ($\alpha \neq 0°$). Nous avons d'abord cherché à mettre en évidence la rotation de polarisation dans le cristal en mesurant la valeur de l'angle dont a tourné le grand axe de l'ellipse. Le laser à 620 nm est utilisé. Le dispositif de mesure est représenté figure 5.4, très similaire au schéma 5.1(a). La première lame λ/4 génère une polarisation elliptique, le faisceau est focalisé sur le cristal où a lieu l'interaction non linéaire. La deuxième λ/4 est supprimée pour conserver l'ellipticité. Une façon simple de mesurer la rotation de l'ellipse est de tourner l'analyseur pour repérer les minima et maxima de transmission.

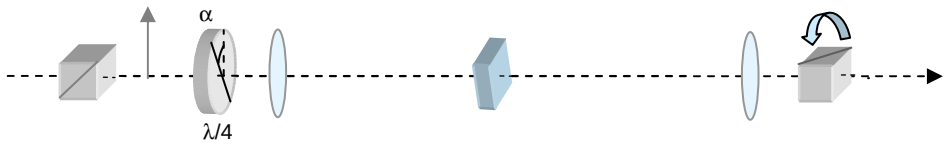

Figure 5.4 : Schéma expérimental pour la mesure de la rotation de l'ellipse.

Quelques résultats immédiats ont montré que l'angle α optimal pour la rotation est de 22.5° (cf chapitre 3, p. 54-55).

La rotation du grand axe de l'ellipse a donc été mesurée en fonction de β pour $\alpha = 22.5°$. L'énergie incidente est de 12.5 μJ, ce qui correspond à une intensité comprise entre 10^{11} et 10^{12} Wcm^{-2}. Les résultats apparaissent figure 5.5.

La rotation non linéaire est une fonction périodique de l'angle β. Elle est maximale pour $\beta = \frac{\pi}{8} \pm m\frac{\pi}{2}$. Dans ce cas l'ellipse a tourné de 13°.

Cette valeur est de l'ordre de grandeur des angles de rotation non linéaire dans un milieu isotrope relevés dans la littérature [5.1].

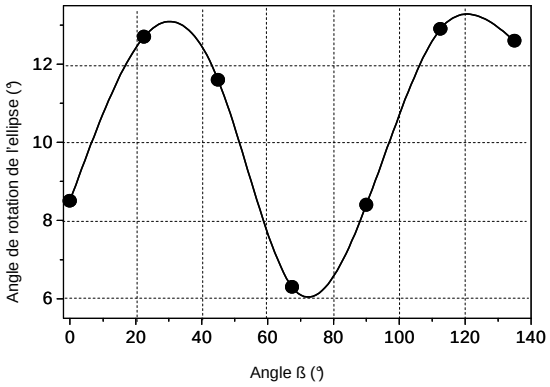

Figure 5.5 : Angle de rotation du grand axe de l'ellipse en fonction de l'angle β.

3.2. Polarisation elliptique ou linéaire : comparaison de l'efficacité de transmission

L'objectif de ce paragraphe est de mesurer l'efficacité de conversion en fonction de l'état de la polarisation incidente. Pour cela nous mesurons la transmission après l'analyseur pour différentes valeurs de α et β. Des mesures ont été réalisées avec les deux lasers.

3.2.1. Transmission selon α et β

La figure 5.6(a) représente l'évolution de la transmission en fonction de β pour trois valeurs d'angle α($\alpha = 0°$, $\alpha = 18°$, $\alpha = 22.5°$). L'énergie incidente est alors de 12 µJ (laser 620 nm) et le rendement de conversion maximal atteint 8% (f' = 300 mm).

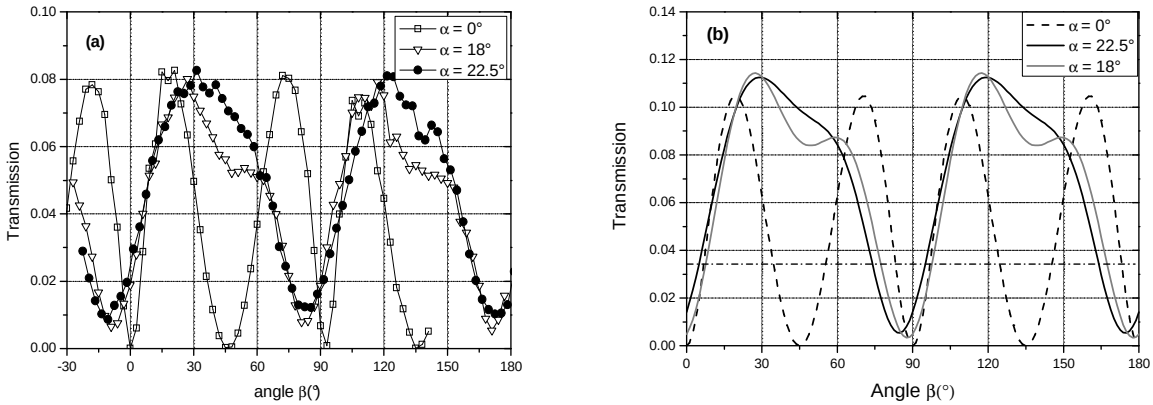

Figure 5.6 : (a) Signal transmis en fonction de la rotation du cristal pour trois valeurs de α (α = 0°, polarisation linéaire, α =18° et α = 22.5°, polarisation elliptique).
(b) Courbes théoriques calculées avec $\gamma_0 a_0^2 L = 2$ et σ = -1.2 pour α = 0°, α = 18° et α = 22.5°. La ligne – - – correspond à un milieu isotrope (σ = 0) et α = 22.5°.

La périodicité du rendement selon β vaut $\pi/4$ si la polarisation est linéaire ($\alpha = 0°$) et $\pi/2$ sinon, comme l'avait prévu le modèle théorique. Cette observation confirme que la génération de polarisation croisée avec une polarisation linéaire dépend surtout des termes en γ_2 alors que dans le cas d'une polarisation elliptique les termes gouvernés par γ_1 et γ_3 jouent un rôle prépondérant.

Les courbes correspondantes théoriques sont tracées figure 5.6(b) et sont en bon accord avec les mesures. La transmission expérimentale maximale (8%) est proche de la valeur prévue théoriquement (10% pour le cas linéaire, 11% pour le cas elliptique). Sur le graphe (b) apparaît également le rendement de transmission qui serait obtenu avec la même "quantité d'effets non linéaires" ($\gamma_0 a_0^2 L = 2$) mais dans un milieu isotrope ($\sigma = 0$). La transmission prévue est seulement de 3%. L'intérêt d'utiliser un milieu non linéaire anisotrope est donc évident.

Les valeurs optimisées de l'angle β pour chacun des trois cas représentés est celle prévue théoriquement.

A titre illustratif, nous pouvons tracer numériquement la transmission pour d'autres valeurs de l'angle α.

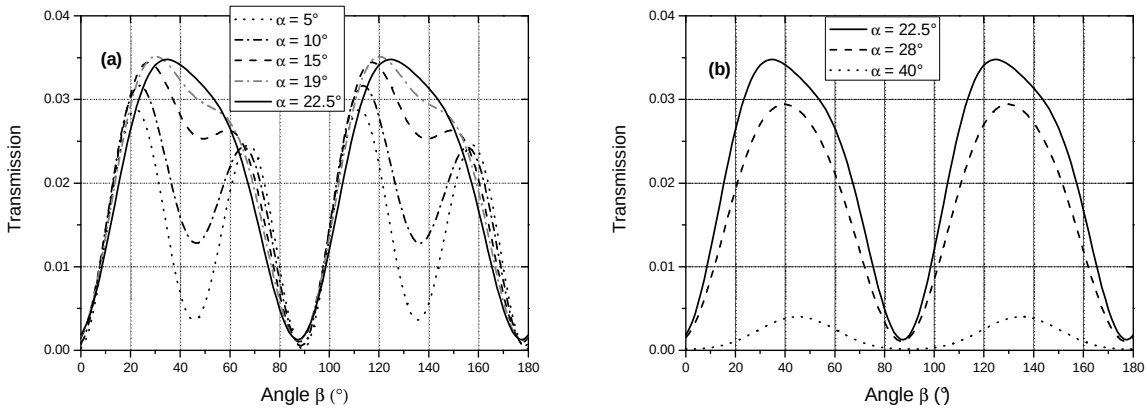

Figure 5.7 : Courbes théoriques de transmission en fonction de β
avec $\gamma_0 a_0^2 L = 2$ et σ = -1.2 pour α < 22.5° (a) et α > 22.5° (b).

La figure 5.7(a) montre l'évolution progressive du comportement du filtre quand on passe d'une polarisation elliptique à une polarisation linéaire $(\alpha = 22.5° \Rightarrow \alpha = 0°)$. La périodicité selon β s'approche de $\pi/4$ quand α s'approche de 0°.

Pour les plus grandes valeurs de α $(\alpha = 22.5° \Rightarrow \alpha = 45°)$ la transmission diminue et s'approche de 0 quand la polarisation devient circulaire (fig. 5.7(b), cf chapitre 2 p. 38).

3.2.2. Transmission selon l'intensité incidente

Il est également intéressant de comparer les efficacités des filtres en fonction de l'énergie incidente. Comme le cristal n'est jamais déplacé au cours de l'expérience, l'énergie est proportionnelle à l'intensité incidente. Les résultats sont représentés sur la figure 5.8.

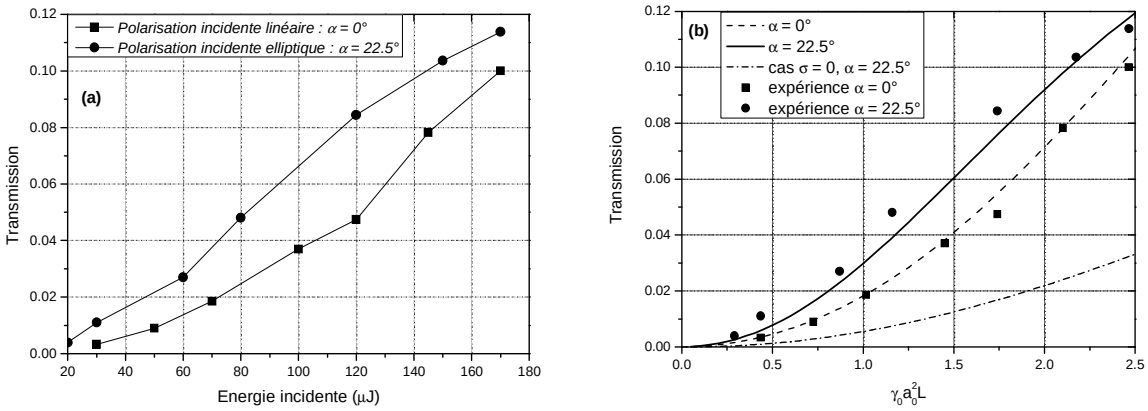

Figure 5.8 : (a) Evolution de la transmission en fonction de l'énergie incidente sur le cristal pour une polarisation linéaire ($\alpha = 0°$) et elliptique ($\alpha = 22.5°$).
(b) Courbes théoriques correspondantes, auxquelles est ajouté le rendement obtenu dans le cas d'un milieu isotrope ($\sigma = 0$, $\alpha = 22.5°$)

Les résultats expérimentaux (figure 5.8(a)) ont été obtenus avec le laser à 800 nm, l'impulsion d'énergie maximale 200 μJ est focalisée au moyen d'une lentille de 1 m sur le cristal de 2 mm dont l'orientation est optimisée. Dans le cas d'une polarisation incidente elliptique, l'angle α vaut 22.5°.

Sur la figure 5.8(b) sont tracées les courbes correspondantes théoriques auxquelles sont ajoutés les points expérimentaux dont l'abscisse est ramenée en $\gamma_0 a_0^2 L$. On note qu'il y a un très bon accord avec les mesures.

Les deux schémas présentent des rendements quasiment équivalents et la même dépendance lorsque l'énergie est augmentée. La transmission en polarisation elliptique présente un très léger avantage. Le rendement maximum obtenu est de l'ordre de 11% pour une énergie de 170 μJ. Le rendement en polarisation linéaire est alors de 10%.

Sur la figure 5.8(b), apparaît une fois encore l'intérêt des milieux anisotropes : la transmission obtenue si $\sigma = 0$ serait à peine de 4% dans le cas d'une polarisation elliptique ($\alpha = 22.5°$).

En conclusion, le rôle déterminant de l'anisotropie dans le rendement de transmission a été remarqué. Il est plus efficace, à "non-linéarités équivalentes" d'employer un milieu anisotrope. La génération du terme polarisé orthogonalement s'ajoute à l'efficacité de rotation pure de l'ellipse.

D'autre part, nous avons validé le modèle théorique : comportement selon α et β, valeurs de transmission. Il est validé que les deux configurations sont équivalentes en rendement. Enfin, nous avons confirmé que, par contre, les cas de polarisation linéaire et elliptique ne sont pas gouvernés par les mêmes termes (γ_1 et γ_3 pour une polarisation elliptique, γ_2 pour une polarisation linéaire).

3.3. Automodulation de phase

Le paragraphe précédent a donc souligné que, en terme de rendement, l'utilisation d'une polarisation elliptique pouvait être une alternative intéressante pour la génération de polarisation croisée dans des cristaux.

L'inconvénient majeur de cette technique réside dans le fait que le processus est principalement dirigé par les termes d'automodulation de phase et modulation de phase croisée (γ_1 et γ_3). Ceci conduit, lorsque l'intensité et le rendement sont élevés, à de l'instabilité et des modulations temporelles et spatiales apparaissent.

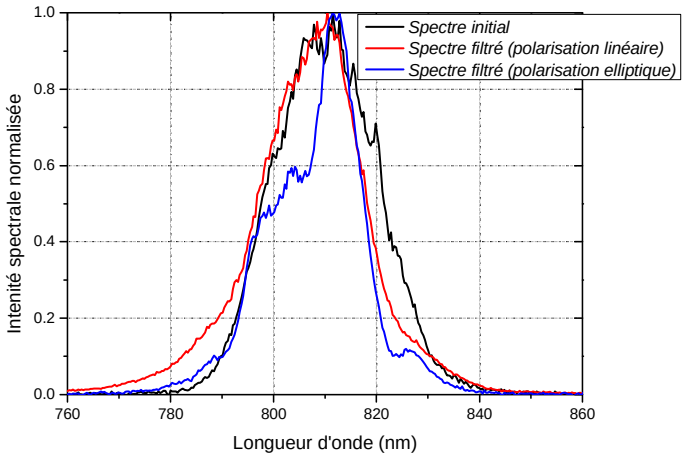

Figure 5.9 : Spectres expérimentaux obtenus pour un rendement de 10%
dans les cas d'une polarisation linéaire et elliptique comparés au spectre initial du laser.

Les modulations temporelles sont évaluées en mesurant simplement le spectre du signal filtré. Les mesures ont été effectuées avec le laser à 800nm. L'énergie maximale incidente est réduite à 100 µJ pour éviter tout effet non linéaire supplémentaire dû à la focalisation du faisceau dans l'air.

Le comportement spectral des deux schémas est comparé à rendement identique, pour différentes valeurs d'énergie incidente.

La figure 5.9 correspond à un rendement de 10% obtenu dans les deux cas.
En polarisation linéaire, le spectre est décalé de quelques nanomètres en longueur d'onde et présente un léger rétrécissement mais sa forme reste globalement inchangée.
Par contre, le spectre obtenu avec une polarisation elliptique exhibe des modulations et est clairement rétréci. Conformément aux prévisions du modèle théorique, le fait d'utiliser une polarisation elliptique rend davantage sensible le processus à l'automodulation de phase. L'automodulation de phase induit généralement des impulsions temporelles parasites ainsi que des distorsions de phase qui peuvent être dommageables pendant l'amplification ultérieure de l'impulsion nettoyée.

Ceci peut également s'expliquer en termes de phase non linéaire accumulée durant le processus.

Si la polarisation initiale est linéaire, l'onde transmise est l'onde XPW générée (majoritairement par χ_2). Cette onde, peu intense par rapport au champ fondamental, subit une automodulation de phase négligeable. La phase non linéaire accumulée est essentiellement due à la modulation de phase croisée. Cette phase est estimée valoir $\frac{2}{3}$ de l'automodulation de phase du champ fondamental : $\phi_{NL,XPM} = \frac{2}{3}\phi_{NL}$ [5.2]. Rappelons que selon le chapitre 3 (p. 55):

$$\gamma_0 a_0^2 L = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 I_0 L = \phi_{NL} \qquad (5.3)$$

Les rendements maximaux obtenus expérimentalement correspondent à $\gamma_0 a_0^2 L = 2$ d'après le modèle théorique. ϕ_{NL} vaut donc environ 2 radians dans notre expérience. La phase non linéaire du champ généré est de l'ordre de $\phi_{NL,XPM} = \frac{2}{3}\phi_{NL} \approx \frac{4}{3}$. Cette valeur est tout à fait acceptable et explique l'absence de modulations sur le spectre XPW.

Le problème est différent si la polarisation est elliptique. Les deux champs A et B sont relativement intenses, accumulent de l'automodulation de phase et l'onde transmise est une combinaison de deux champs. On peut estimer que la phase non linéaire de l'onde transmise est à peu près la grandeur ϕ_{NL}, c'est à dire plus importante que dans le cas linéaire.

Ces observations illustrent l'une des limites majeures à l'emploi d'un filtre en polarisation elliptique pour le nettoyage temporel d'impulsions.

4. Conclusion : application au filtrage temporel

Un premier point concernant l'application de ces dispositifs au filtrage temporel est le taux d'extinction de l'ensemble, dont dépend l'amélioration du contraste (chapitre 4, p. 98-100). Pour les expériences décrites ci-dessus, l'extinction du filtre sans lames est de 5.10^{-5} alors que celui du dispositif incluant des $\lambda/4$ est seulement de 2.10^{-3}.
D'une manière générale, il est plus difficile d'avoir un bon taux de croisement avec des $\lambda/4$ [5.3]. Ceci semble être résolu par l'utilisation de lames achromatiques [5.4].

Du point de vue du rendement, les deux montages sont largement équivalents. Par contre, la grande sensibilité du filtre en polarisation elliptique à l'automodulation de phase est trop critique pour les applications de filtrage. Ce que nous avions pressenti dans les chapitres 3 et 4 est maintenant démontré de manière théorique et expérimentale.

Le processus le plus fiable pour mettre au point un filtre non linéaire est donc la génération de polarisation croisée avec une polarisation linéaire incidente dans du BaF_2. Ce filtre et les résultats expérimentaux obtenus vont être décrits dans le chapitre suivant.

Ces travaux font l'objet d'une publication [5.5].

BIBLIOGRAPHIE :

[5.1] M. Lefkir and G. Rivoire (1997) *"Influence of transverse effects on measurement of third-order nonlinear susceptibility by self-induced polarization state changes"*, Journal of Optical Society of America B 14, 2856- 2864.

[5.2] S. A. Akhmanov, V. A. Vysloukh, A. S. Chirkin (1992) *"Optics of femtoseconde laser pulses"*, American Institute of Physics, p. 307.

[5.3] D. Homoelle, A. L. Gaeta, V. Yanovsky and G. Mourou (2002) *"Pulse contrast enhancement of high-energy pulses by use of a gas-filled hollow waveguide"*, Optic Letters 27, 1646-1648.

[5.4] M. P. Kalashnikov, E. Risse, H. Schönnagel, A. Husakou, J. Herrmann and W. Sandner (2004) *"Characterization of a nonlinear filter for the front-end of a high contrast double-CPA, Ti:sapphire laser"*, Optics Express 12, 5088.

[5.5] A. Jullien, O. Albert, G. Chériaux, J. Etchepare ,S. Kourtev , N. Minkovski and S.M. Saltiel (2005) *"Nonlinear polarization rotation of elliptical light in cubic crystals, with application to cross-polarized wave generation"*, Journal of Optical Society of America B 22, 2635-2641.

Chapitre 6

Filtrage non linéaire d’impulsions femtosecondes par génération de polarisation croisée dans des cristaux

Chapitre 6

Filtrage non linéaire d'impulsions femtosecondes par génération de polarisation croisée

1. Filtrage XPW au millijoule à 800 nm 126
1.1. Dispositif expérimental 126
1.1.1. Conception du montage expérimental 126
1.1.2. Description du dispositif 127
1.1.3. Transmission du filtre 128
1.2. Caractérisation du faisceau filtré 129
1.2.1. Amélioration du contraste : corrélation grande dynamique 129
1.2.2. Caractérisation spatiale 131
1.2.3. Caractérisation spectrale 133
♦ Mesure de l'intensité spectrale 133
♦ Mesure de la phase spectrale 134
1.3. Conclusion : expériences à 800 nm 136

2. Influence de la phase spectrale du second ordre 137
2.1. Dispositif expérimental 137
2.2. Influence de la phase spectrale du second ordre sur le rendement 138
2.3. Evolution du spectre de l'impulsion XPW 140
2.3.1. Résultats expérimentaux 140
2.3.2. Effet Kerr : impulsion polychromatique 141
♦ Hypothèses 141
♦ Effet Kerr 143
♦ Largeur spectrale de l'impulsion générée : validation du modèle 145
2.3.3. Conclusion : XPW et élargissement spectral 148
2.4. Conclusion 149

3. Filtrage XPW au millijoule à 1.06 µm 150
3.1. Dispositif expérimental 150
3.2. Transmission du filtre 151
3.3. Caractérisation du faisceau filtré 152
3.3.1. Amélioration du contraste : corrélation grande dynamique 152
3.3.2. Caractérisation spatiale 154
3.3.3. Caractérisation temporelle et spectrale 155
3.4. Conclusion : expériences à 1.06 µm 156
4. Conclusion 157

Bibliographie 158

Le processus de génération d'une onde polarisée orthogonalement, à partir d'une polarisation linéaire, dans des cristaux dont la susceptibilité non linéaire est anisotrope, présente d'excellentes caractéristiques pour le filtrage temporel d'impulsions ultra-brèves et ultra-intenses. Les chapitres 4 et 5 ont validé les caractéristiques de ce processus en termes de rendement, d'efficacité potentielle pour l'amélioration du contraste et d'adaptabilité sur différents systèmes laser.

Ce chapitre présente l'application de la génération de polarisation croisée au filtrage non linéaire pour l'amélioration du contraste d'impulsions femtosecondes. Les impulsions injectées dans le filtre sont polarisées linéairement et présentent une énergie de l'ordre de 1 mJ. Les impulsions transmises par le filtre sont suffisamment énergétiques pour être complètement caractérisées.

J'expose tout d'abord les résultats des expériences réalisées au laboratoire, à 800 nm, qui ont permis la génération d'impulsions de 180 µJ dont le contraste mesuré est meilleur que 10 ordres de grandeur. Ensuite je présente de manière théorique et expérimentale l'influence de la phase spectrale du second ordre sur le filtrage par XPW, en termes de rendement et de comportement spectral. Enfin, la troisième partie de ce chapitre valide l'application du filtre à une longueur d'onde de 1.06 µm, dans le cadre d'expériences menées en collaboration avec le LULI pour la caractérisation d'une source de type OPCPA (Optical Parametric Chirped Pulse Amplification).

1. Filtrage XPW au millijoule à 800 nm

1.1. Dispositif expérimental

L'expérience de filtrage temporel par génération de polarisation croisée a été réalisée avec le laser de cadence kilohertz présenté au chapitre 3 (p. 52). L'énergie des impulsions est de 1.2 mJ pour une durée de 45 fs environ.

1.1.1. Conception du montage expérimental

Pour expliquer la conception du montage expérimental, il faut préciser que le filtrage de l'impulsion directement en sortie de compresseur, c'est-à-dire en champ proche, n'est pas efficace. En effet, puisque l'impulsion est énergétique, nous pouvions imaginer réduire la taille du faisceau, le collimater et le filtrer immédiatement avec des cristaux longs. Tout d'abord, notons que la qualité spatiale du faisceau en champ proche n'est pas excellente (présence de points chauds), ce qui peut créer des surintensités dans le cristal. Mais surtout, pour éviter de générer de l'automodulation de

phase dans les lentilles de l'afocal réducteur, la section minimale du faisceau après réduction serait d'environ 3 mm. Dans ce cas, la densité d'énergie est de l'ordre de 10^{11} Wcm^{-2}. Pour obtenir un rendement de 5%, il faudrait au moins 20 mm de BaF_2. Or, pour une impulsion de durée initiale 45 fs, la dispersion de vitesse de groupe introduite par 17 mm de cristal, allonge la durée de l'impulsion d'un facteur $\sqrt{2}$, ce qui entraîne bien sûr une perte de l'efficacité de conversion. Le filtrage par génération de polarisation croisée n'est pas efficace en champ proche.

Le filtrage de l'impulsion s'effectue donc en champ lointain, c'est-à-dire au foyer d'une lentille de focalisation. Cependant, l'énergie de l'impulsion (1.2 mJ) est importante. L'utilisation d'une lentille de longue focale est indispensable pour pouvoir placer le cristal au plus près de la zone de Rayleigh sans dommage. De plus, l'intensité au foyer doit être limitée pour éviter l'ionisation de l'air et une automodulation de phase excessive.

1.1.2. Description du dispositif

Le dispositif, schématisé figure 6.1, est semblable à celui des expériences précédemment décrites : le faisceau, polarisé linéairement, est focalisé au moyen d'une lentille de 3 m, puis collimaté avant d'atteindre l'analyseur.

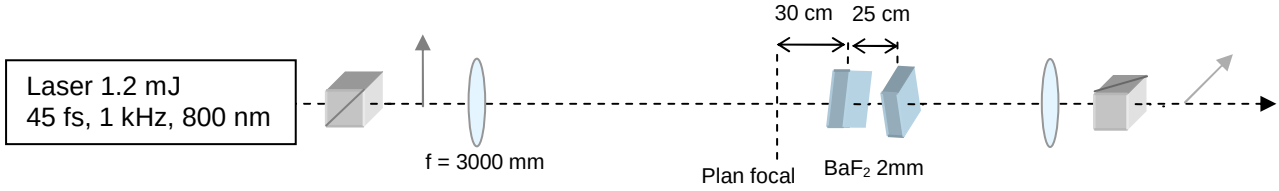

Figure 6.1 : Dispositif expérimental du filtre non linéaire

Nous avons vu, au chapitre 4 (p. 100), qu'une donnée capitale pour l'amélioration du contraste est le croisement des polariseurs. Le taux d'extinction mesuré du couple polariseur - analyseur utilisé dans cette configuration expérimentale est de 5.10^{-5}. Il s'agit de polariseurs de Glan, chacun composé de deux prismes en calcite non collés, séparés par une lame d'air. Ces polariseurs sont traités antireflet large bande autour de 800 nm.

Les cristaux employés sont des cristaux de fluorure de baryum, de longueur 2 mm, non traités antireflet, orientés avec un de leurs axes cristallins dans la direction de propagation du laser. Remarquons qu'il est possible de vérifier que le cristal a été convenablement taillé en tournant celui-ci dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation. A énergie incidente modérée et fixée, le signal XPW doit présenter des maxima égaux tous les 45°.

Malgré l'emploi d'une lentille de focale 3 m, il est impossible de placer un cristal au point focal, sous peine d'endommagement de l'échantillon. La position de celui-ci en aval du foyer est optimisée en mesurant le rendement XPW. En effet, le faisceau est plus propre spatialement après le point focal, puisque le plan de travail (champ lointain) est alors l'image d'un plan du laser situé très en amont dans la chaîne.

Le filtre comprend deux cristaux fins situés à distance optimale l'un de l'autre après le plan focal. L'efficacité de cette configuration a été démontrée au cours du chapitre 4 (p. 90-97). Le rendement de conversion optimal a été obtenu avec deux cristaux de 2 mm. Le premier est placé à environ 30 cm du foyer. Dans cette position, le rendement pour ce seul cristal est de 5%. Le deuxième cristal est imagé sur le premier grâce à la lentille de Kerr intervenant dans le premier cristal. La distance entre les deux échantillons donnant la meilleure transmission, de **15%** à **18%**, est de 25 cm.

1.1.3. Transmission du filtre

Nous estimons le diamètre du faisceau sur le premier cristal à environ 1.2 mm, ce qui correspond à une intensité incidente I_0 de l'ordre de 10^{12} Wcm^{-2}. La fluence est alors de 0.1 Jcm^{-2}, soit un ordre de grandeur sous le seuil de dommage du matériau [6.1]. Ceci garantit un fonctionnement routinier sans risque d'endommagement du filtre à moyen ou long terme.

Dans cette configuration, pour une énergie incidente de 1,2 mJ, l'efficacité quotidienne est de **15%**, ce qui signifie que l'énergie en sortie du filtre est de 180 µJ. Le faisceau filtré est suffisamment énergétique pour être complètement caractérisé et injecté dans les amplificateurs de puissance.

Comparons cette valeur expérimentale de transmission avec la courbe de rendement XPW théorique pour un faisceau gaussien présentée au chapitre 4 (graphe 4.7, p. 87). Une estimation de la valeur de $\gamma_0 A_0^2 L$ dans les conditions de l'expérience donne : $\gamma_0 A_0^2 L = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 I_0 L \approx 5$.

Il ne s'agit que d'une approximation, en raison de l'incertitude liée à la valeur de I_0 et surtout de n_2. La courbe de rendement XPW théorique donne pour cette valeur de $\gamma_0 A_0^2 L$ l'efficacité maximale de 23%. La valeur expérimentale de 15% est du même ordre de grandeur. L'écart s'explique par le fait que nous ne prenons pas en compte dans la mesure de la transmission les pertes en énergie par réflexion sur les cristaux, par l'incertitude du calcul de $\gamma_0 A_0^2 L$ et surtout par la qualité spatiale médiocre du faisceau (bruité et pas parfaitement gaussien, cf p. 135).

1.2. Caractérisation du faisceau filtré

1.2.1. Amélioration du contraste : corrélation grande dynamique

L'amélioration du contraste temporel a été estimée avec le corrélateur grande dynamique du troisième ordre développé au laboratoire dans le cadre du contrat SHARP (chapitre 1, p. 18).

Le profil de l'impulsion avant et après nettoyage a été mesuré avec la même énergie injectée dans l'appareil, soit 180 µJ. Pour ce niveau de signal, la limite de détectivité du corrélateur est de 10^{-11}, ce qui va permettre de mesurer le résiduel d'ASE. Les résultats apparaissent figure 6.2.

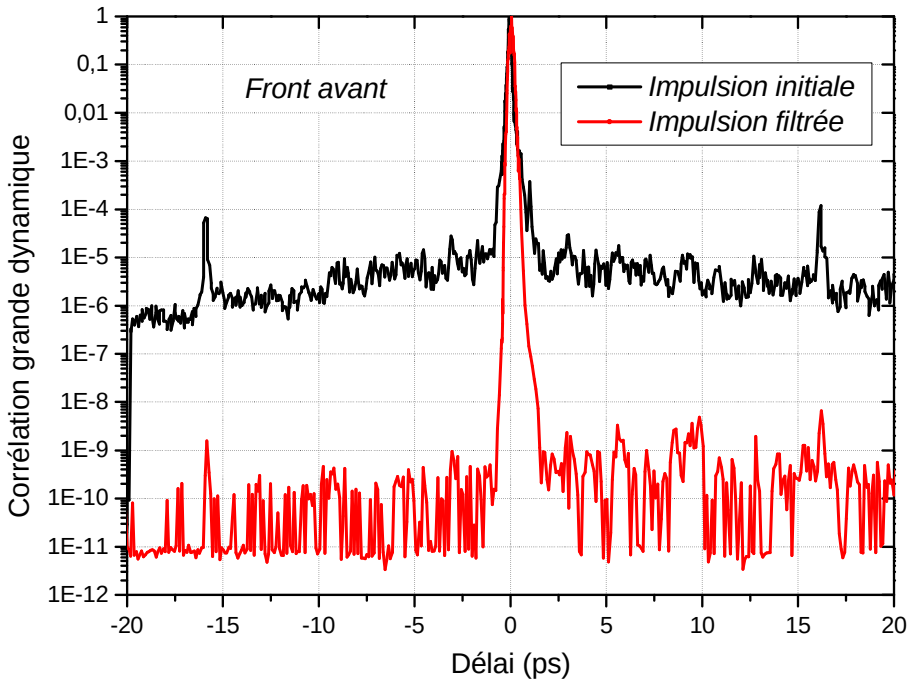

Figure 6.2 : Corrélation grande dynamique de l'impulsion avant et après filtrage. Le rendement de conversion XPW est de 15%.

L'amélioration du contraste est considérable : le piédestal d'ASE est réduit de plus de 4 ordres de grandeur, de même que l'intensité des impulsions parasites. L'impulsion générée exhibe, environ 10 ps avant l'impulsion, un contraste meilleur que 10^{10}. Le résiduel d'ASE étant très faible, nous atteignons les limites de détectivité de l'appareil. Le corrélateur est alors extrêmement sensible au bruit, ce qui explique l'allure modulée et bruitée du signal d'intensité relative 10^{-10}.

La grande dynamique de la mesure permet de comparer cette courbe à celle prévue théoriquement (chapitre 4, p. 99) en utilisant les valeurs mesurées d'efficacité ($\eta = 15\%$) et de taux d'extinction ($\tau = 5\times10^{-5}$) :

$$C_{out} = C_{in}^3 \frac{\frac{\eta_{eff}}{K} + \tau}{\frac{\eta_{eff}}{K} + \tau C_{in}^2} \qquad (6.1)$$

K vaut $\frac{8}{45}$ pour une onde gaussienne.

Le résultat de ce calcul apparaît sur la figure 6.3, où sont aussi tracées les courbes mesurées expérimentalement. Le niveau d'ASE, l'intensité des impulsions parasites et le front de montée de l'impulsion principale calculés correspondent bien à la mesure de corrélation.

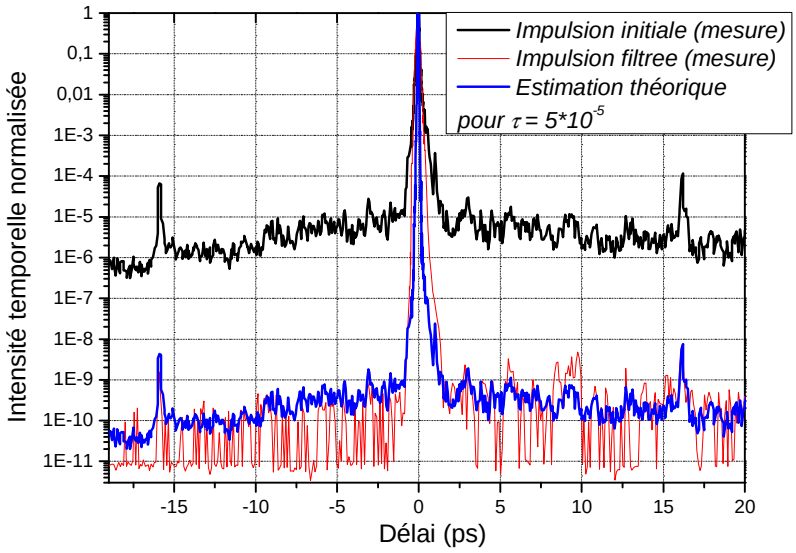

Figure 6.3 : Estimation théorique de l'amélioration du contraste par XPW dans les conditions de l'expérience ($\tau = 5.10^{-5}$) et comparaison avec la mesure expérimentale.

L'impulsion filtrée apparaît plus courte théoriquement qu'expérimentalement. Ceci s'explique par le fait que l'impulsion filtrée réelle a traversé, avant d'entrer dans le corrélateur, de nombreux éléments ajoutant de la dispersion de vitesse de groupe (polariseurs, lentilles). De plus, l'appareil de mesure n'est pas prévu pour mesurer avec précision la durée des impulsions.

Notre modèle simple permet de prévoir le contraste final obtenu après filtrage selon les caractéristiques du dispositif. De plus, l'importance cruciale de la valeur du taux d'extinction des polariseurs est confirmée. Il s'agit de la limite principale pour l'amélioration du contraste.

Il est par ailleurs intéressant de visualiser le profil temporel qui serait obtenu dans ces conditions expérimentales ($\eta = 15\%$) avec des polariseurs d'extinction 10^{-6} (fig. 6.4).

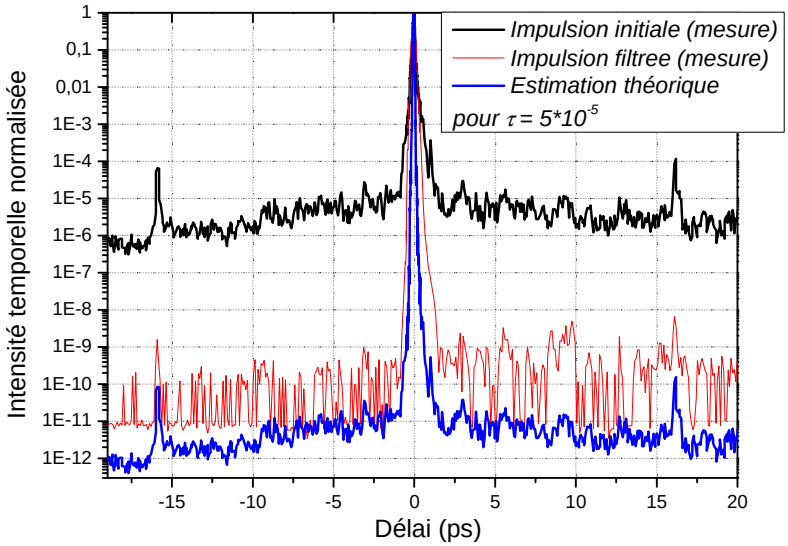

Figure 6.4 : Estimation théorique de l'amélioration du contraste par XPW si $\tau = 10^{-6}$ et comparaison avec la mesure expérimentale ($\tau = 5.10^{-5}$).

Le contraste serait alors meilleur que 10^{11}. De plus, un laser millijoule kilohertz peut présenter un meilleur contraste initial que celui utilisé pour ces expériences. Il peut atteindre 9 ordres de grandeur. Avec des polariseurs d'excellente qualité, il est possible de générer des impulsions de contraste bien meilleur que 10^{12}. Ces performances peuvent résoudre la problématique du contraste pour la construction de chaînes laser très haute puissance crête.

Le filtrage par XPW est adapté à la génération d'impulsions à contraste temporel très élevé.

1.2.2. Caractérisation spatiale

Il est indispensable d'évaluer la qualité spatiale de l'impulsion transmise.

La bonne qualité du profil spatial du signal est capitale pour son utilisation ultérieure. Comme pour tout filtrage en champ lointain, la qualité spatiale du faisceau est en fait grandement améliorée après génération de XPW. Lors du processus de conversion, la modulation d'intensité du profil spatial est élevée au cube ($I_{XPW} \propto I_0^3$), ce qui est schématisé sur la figure 6.5. Les hautes fréquences spatiales, après filtrage, présentent ainsi une intensité relative beaucoup plus faible. D'autre part, le diamètre du faisceau est réduit d'un facteur $\sqrt{3}$ environ. De fait, le faisceau XPW présente une

divergence plus grande que le faisceau initial, dont il faut tenir compte dans la conception du montage.

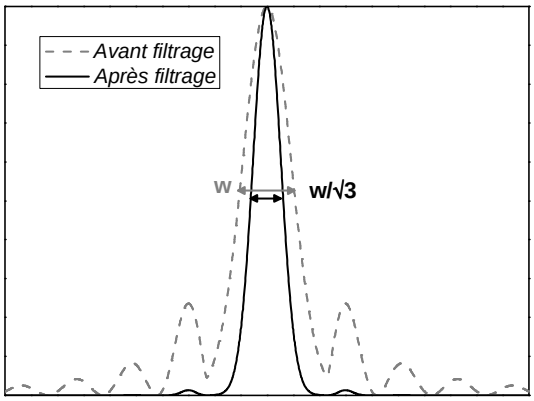

Figure 6.5 : Schématisation d'une coupe transverse du faisceau initial et du faisceau converti. Action du processus XPW sur le profil spatial du faisceau en champ lointain.

Le faisceau recouvre donc un profil lisse, moins de défauts surgissent lors de la propagation après filtrage, comme le montrent les deux figures suivantes. Les images avant et après filtrage ont été enregistrées après l'analyseur (champ proche).

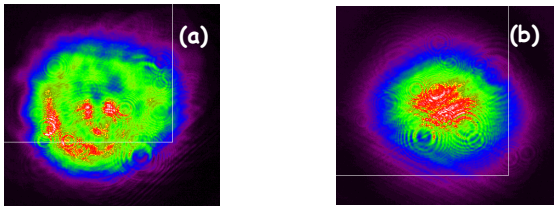

Figure 6.6 : Images du profil spatial du faisceau avant (a) et après (b) filtrage. Le rendement de conversion XPW est de 15%.

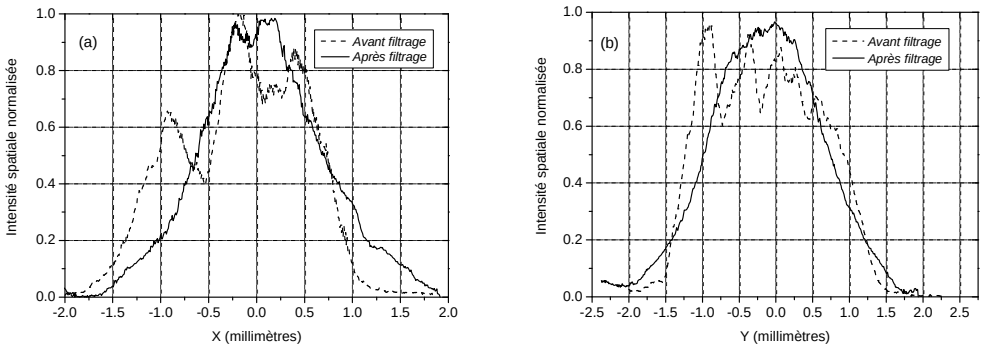

Figure 6.7 : Coupes en X (a) et Y (b) du profil spatial du faisceau avant et après filtrage.

Le faisceau initial, en champ proche, présente un profil médiocre, avec une répartition d'intensité à peu près uniforme mais avec des points chauds. Après filtrage, la forme du faisceau se rapproche davantage d'une gaussienne.

1.2.3. Caractérisation spectrale

Afin de caractériser l'influence du filtrage sur les caractéristiques spectrales en intensité et en phase du faisceau, il est nécessaire de s'affranchir de l'automodulation de phase générée par la focalisation dans l'air d'une impulsion de 1.2 mJ. Il est nécessaire de réduire l'énergie incidente tout en conservant la valeur du rendement XPW.

- Mesure de l'intensité spectrale

Nous avons réduit l'énergie du laser à 150 μJ et utilisé une lentille de focale 1.5 m. Dans ce cas, l'intensité sur les cristaux est la même que dans les conditions expérimentales précédentes ($\approx 10^{12}$ Wcm^{-2}), le premier échantillon est placé au foyer et on s'affranchit des problèmes de focalisation dans l'air. Nous vérifions sans les cristaux en décroisant l'analyseur que le spectre de l'impulsion n'est pas modulé par passage dans cet afocal. En utilisant toujours deux cristaux de BaF_2 de longueur 2 mm, un signal XPW est généré avec le même rendement de conversion que précédemment (15%), ceci correspond à un signal d'une vingtaine de microjoules. Le spectre de ce signal est centré à 810 nm et présente une largeur à mi-hauteur de 23 nm (fig. 6.8).

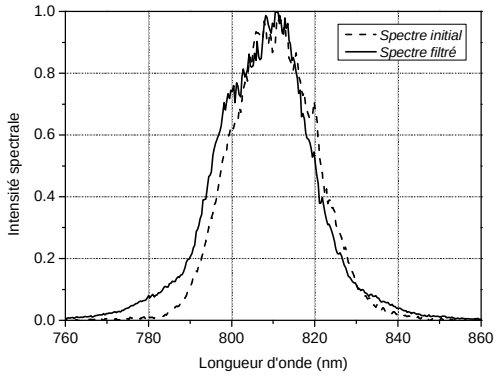

Figure 6.8 : Spectre de l'impulsion avant ($\lambda_0 = 810\,nm, \Delta\lambda \approx 21\,nm$) et après ($\lambda_0 = 809\,nm, \Delta\lambda \approx 23\,nm$) filtrage. Le rendement de conversion est de 15%.

Ces résultats montrent que, pour un rendement de 15%, le spectre filtré n'est pas dégradé par le processus de conversion. Aucun défaut de modulation n'est visible, le spectre est gaussien, un peu plus large que le spectre incident.

Ce bon résultat (absence de modulations) peut s'expliquer en estimant la phase non linéaire accumulée durant le processus.

Nous avons vu dans le chapitre 5 (p. 119) que l'onde XPW subit une automodulation de phase négligeable. La phase non linéaire accumulée est essentiellement due à la modulation de phase croisée. Cette phase est estimée valoir $\frac{2}{3}$ de l'automodulation de phase du champ fondamental.

Or la phase non linéaire accumulée par le champ fondamental a été estimée au paragraphe 1.1.3 (p. 128) et vaut : $\phi_{NL} = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 I_0 L \approx 5\ rad$.

La phase non linéaire du champ généré vaut donc environ : $\phi_{NL,XPW} = \frac{2}{3}\phi_{NL} \approx \pi\ rad$.

Cette valeur est une limite supérieure puisque que le calcul considère que l'intensité crête du champ fondamental ne varie pas au cours de l'interaction, ce qui est faux. La majeure partie du "centre" de l'impulsion est convertie.

En effet, l'allure du spectre de l'impulsion filtrée, qui ne présente aucune modulation mais dont les ailes latérales sont renforcées, correspond à une phase non linéaire de l'ordre de 0.5π d'après [6.2].

La phase non linéaire accumulée par l'onde transmise est donc tout à fait raisonnable.

- Mesure de la phase spectrale

En ce qui concerne la phase spectrale, il est important de noter que, au contraire du filtrage par rotation de polarisation elliptique dans l'air, aucune phase spectrale spécifique en entrée du filtre n'est nécessaire pour le bon fonctionnement de celui-ci.

Une mesure SPIDER de l'impulsion après filtrage est effectuée. Pour le SPIDER, 20 µJ ne suffisent pas. L'énergie en entrée du filtre est augmentée jusqu'à 300 µJ. Nous mesurons un signal XPW de 55 µJ (18%), ce qui est suffisant pour le SPIDER.

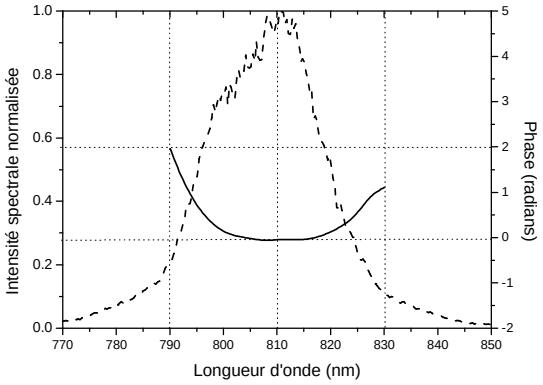

Figure 6.9 : Intensité spectrale et mesure SPIDER de la phase spectrale de l'impulsion après filtrage. Le rendement de conversion est de 15%.

La figure 6.9 montre que la phase de l'impulsion nettoyée est continue, ne présente pas de modulations rapides et n'est pas distordue. Sur la plage spectrale 790 nm - 830 nm, l'amplitude de la phase est de 2 radians. Cette quantité peut être compensée lors de l'étirement et l'amplification pour la deuxième chaîne CPA.

Un fit au quatrième ordre de cette phase est calculé sur cette plage spectrale.

$$\varphi(\lambda) = \frac{1}{2}\left[2\pi c\left(\frac{1}{\lambda} - \frac{1}{\lambda_0}\right)\right]^2 \varphi^{(2)} + \frac{1}{6}\left[2\pi c\left(\frac{1}{\lambda} - \frac{1}{\lambda_0}\right)\right]^3 \varphi^{(3)} + \frac{1}{24}\left[2\pi c\left(\frac{1}{\lambda} - \frac{1}{\lambda_0}\right)\right]^4 \varphi^{(4)} \qquad (6.2)$$

Les valeurs de fit obtenues sont $(\lambda_0 = 810nm)$: $\varphi^{(2)} = 620\, fs^2$, $\varphi^{(3)} = -55000\, fs^3$, $\varphi^{(4)} = 6\times10^6\ fs^4$. Le résiduel, très faible, a une amplitude maximale de 0.05 rad.

La quantité de $\varphi^{(2)}$ correspond à la quantité de matière traversée dans le filtre et est très facilement compensable. Les valeurs de $\varphi^{(3)}$ et $\varphi^{(4)}$ ne sont pas négligeables. Une partie de ces quantités provient peut-être de l'impulsion initiale. Cette phase devra être compensée lors de l'amplification ultérieure de l'impulsion (étireur, Dazzler…).

1.3. Conclusion : expériences à 800 nm

Le filtre non linéaire par génération de polarisation croisée décrit et caractérisé dans ce chapitre est très efficace. Les deux cristaux de BaF_2 sont alors placés en champ lointain d'une lentille longue focale. Le dispositif à deux cristaux est parfaitement adaptable à des impulsions énergétiques de l'ordre du millijoule. Il permet d'obtenir de manière routinière et reproductible un rendement de conversion de 15%.

La caractérisation des impulsions filtrées a montré que le contraste temporel prévu théoriquement est atteint. Nous avons mesuré un contraste meilleur que 10 ordres de grandeur. Cette performance dépend essentiellement du contraste initial et du taux d'extinction des polariseurs. Il est envisageable d'obtenir grâce au filtre XPW un contraste meilleur que 12 ordres de grandeur.

Du point de vue spatial, le faisceau généré est plus petit que le faisceau initial et présente une plus grande divergence. La qualité spatiale du faisceau est nettement améliorée lors du filtrage.

Enfin, les caractéristiques spectrales en intensité et en phase de l'impulsion sont conservées.

L'implémentation définitive du filtre nécessite de l'installer sous un vide primaire pour éviter tout effet non linéaire supplémentaire dû à la focalisation dans l'air.

Ces résultats ont conduit à une publication [6.3]. Dans cet article, le système à deux cristaux n'a pas été évoqué, afin de respecter la confidentialité nécessaire au dépôt du brevet. Nous estimons que le système à deux cristaux modifie essentiellement la transmission et la stabilité du filtre par rapport au dispositif à cristal unique. Les résultats présentés dans l'article correspondent donc à un système à deux cristaux dont nous avons limité le rendement à 10%.

2. Influence de la phase spectrale du second ordre

Les résultats précédents ont été obtenus dans une configuration où l'impulsion est quasiment parfaitement comprimée lors de l'interaction. Dans le but d'identifier les paramètres pouvant dégrader les performances du filtre, il est intéressant de connaître le comportement du processus de génération de polarisation croisée si l'impulsion possède une valeur phase spectrale du second ordre (chirp) non nulle. Nous pouvons distinguer deux configurations.

D'une part, lorsque la valeur de chirp est très importante, l'impulsion est étirée temporellement, jusqu'à une durée de plusieurs picosecondes ou dizaines de picosecondes. Cette configuration est intéressante car, s'il est vérifié que le filtre fonctionne bien dans ces conditions, il n'est plus nécessaire de comprimer l'impulsion avant filtrage, c'est-à-dire après pré-amplification. Considérons par exemple une impulsion de durée 1 ps. Pour atteindre l'intensité crête nécessaire (10^{12} Wcm^{-2}) pour un bon rendement de conversion, la fluence sur le cristal doit être de 1 Jcm^{-2}, ce qui est de l'ordre de grandeur du seuil de dommage du matériau en régime picoseconde [6.1]. Le cristal est donc endommagé avant d'obtenir un rendement de conversion suffisant. Nous l'avons vérifié expérimentalement. Il n'est pas possible d'utiliser le filtre XPW en régime picoseconde.

D'autre part, nous devons également considérer le cas où le chirp est relativement faible, la durée de l'impulsion étant alors allongée à quelques centaines de femtosecondes. En effet, les matériaux traversés après compression (polariseurs, lentilles….), introduisent essentiellement de la phase spectrale du second ordre dont la valeur peut être importante. Nous voulons savoir si cela est critique. J'ai donc réalisé une série de mesures visant à déterminer l'éventuelle influence de la phase spectrale du second ordre (quelques milliers de femtosecondes carrées) sur l'efficacité de conversion du filtre, la saturation du rendement et l'évolution du spectre lors du filtrage.

2.1. Dispositif expérimental

Les expériences ont été réalisées avec un laser émettant des impulsions de cadence 1 kHz, de durée 65 fs (spectre 15 nm centré à 820 nm) et d'énergie 70 μJ. La phase spectrale du second ordre (chirp), conventionnellement notée $\phi^{(2)}$, sera simplement notée φ dans ce paragraphe pour une meilleure lisibilité des calculs. Il est possible d'ajouter du chirp de signe positif ou négatif en déréglant le tirage du compresseur (chapitre 3, p. 58). Les réseaux du compresseur possèdent 1200

traits/mm et l'angle d'incidence est de 46°. L'excursion en phase spectrale est de ± 3000 fs². La durée maximale de l'impulsion chirpée est donc de 180 fs, c'est-à-dire trois fois sa durée initiale.

Le filtre est composé de deux polariseurs croisés (taux d'extinction de l'ordre de 8.10^{-5}), d'une lentille de focale 700 mm. Nous utilisons pour ces expériences un seul cristal de BaF_2 (2 mm). L'utilisation d'un deuxième cristal n'apporterait pas d'information supplémentaire pour cette série d'expériences. L'échantillon est positionné devant le foyer et n'est pas déplacé durant les mesures. Les seuls paramètres variables sont le chirp, via le compresseur, et l'énergie incidente grâce à une lame demi - onde placée avant le premier polariseur.

2.2. Influence de la phase spectrale du second ordre sur le rendement

Un des premiers points intéressants est de savoir si une certaine quantité de phase spectrale peut changer la valeur de la saturation de l'efficacité de la génération de XPW.

J'ai tracé sur la figure 6.10 en échelle logarithmique l'évolution de l'efficacité de conversion en fonction de l'énergie incidente pour quelques valeurs de phase spectrale. Pour une meilleure visibilité du graphique, seules les courbes correspondant à φ = 0 fs², 600 fs², 1500 fs², -2160 fs², -3000 fs² et -3700 fs² sont tracées. Elles sont représentatives des tendances observées.

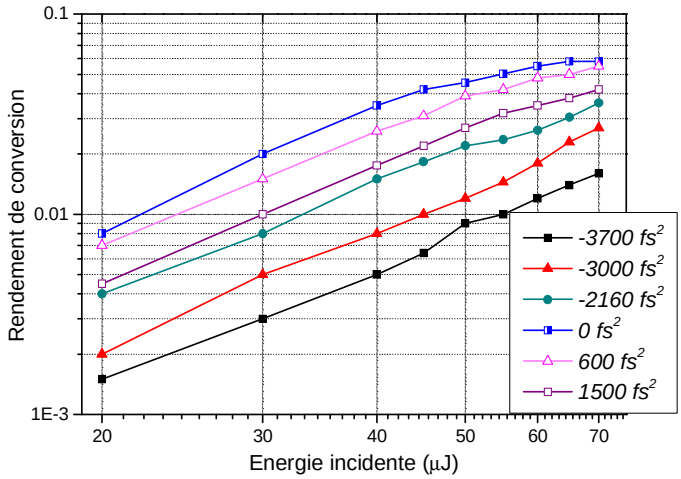

Figure 6.10 : Rendement de conversion XPW pour différentes valeurs de phase spectrale initiale.

Pour une impulsion bien comprimée $(\varphi = 0\, fs^2)$, hors saturation, l'efficacité varie quadratiquement avec l'énergie incidente. La courbe montre que la saturation commence pour une énergie d'environ 50 µJ, et le rendement sature finalement à 6%. Cette valeur n'est pas très élevée. Ceci peut être lié au choix de la lentille de focalisation ou à la qualité spatiale du faisceau. Mais ce n'est pas gênant dans le cadre de cette étude comparative.

Lorsque l'impulsion est très légèrement étirée $\left(-1000\,fs^2 < \varphi < 1000\,fs^2\right)$, les pentes des courbes sont également de 2 et le rendement sature aussi autour de 6%. Si le chirp ajouté est plus important, la saturation n'est pas visible (la durée augmente sensiblement) mais les courbes restent parallèles aux premières, le comportement de l'efficacité est le même.

La phase spectrale du second ordre n'entraîne donc pas une saturation précoce de l'efficacité de conversion.

Par contre, lorsque la transmission du filtre est optimisée, c'est-à-dire à énergie fixée, pour une phase donnée, la modification de phase spectrale modifie le rendement. La figure 6.11 montre, pour différentes valeurs d'énergie incidente, hors saturation, l'influence de la phase sur le rendement, celui-ci étant optimisé pour $\varphi = 0\,fs^2$.

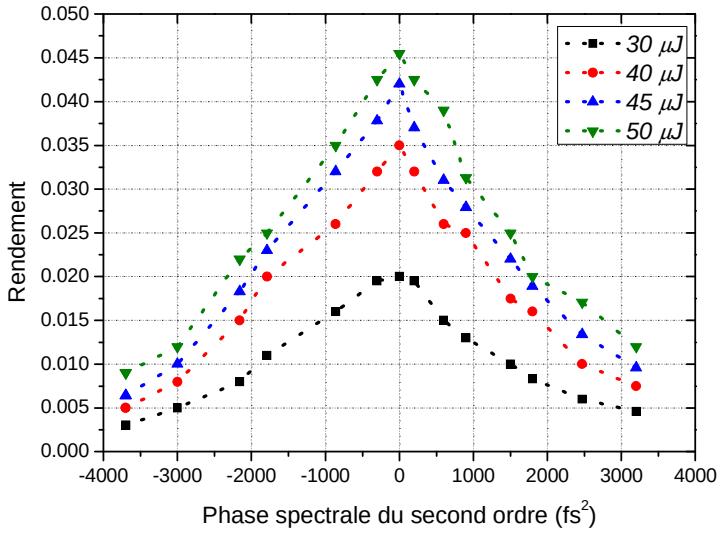

Figure 6.11 : Evolution du rendement XPW avec la valeur de chirp pour différentes valeurs d'énergie incidente. Le filtre fonctionne hors saturation.

Une décroissance du rendement lorsque la valeur de phase s'éloigne de 0 est observée. Cette décroissance ne présente pas de dissymétrie selon le signe du chirp. En effet, en modifiant la phase, on change avant tout la durée de l'impulsion.

Une manière de le vérifier est de tracer les courbes représentant le rendement en fonction de la durée effective de l'impulsion (figure 6.12). L'ajout de phase du deuxième ordre modifie la durée de l'impulsion selon :

$$\Delta t = \Delta t_0 \sqrt{1 + 16\left(\ln 2\right)^2 \frac{\varphi^2}{\Delta t_0^4}} \qquad (6.3)$$

Hors saturation, le rendement varie quadratiquement avec l'intensité incidente et doit donc présenter une dépendance en $\frac{1}{\Delta t^2}$, ce qui est vérifié, comme le montre la figure 6.12.

Les courbes de rendement sont tracées pour une énergie incidente de 30 µJ, 40 µJ, 45 µJ, 50 µJ et 55 µJ. Pour chacune, la dépendance avec la durée est inversement quadratique. Le terme constant du fit varie bien proportionnellement avec le carré de l'énergie incidente.

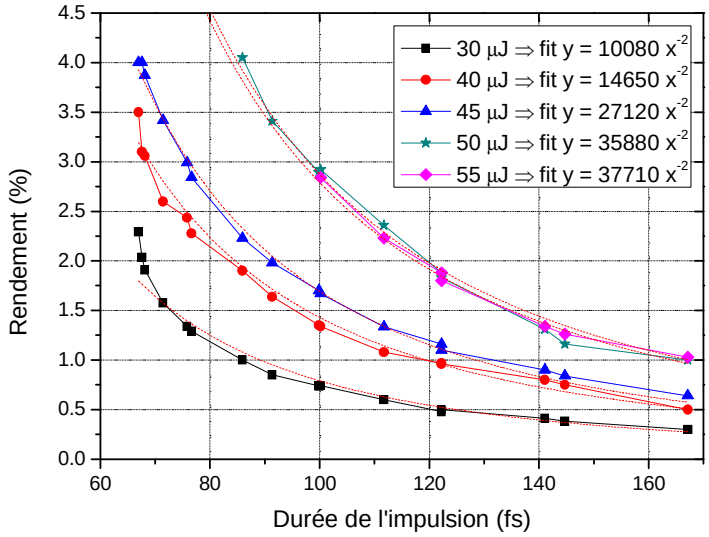

Figure 6.12 : Evolution du rendement XPW avec la durée de l'impulsion pour différentes valeurs d'énergie. Le filtre fonctionne hors saturation.

A énergie fixée, la phase spectrale du second ordre n'a pas d'autre influence sur la génération de polarisation croisée que celle induite par la modification de la durée de l'impulsion.

2.3. Evolution du spectre de l'impulsion XPW

2.3.1. *Résultats expérimentaux*

Pour évaluer le comportement spectral du filtre, j'ai mesuré le spectre après filtrage pour différentes valeurs de phase spectrale. Toutes les mesures ont été réalisées pour un même rendement XPW de 4%. On suppose qu'alors l'automodulation de phase et la saturation n'influencent pas le spectre du signal converti. La figure suivante montre l'évolution du spectre XPW comparé au spectre initial, pour des valeurs de chirp positives (a) et négatives (b).

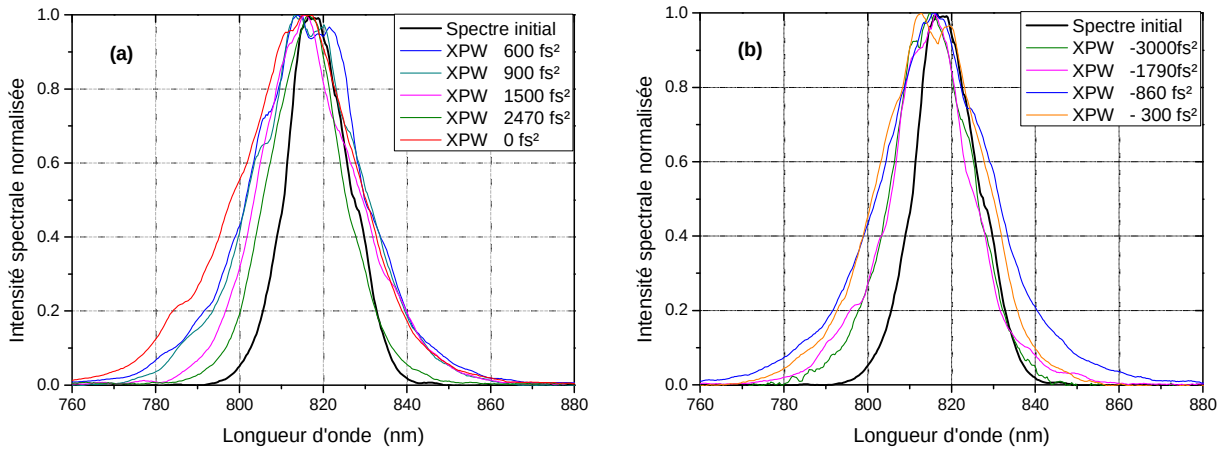

Figure 6.13: Evolution du spectre de l'impulsion XPW générée selon la valeur et le signe de la phase spectrale du deuxième ordre.

Nous remarquons que le spectre est toujours élargi quel que soit le signe de la phase spectrale, ceci confirme l'absence d'automodulation de phase significative (cf chapitre 3, p. 59, et annexe B). Par contre, il est clair que l'élargissement spectral est lié à la quantité de phase ajoutée, et maximal pour une impulsion parfaitement comprimée. Pour expliquer ce comportement, il faut revenir aux équations décrivant l'effet Kerr.

2.3.2. Effet Kerr : impulsion polychromatique

- Hypothèses

L'impulsion initiale a une durée effective Δt, une phase spectrale du deuxième ordre notée φ (fs^2). Si $\varphi = 0$, alors $\Delta t = \Delta t_0$. Δt_0 est la durée de l'impulsion limitée par transformée de Fourier et vaut 65 fs dans cette expérience. Nous cherchons à déterminer la durée effective et la phase spectrale de l'impulsion générée par effet Kerr, que nous noterons Δt_{Kerr} et φ_{Kerr}. Nous aurons ainsi accès à la durée limitée par transformée de Fourier de l'impulsion générée (Δt_{0Kerr}) et en conséquence à la largeur spectrale associée.

Une impulsion d'enveloppe Gaussienne, de porteuse ω_0, présentant une phase spectrale du deuxième ordre φ s'écrit :

$$E(\omega) = E_0 \exp\left(-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{4\Gamma_0}\right)\exp\left(j\frac{\varphi}{2}(\omega-\omega_0)^2\right) \qquad (6.4)$$

Γ_0 est lié à τ_0, la largeur spectrale en intensité à 1/e^2 par $\Gamma_0 = \frac{2}{\tau_0^2}$.

Γ_0 est également lié à Δt_0, durée de l'impulsion, mesurée à mi-hauteur, par :

$$\Gamma_0 = \frac{2\ln 2}{\Delta t_0{}^2} \tag{6.5}$$

Le champ $E(t)$ dans le domaine temporel est la transformée de Fourier inverse de $E(\omega)$ soit :

$$E(t) = TF^{-1}[E(\omega)] = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} E(\omega)\exp(-j\omega t)d\omega \tag{6.6}$$

$$E(t) = \frac{1}{2\pi}E_0\int_{-\infty}^{+\infty}\exp\left(-(\omega-\omega_0)^2\left(\frac{1}{4\Gamma_0}-j\frac{\varphi}{2}\right)\right)\exp(-j\omega t)d\omega \tag{6.7}$$

$$E(t) = \frac{1}{2\pi}E_0\exp\left(-\Gamma' t^2\right)\exp\left(-j\omega_0 t^2\right) \tag{6.8}$$

Avec :

$$\frac{1}{\Gamma'} = \frac{1}{\Gamma_0} - 2j\varphi. \tag{6.9}$$

Γ' peut s'écrire aussi :

$$\Gamma' = \frac{\Gamma_0}{1+4\varphi^2\Gamma_0^2} + j\frac{2\Gamma_0^2\varphi}{1+4\varphi^2\Gamma_0^2} \tag{6.10}$$

En remplaçant Γ' par cette expression dans *(6.8)*, le champ $E(t)$ s'écrit finalement :

$$E(t) = \frac{1}{2\pi}E_0\exp\left(-\Gamma t^2\right)\exp\left(-j\phi t^2\right)\exp\left(-j\omega_0 t^2\right) \tag{6.11}$$

En notant :

$$\Gamma = \frac{\Gamma_0}{1+4\varphi^2\Gamma_0^2} \tag{6.12}$$

$$\phi = \frac{2\Gamma_0^2\varphi}{1+4\varphi^2\Gamma_0^2} \tag{6.13}$$

ϕ correspond à la phase temporelle de l'impulsion.

Γ est lié à la durée effective Δt de l'impulsion chirpée :

$$\Gamma = \frac{2\ln 2}{\Delta t^2}. \tag{6.14}$$

Nous rappelons que Δt dépend de la phase spectrale φ selon :

$$\Delta t = \Delta t_0\sqrt{1+16(\ln 2)^2\frac{\varphi^2}{\Delta t_0^4}} \tag{6.15}$$

De *(6.12)* et *(6.13)* on déduit une relation entre Γ et ϕ, valable pour toute impulsion chirpée :

$$\boxed{\phi = 2\varphi\Gamma_0\Gamma} \tag{6.16}$$

- Effet Kerr

Pour une onde monochromatique, la polarisation $P^{(3)}$ associée à tout effet non linéaire du troisième ordre sans génération de nouvelle fréquence peut s'écrire :

$$P^{(3)}(\omega) \propto \chi^{(3)} E^{*}(\omega) E(\omega) E(\omega) \qquad (6.17)$$

Le champ Kerr E_{Kerr} alors généré est proportionnel à $P^{(3)}$.
On rappellera en particulier que, en première approximation, le champ XPW généré s'exprime d'une manière semblable : $B(\omega) \propto |A(\omega)|^2 A(\omega)$ (cf chapitre 4, p. 76).

Le problème est différent dans le cas d'une onde polychromatique. En effet, le mélange à quatre ondes peut être réalisé pour toutes les fréquences inclues dans la largeur spectrale de l'impulsion. Dans ce cas, la polarisation $P^{(3)}$ s'écrit comme un produit de convolution, qui réalise la somme de toutes les combinaisons possibles de somme de fréquences pour chacune des composantes spectrales. L'expression de $P^{(3)}$ devient donc :

$$P^{(3)}(\omega) \propto \chi^{(3)} E^{*}(\omega) \otimes E(\omega) \otimes E(\omega) \qquad (6.18)$$

$$P^{(3)}(t) \propto \tilde{\chi}^{(3)} E(t) E^{*}(t) E(t) \qquad (6.19)$$

D'après *(6.11)* et *(6.19)*, on déduit l'expression du champ E_{Kerr} généré lors de l'interaction en ne conservant que les termes à la fréquence ω_0 :

$$E_{Kerr}(t) = E_0' \exp(-3\Gamma t^2) \exp(-j\phi t^2) \exp(-j\omega_0 t^2) \qquad (6.20)$$

$$E_{Kerr}(t) = E_0' \exp(-\Gamma_{Kerr} t^2) \exp(-j\phi_{Kerr} t^2) \exp(-j\omega_0 t^2) \qquad (6.21)$$

Avec :

$$\Gamma_{Kerr} = 3\Gamma \qquad (6.22)$$

$$\phi_{Kerr} = \phi \qquad (6.23)$$

Γ_{Kerr} est lié à la durée effective Δt_{Kerr} de cette impulsion par la relation *(6.14)* et ϕ_{Kerr} est la phase temporelle de l'impulsion générée. La relation *(6.23)* montre que la phase temporelle de l'onde n'est pas modifiée lors de l'interaction.
D'après *(6.14)* et *(6.22)*, nous obtenons :

$$\frac{2\ln 2}{\Delta t_{Kerr}^2} = 3\frac{2\ln 2}{\Delta t^2} \qquad (6.24)$$

De la même manière, *(6.16)* et *(6.23)* donnent :

$$2\Gamma_{0Kerr}\Gamma_{Kerr}\varphi_{Kerr} = 2\Gamma_0\Gamma\varphi \qquad (6.25)$$

Nous rappelons que Γ_{0Kerr} est lié à Δt_{0Kerr}, la durée limitée par transformée de Fourier de l'impulsion générée, par :

$$\Gamma_{0Kerr} = \frac{2\ln 2}{\Delta t_{0Kerr}{}^2} \tag{6.26}$$

Finalement :

$$\boxed{\begin{aligned} \Delta t_{Kerr} &= \frac{\Delta t}{\sqrt{3}} \\ \varphi_{Kerr} &= \frac{\varphi}{3}\frac{\Delta t_{0Kerr}^2}{\Delta t_0^2} \end{aligned}} \tag{6.27}$$

La durée effective Δt_{Kerr} de l'impulsion induite par effet Kerr est réduite d'un facteur $\sqrt{3}$ par rapport à celle de l'impulsion initiale. Δt_{Kerr} est maintenant connu.

Nous savons d'autre part que Δt_{Kerr} s'écrit (équation *6.15* valable pour toute impulsion chirpée) :

$$\Delta t_{Kerr} = \Delta t_{0Kerr}\sqrt{1+16\left(\ln 2\right)^2\frac{\varphi_{Kerr}^2}{\Delta t_{0Kerr}^4}} \tag{6.28}$$

Nous pouvons maintenant écrire l'expression de la durée limitée par transformée de Fourier Δt_{0Kerr} de l'impulsion générée, d'après *(6.27)* et *(6.28)* :

$$\Delta t_{0Kerr} = \frac{\Delta t_{Kerr}}{\sqrt{1+16\left(\ln 2\right)^2\frac{\varphi^2}{9}\frac{1}{\Delta t_0^4}}} \tag{6.29}$$

Connaissant Δt_{Kerr}, calculé à partir de Δt, durée effective de l'impulsion initiale, Δt_{0Kerr} peut être calculé.

L'équation *(6.29)* s'écrit aussi grâce à *(6.27)* et *(6.28)* :

$$\boxed{\Delta t_{0Kerr} = \frac{\Delta t_0}{\sqrt{3}}\frac{\Delta t(\varphi)}{\Delta t\left(\frac{\varphi}{3}\right)} = \frac{\Delta t_0}{\sqrt{3}}Z(\varphi)} \tag{6.30}$$

L'équation *(6.30)* met en évidence une réduction de la durée limitée par transformée de Fourier de l'impulsion pendant l'interaction. Cette réduction est pondérée par le terme $Z(\varphi)$, qui dépend de la phase spectrale du second ordre selon :

$$Z(\varphi) = \frac{\sqrt{1+16(\ln 2)^2 \dfrac{\varphi^2}{\Delta t_0^4}}}{\sqrt{1+16(\ln 2)^2 \dfrac{\varphi^2}{9\Delta t_0^4}}} \qquad (6.31)$$

Deux conclusions peuvent être mises en évidence :

- Si la phase spectrale de l'impulsion initiale est nulle ($\varphi = 0$), alors $\varphi_{Kerr} = 0$. La durée limitée par transformée de Fourier Δt_{0Kerr} de l'impulsion XPW est réduite d'un facteur $\sqrt{3}$ par rapport à celle de l'impulsion initiale.
- Si $\varphi \neq 0$, la durée limitée par transformée de Fourier de l'impulsion XPW ne sera pas réduite du même facteur. Il faut appliquer un coefficient correctif $Z(\varphi)$, dépendant des propriétés (Δt_0, φ) de l'impulsion initiale. La figure 6.14 représente l'évolution de ce coefficient en fonction de φ, pour différentes valeurs de Δt_0 : $\Delta t_0 = 30$ *fs* (impulsion très courte), $\Delta t_0 = 45$ *fs* (condition expérimentale du premier paragraphe de ce chapitre), $\Delta t_0 = 65$ *fs* (condition expérimentale de cette expérience), $\Delta t_0 = 100$ *fs* (impulsion « longue »).

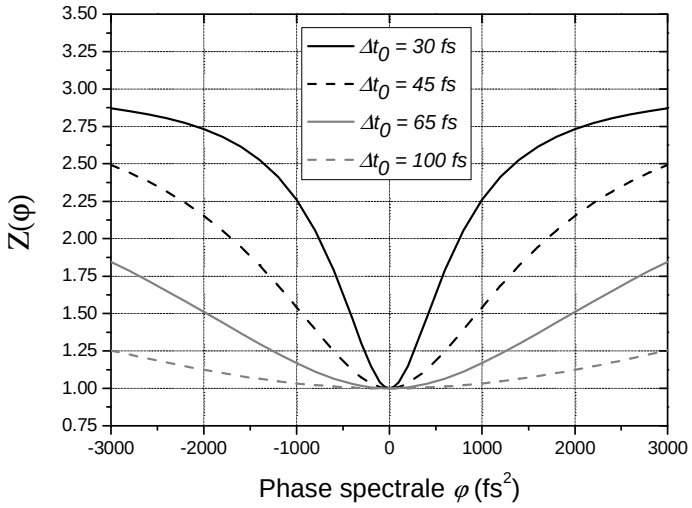

Figure 6.14 : Evolution de Z(φ) pour différentes valeurs de Δt0

Ce coefficient aura d'autant plus d'impact sur la durée limitée par transformée de Fourier de l'impulsion XPW que l'impulsion initiale est brève. Pour les impulsions très courtes, il est donc nécessaire de parfaitement contrôler la phase spectrale.

- Largeur spectrale de l'impulsion générée : validation du modèle

Le calcul de la largeur spectrale $\Delta\lambda_{Kerr}$ de l'impulsion XPW va permettre de valider le modèle, de le confronter avec les mesures expérimentales et de conclure quant à l'influence du chirp sur l'élargissement spectral lors de la génération de polarisation croisée.
La largeur spectrale dépend de Δt_{0Kerr} calculé en *(6.30)* :

$$\Delta t = \frac{2\ln 2}{\pi}\frac{\lambda_0^2}{c\,\Delta\lambda} \approx 0.441\frac{\lambda_0^2}{300\,\Delta\lambda} \qquad (6.32)$$

La formule (*6.32)* est valide pour un spectre gaussien, $\Delta\lambda$ et λ_0 sont exprimés en nanomètres et Δt_{0Kerr} en femtosecondes.

La figure 6.15 représente la largeur spectrale du signal XPW, calculée et mesurée, selon la valeur de chirp initial. La largeur spectrale mesurée est obtenue à partir d'un fit gaussien du spectre expérimental. Plusieurs spectres ont été enregistrés pour chaque point et moyennés entre eux. Compte tenu de l'instabilité du laser, on admet une marge d'erreur de ± 2 nm sur la largeur spectrale mesurée. La concordance entre les valeurs mesurées et le calcul est bonne.

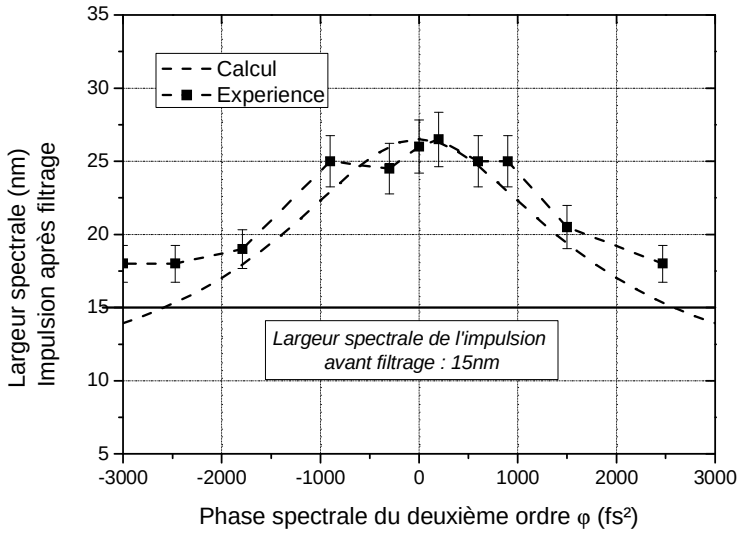

Figure 6.15 : Largeur spectrale de l'impulsion XPW mesurée et calculée selon la valeur initiale de la phase spectrale.

Le modèle théorique est cohérent avec les mesures expérimentales. Sur la plage spectrale explorée (± 3000 fs^2), le spectre de l'impulsion générée est toujours élargi. Cet élargissement dépend de la valeur de φ et est symétrique par rapport au signe de la phase.

D'autre part, nous remarquons que, d'après la courbe théorique, pour les très grandes valeurs de phase, le spectre de l'impulsion XPW serait réduit par rapport au spectre initial. Dans ce cas l'étalement temporel linéaire des fréquences est très grand et les fréquences extrêmes se trouvent dans les ailes moins intenses de l'impulsion temporelle initiale. Elles peuvent donc ne pas ou peu être converties.

L'élargissement spectral maximal est obtenu quand l'impulsion est parfaitement comprimée. Dans ce cas le spectre est élargi d'un facteur $\sqrt{3}$. Cette augmentation de la largeur à mi-hauteur du spectre ainsi que la réduction de la durée correspondante seront mises en évidence lors des expériences à 1.06 μm (paragraphe 3 de ce chapitre).

Il peut être aussi intéressant de tracer la phase spectrale du deuxième ordre φ_{Kerr} après filtrage en fonction de la phase φ de l'impulsion initiale pour les conditions expérimentales ($\Delta t_0 = 65\ fs$). La figure 6.16 montre que la phase spectrale de l'impulsion générée lors de l'interaction est toujours plus faible que celle de la phase initiale.

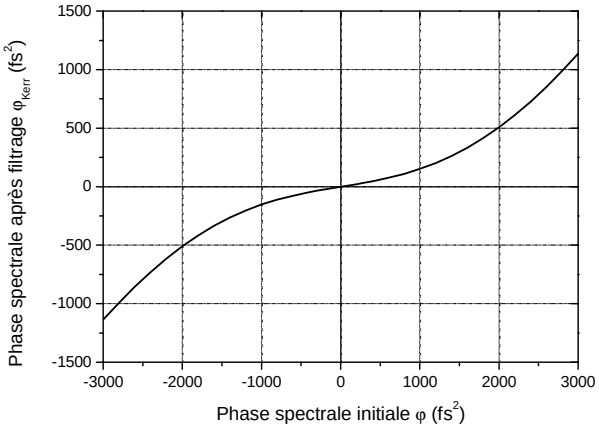

Figure 6.16 : Phase spectrale de l'impulsion XPW en fonction de la phase spectrale de l'impulsion initiale.

Les propriétés spectrales et temporelles de l'impulsion XPW générée sont maintenant connues. En tenant compte des conditions expérimentales, nous pouvons prévoir la largeur spectrale, la durée et la phase spectrale de cette impulsion.

2.3.3. Conclusion : XPW et élargissement spectral

Essayons d'expliquer avec ces résultats les largeurs spectrales mesurées à 800 nm dans le paragraphe précédent. La figure 6.17 rappelle les spectres enregistrés avant et après filtrage avec un rendement de 15%. Le spectre initial présente une largeur de 21 nm centré à 810 nm, soit une durée limitée par transformée de Fourier Δt_0 de 45 fs.

Les matériaux traversés par l'impulsion (lame λ/2, polariseur, lentille de focalisation, deux cristaux) introduisent une phase du deuxième ordre φ de l'ordre de 1000 fs^2.

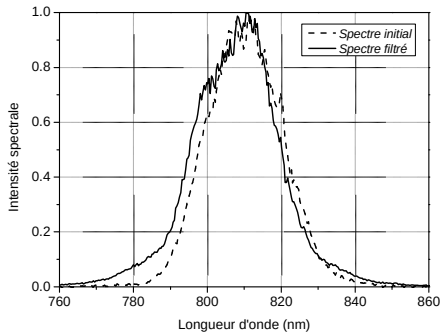

Figure 6.17 : Spectre de l'impulsion avant ($\lambda_0 = 810\,nm, \Delta\lambda \approx 21\,nm$) et après ($\lambda_0 = 809\,nm, \Delta\lambda \approx 23\,nm$) filtrage. Le rendement de conversion est de 15%.

En utilisant ces valeurs et les formules (*6.30)* et (*6.32)*, nous pouvons tracer l'évolution du spectre après filtrage selon la quantité initiale de phase spectrale (fig. 6.18).

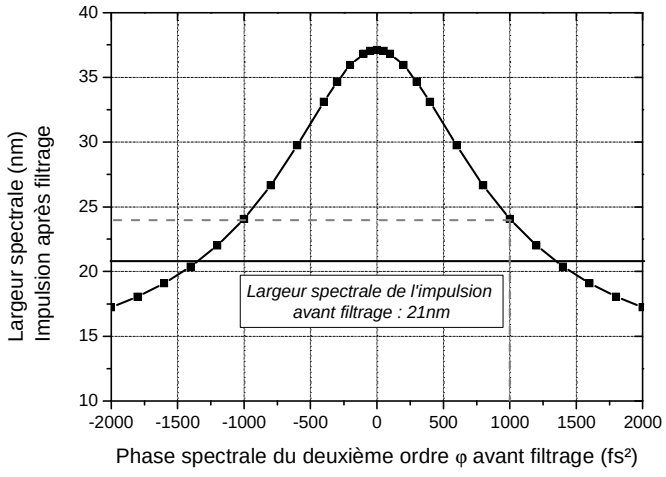

Figure 6.18 : Largeur spectrale théorique de l'impulsion XPW selon la valeur initiale de phase spectrale.

Le spectre après filtrage présente théoriquement une largeur à mi-hauteur de 24 nm. Le spectre expérimental mesure 23 ± 1 nm. La concordance entre la valeur mesurée et celle calculée est bonne.

Signalons également que, à haut rendement, d'autres phénomènes tels que l'automodulation de phase peuvent contribuer aux modifications spectrales.

La meilleure configuration est de pré-compenser soigneusement la phase introduite par les éléments traversés et la propagation avant filtrage. Dans ce cas, le spectre de l'impulsion à fort contraste peut être élargi d'un facteur $\sqrt{3}$. Cette qualité est importante en vue de l'amplification ultérieure de l'impulsion filtrée. En effet, de grands efforts sont entrepris aujourd'hui pour générer des impulsions de plus en plus brèves afin d'augmenter l'intensité crête disponible.

2.4. Conclusion

Nous avons établi au cours de cette étude que le processus de génération de polarisation croisée ne peut avoir lieu qu'en régime femtoseconde, et non en picoseconde. La limitation dans ce cas est le seuil de dommage du cristal.

D'autre part, il est démontré que la seule influence de la phase spectrale du deuxième ordre est de modifier la durée de l'impulsion, et, en conséquence, le rendement de conversion XPW. Elle n'influe pas sur la saturation du rendement XPW.

Enfin, nous avons validé le calcul de la durée, de la phase, et de la largeur spectrale de l'impulsion convertie. La durée de l'impulsion convertie est réduite et son spectre est élargi selon la quantité de phase spectrale du second ordre de l'impulsion initiale. L'influence de la phase est d'autant plus importante que le spectre de l'impulsion initiale est large.

L'élargissement maximal du spectre est obtenu si l'impulsion incidente est parfaitement comprimée. Dans ce cas, la largeur spectrale est augmentée d'un facteur $\sqrt{3}$ et la durée est réduite d'autant.

La réduction potentielle de la durée de l'impulsion lors du processus de génération de polarisation croisée est extrêmement intéressante. Cela permet d'augmenter le rendement de conversion en termes d'intensité crête. Nous allons le vérifier lors des expériences suivantes.

3. Filtrage XPW au millijoule à 1.06 μm

Dans ce paragraphe, nous confirmons de manière expérimentale que la technique de filtrage par génération de polarisation croisée peut être adaptée à un laser émettant des impulsions de durée quelques centaines de femtosecondes à 1.06 μm. Ces caractéristiques sont celles, par exemple, des lasers basés sur l'amplification dans des verres dopés au néodyme, utilisés fréquemment dans les chaînes laser de forte puissance. En effet, ces matériaux peuvent être de grande dimension et permettent l'amplification, en configuration CPA, d'impulsions jusqu'à des énergies de quelques centaines de joules, avec des durées inférieures à 1 ps.

L'installation du filtre XPW sur un laser à 1.06 μm s'est faite au Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses (LULI, Ecole Polytechnique) en collaboration avec Arnaud Cotel, Nicolas Forget et Catherine Le Blanc, sur une source OPCPA (Optical Parametric Chirped Pulse Amplification). Ce type de source combine la technique d'amplification à dérive de fréquences avec l'amplification paramétrique [6.4-6.6].

Cette expérience a permis de confirmer le bon rendement du filtre XPW (> 20%) ainsi que la réduction de la durée de l'impulsion pendant l'interaction.

3.1. Dispositif expérimental

La chaîne utilisée est schématisée figure 6.19. Un oscillateur émet des impulsions de 150 fs avec un spectre de 10 nm centré autour de 1.057 μm (oscillateur Ti :Sa *Tsunami* commercialisé par Spectra Physics), ensuite étirées par un étireur à triplet de Öffner. L'amplificateur paramétrique optique (OPA) comprend deux étages (deux cristaux de BBO sont pompés par un laser Nd :YAG doublé, injecté, *Quantaray* également commercialisé par Spectra Physics). L'impulsion comprimée présente une énergie d'environ 1 mJ, avec une durée de 310 fs. Le taux de répétition est 10 Hz.

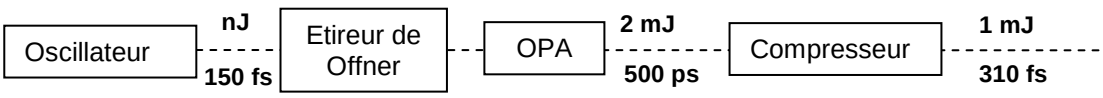

Figure 6.19 : Dispositif expérimental source OPCPA du LULI

Le filtre XPW comprend une paire polariseur – analyseur, dont le taux d'extinction, faible, est de 5.10^{-3}. La lentille de focalisation est de 1.5 m. En effet, la durée des impulsions étant beaucoup

plus grande qu'à 800 nm, nous sommes moins gênés par les problèmes d'automodulation de phase liés à la focalisation dans l'air. Deux cristaux de BaF_2 non traités antireflet de longueur 2 mm sont employés. Le premier est placé 16 cm après le foyer. L'imagerie entre les deux repose sur la lentille de Kerr dans le premier cristal. Quand le rendement est optimisé, la distance entre les deux échantillons est d'environ 15 cm.

3.2. Transmission du filtre

La transmission maximale du filtre obtenue lors de cette expérience est de **22%**, pour une énergie incidente de 850 μJ. Ce bon résultat est dû au dispositif à deux cristaux et au bon profil spatial du faisceau. La caractérisation du profil spatial du faisceau source dans le plan du premier cristal montre en effet que celui-ci est parfaitement gaussien (figure 6.20).

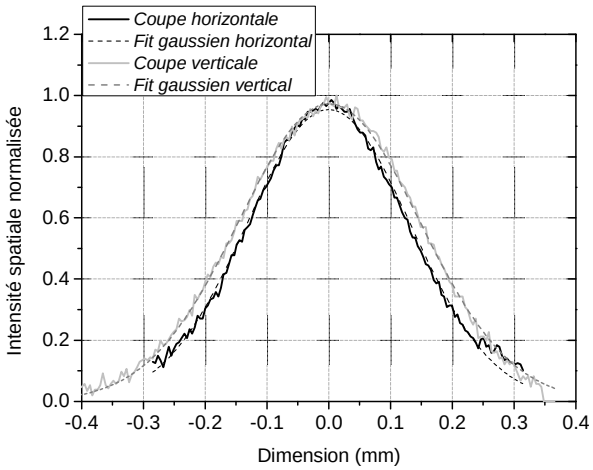

Figure 6.20 : Coupes du profil spatial du signal dans le plan du premier cristal.

La figure 6.21 représente l'efficacité obtenue en fonction du produit « Energie incidente × Longueur de matériau non linéaire traversé » pour un filtre composé d'un cristal de 2 mm, et de deux cristaux de 2 mm. La tendance observée est celle détaillée au chapitre 4 (p. 92). La courbe correspondant à un cristal suit une dépendance quadratique avec $E \times L$, jusqu'à 10% à 12% de rendement. Le dispositif de deux cristaux imagés par lentille de Kerr permet de prolonger cette dépendance jusqu'à dépasser 20% d'efficacité. Il est important de noter que, en conséquence de la géométrie parfaitement gaussienne du faisceau, la transmission XPW est supérieure à 20%, comme le prévoit le modèle théorique (chapitre 4, p. 87).

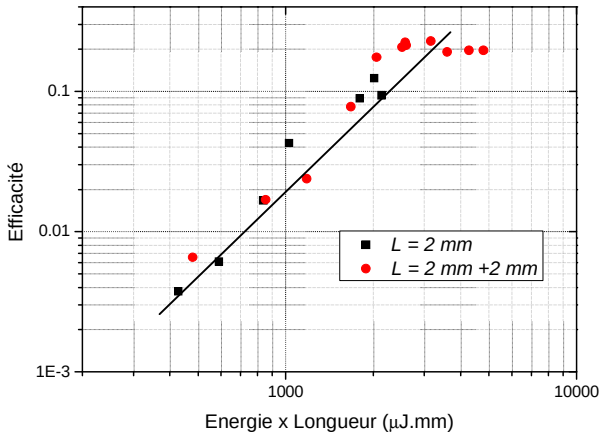

Figure 6.21 : Efficacité de transmission du filtre en fonction de Energie × Longueur pour un et deux cristaux de longueur 2 mm. La droite représente une dépendance quadratique.

Le rendement XPW obtenu grâce au montage à deux cristaux est donc de 22%, pour une énergie incidente de 850 µJ, soit un signal XPW d'énergie 190 µJ.

La stabilité du signal injecté est de 3.4% rms. Celle de l'énergie du signal filtrée est alors environ de 10% rms avec un cristal et de ≈ 8% rms avec les deux cristaux. Même si l'utilisation de deux cristaux permet de réduire l'instabilité du signal filtré (chapitre 4, p. 97), il convient de noter que l'instabilité du laser induit une grande instabilité du faisceau XPW. Ceci explique la dispersion des points de mesure de la figure 6.21 autour de la droite figurant la dépendance quadratique théorique.

3.3. Caractérisation du faisceau filtré

3.3.1. *Amélioration du contraste : corrélation grande dynamique*

La caractérisation temporelle de l'impulsion avant et après filtrage a été réalisée grâce à un corrélateur grande dynamique commercial *Sequoïa* de la société Amplitude Technologies. Pour le niveau d'énergie injecté (190 µJ), le bruit de fond de l'appareil est mesuré à 10^{-9}.

L'allure temporelle mesurée de l'impulsion avant filtrage apparaît figure 6.22. Avant filtrage, le niveau d'ASE atteint 10^{-7}, ce qui est une valeur classique. Par contre, l'impulsion est également accompagnée d'un piédestal d'intensité relative atteignant 10^{-3}, de durée environ 20 ps. A l'occasion de ces expériences de filtrage, l'équipe du LULI a montré que des modulations rapides du profil temporel du laser du pompe *Quantaray* entraînent des modulations spectrales de

l'impulsion amplifiée. Ces modulations sont à l'origine du piédestal observé [6.7]. L'existence de ce piédestal a été aussi observée sur un système 0.2 TW OPCPA dans [6.8].

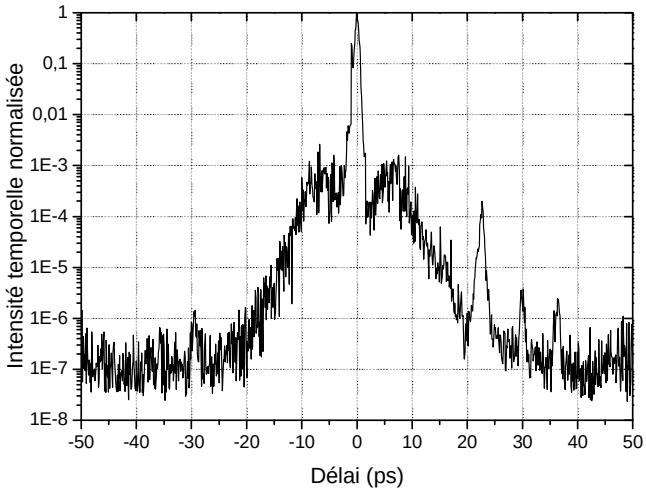

Figure 6.22 : Corrélation grande dynamique de l'impulsion avant filtrage.

Il est également important de rappeler que les polariseurs employés pour cette expérience (polariseurs de Gland traités antireflet à 1.06 µm) présentent un médiocre taux d'extinction : $\tau = 5.10^{-3}$. Cette valeur limite l'amélioration du contraste. En effet, le profil temporel après filtrage prévu théoriquement (chapitre 4, p. 98-100), pour un rendement de 20%, un taux d'extinction de 5.10^{-3} et un faisceau gaussien spatialement, est tracé figure 6.23.

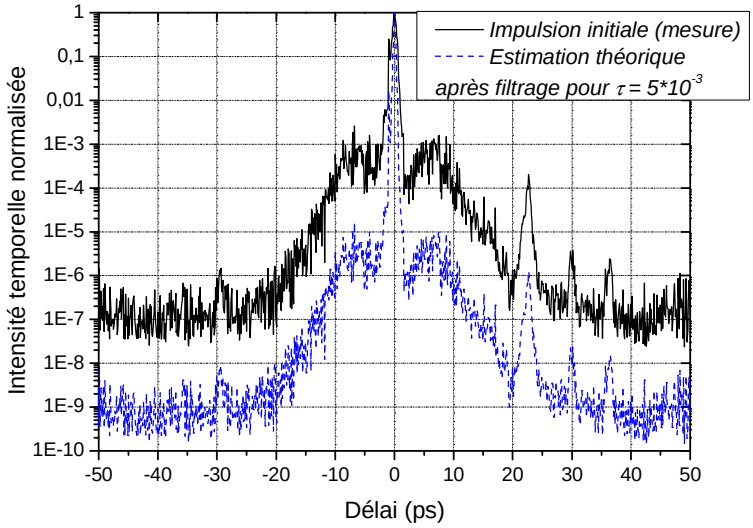

Figure 6.23 : Corrélation grande dynamique de l'impulsion avant filtrage et estimation théorique de l'amélioration du contraste ($\tau = 5.10^{-3}$). Le rendement XPW est de 20%.

La qualité des polariseurs ne permet pas d'attendre une amélioration du contraste meilleure que deux ordres de grandeur environ.

La mesure de corrélation de l'impulsion réalisée après filtrage correspond parfaitement aux prévisions théoriques (figure 6.24).

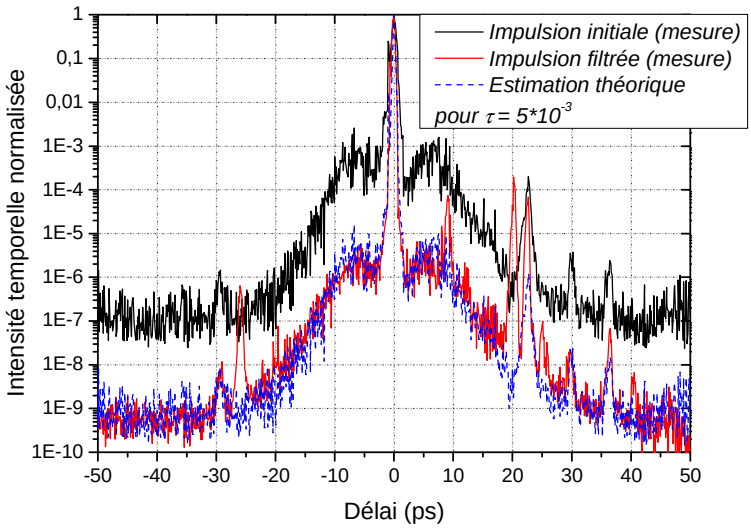

Figure 6.24 : Corrélation grande dynamique de l'impulsion avant et après filtrage et estimation théorique de l'amélioration du contraste. Le rendement XPW est de 20%.

Après filtrage, le fond d'ASE est ramené à environ 10^{-9}. Cette diminution du piédestal correspond au croisement des polariseurs utilisés (5.10^{-3}). Il en est de même pour le piédestal picoseconde qui est réduit de 10^{-3} à 5×10^{-6}. Les fronts de montée de l'impulsion nettoyée sont plus raides, ce qui laisse penser que les modulations spectrales ont été lissées.

En conclusion, le contraste de l'impulsion est bien sûr amélioré lors du filtrage XPW. Cependant l'expérience insiste une fois de plus sur l'importance de travailler avec des polariseurs présentant un très bon taux d'extinction.

3.3.2. Caractérisation spatiale

La caractérisation spatiale du faisceau ne permet pas de parler réellement de filtrage spatial, car le faisceau est initialement parfaitement propre et gaussien, il le reste après filtrage (figure 6.25).

Le faisceau XPW a un plus grand diamètre que le faisceau initial. En effet, il présente une divergence plus grande (paragraphe 1 de ce chapitre, p. 131).

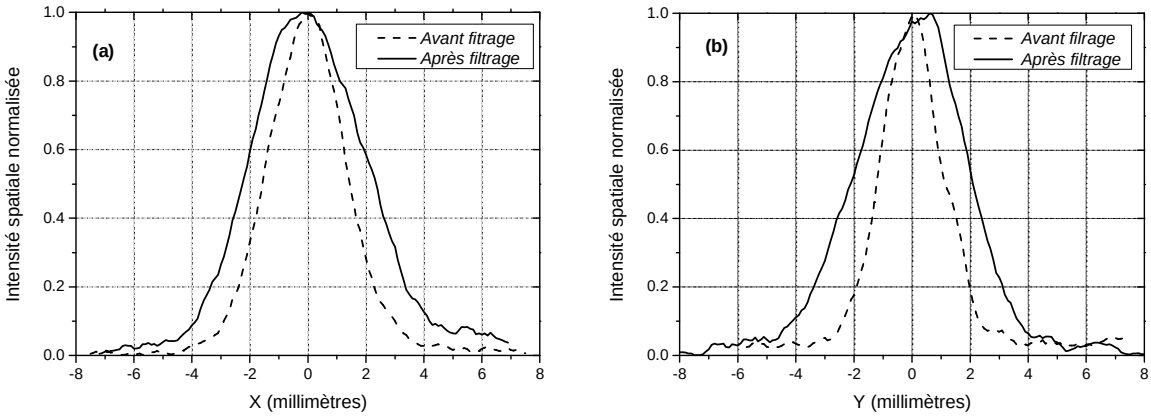

Figure 6.25 : Coupes en X (a) et Y (b) du profil spatial du faisceau avant et après filtrage en champ proche, le rendement de conversion est 20%.

3.3.3. Caractérisation temporelle et spectrale

Enfin, pour quantifier l'évolution temporelle de l'impulsion lors du filtrage, nous avons utilisé un autocorrélateur monocoup du second ordre.

Avant filtrage, la durée de l'impulsion est de $\Delta t = 310\,fs$ (fig. 6.26(a)), limitée par transformée de Fourier puisque la largeur spectrale initiale mesurée est 5.3 nm (fig. 6.26(b)). Ces mesures ont été effectuées après passage du faisceau par le filtre (cristaux enlevés, analyseur décroisé).

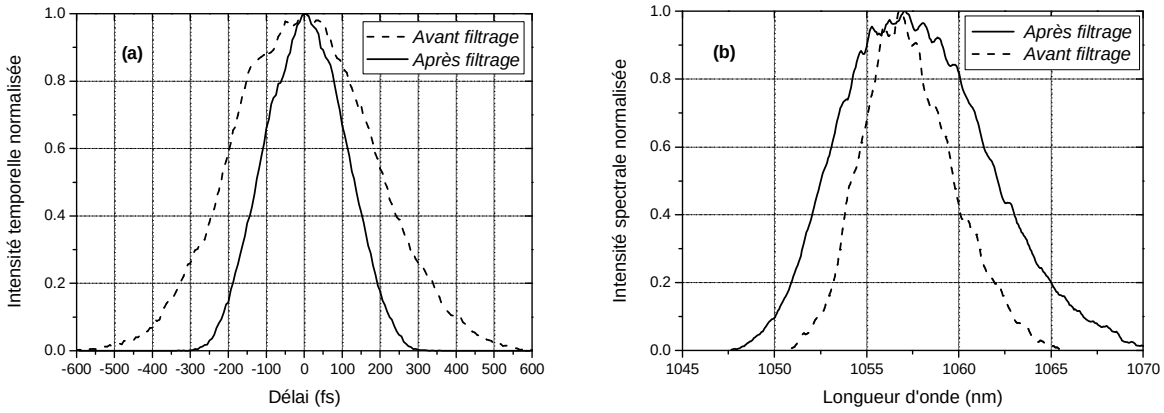

Figure 6.26 : (a) Autocorrelation du second ordre de l'impulsion avant (durée décorrelée 310 fs) et après filtrage (durée décorrélée 185 fs). (b) Spectre de l'impulsion avant ($\lambda_0 = 1057\,nm, \Delta\lambda \approx 5.3\,nm$) et après ($\lambda_0 = 1057\,nm, \Delta\lambda = 9\,nm$) filtrage.

Après filtrage, la corrélation du deuxième ordre montre une durée significativement réduite du signal XPW : $\Delta t_{XPW} = 185\,fs$ (fig. 6.26(a)).

Conformément à l'équation (*6.27*, p. 144), $\Delta t_{XPW} = 0.59\Delta t \approx \dfrac{\Delta t}{\sqrt{3}}$.

Les spectres des impulsions employées sont très étroits. La phase spectrale du second ordre ajoutée par les matériaux traversés (lentilles, polariseurs) n'a que très peu d'influence sur la durée des impulsions. On s'attend à ce que le spectre filtré exhibe un élargissement conforme à la réduction de la durée mesurée (éq. *6.30* - *6.32*), ce qui est le cas (fig. 6.26(b)).

En effet, $\Delta\lambda_{XPW} = 9nm = 1.69\Delta\lambda_0 \approx \sqrt{3}\,\Delta\lambda_0$. Tout ceci est conforme aux prévisions théoriques du paragraphe précédent.

La réduction de la durée est un atout supplémentaire du processus XPW. Le rendement en terme de puissance-crête atteint alors 34%.

3.4. Conclusion : expériences à 1.06 μm

Ce paragraphe valide que le filtrage temporel par génération de polarisation croisée dans du BaF_2 est tout à fait adapté aux lasers femtosecondes à 1.06 μm, en terme de longueur d'onde et de durée d'impulsions (quelques centaines de femtosecondes).

Le rendement théorique de conversion pour un faisceau spatialement gaussien est atteint dans ces expériences. La transmission en énergie du filtre basé sur un schéma incluant deux cristaux fins dépasse 20%.

Nous avons vérifié expérimentalement la réduction de la durée de l'impulsion filtrée d'un facteur $\sqrt{3}$, et mesuré un élargissement spectral correspondant. Le filtrage XPW permettrait par exemple de compenser le rétrécissement spectral par le gain subi dans le premier étage d'amplification. De plus le rendement en puissance crête du filtre atteint 34%, ce qui est considérable.

Dans le même temps, l'excellente qualité spatiale du faisceau n'est pas dégradée. L'amélioration du contraste temporel, conforme aux prévisions théoriques, est limitée par la qualité des polariseurs.

Enfin, notons que l'instabilité de l'énergie de l'impulsion filtrée est directement liée à celle du faisceau incident, ce qui indique la nécessité de travailler avec un premier CPA très stable, c'est-à-dire avec un taux de répétition 1 kHz, ou 100 Hz.

Les résultats expérimentaux de filtrage XPW à 1.06 μm ont donné lieu à une publication [6.9].

4. Conclusion

Le filtre non linéaire basé sur la génération de polarisation croisée dans des cristaux de fluorure de baryum a été caractérisé sur deux systèmes émettant des impulsions brèves d'énergie de l'ordre du millijoule.

Ces expériences ont confirmé l'achromaticité de ce filtre ainsi que son efficacité pour l'amélioration du contraste d'impulsions d'énergie élevée.

En premier lieu, le dispositif incluant deux cristaux est adapté à une telle gamme d'énergie et permet d'obtenir un rendement de transmission élevé de manière reproductible. L'efficacité dépasse alors 20% si la qualité spatiale du faisceau est soignée.

De plus, le filtre n'introduit ni modulations du spectre ni distorsions spatiales.

Le rétrécissement de la durée observé à 1.06 μm et l'élargissement spectral correspondant confirment l'étude de l'influence de la phase spectrale sur le spectre de l'onde générée. L'élargissement maximal du spectre est obtenu lorsque l'impulsion est parfaitement comprimée au moment de l'interaction. Dans ce cas, la durée de l'impulsion filtrée est réduite d'un facteur $\sqrt{3}$. Cette propriété est sans conteste un atout important du filtre. En effet, les systèmes laser actuels visent à fournir des impulsions toujours plus brèves pour atteindre une intensité sur cible de plus en plus élevée.

Enfin, l'amélioration du contraste est considérable. Nous avons démontré que le paramètre déterminant, outre le contraste initial, est le taux d'extinction des polariseurs. L'amélioration du contraste peut donc atteindre 5 à 6 ordres de grandeur.

Ajoutons enfin que le fluorure de baryum présente également l'avantage d'être un matériau peu coûteux.

La génération de polarisation croisée est donc tout à fait adaptée au nettoyage temporel d'impulsions ultra-brèves et ultra-intenses. Un tel filtre réunit toutes les propriétés nécessaires à son implémentation dans des systèmes laser type Petawatt.

BIBLIOGRAPHIE :

[6.1] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore and M. D. Perry (1995) *"Nanosecond to femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics"*, Physical Review B 53 (4) : 1749-1761.

[6.2] S. A. Akhmanov, V. A. Vysloukh, A. S. Chirkin (1992) *"Optics of femtoseconde laser pulses"*, American Institute of Physics, p. 95.

[6.3] A. Jullien, O. Albert, F. Burgy, G. Hamoniaux, J. P. Rousseau, J. P. Chambaret, F. Augé-Rochereau, G. Chériaux, J. Etchepare, N. Minkovski, and S. M. Saltiel (2005) "10^{-10} Temporal contrast for femtosecond ultraintense lasers by cross-polarized wave generation", Optics Letters 30, 920-922.

[6.4] A. Dubietis, G. Jonusauskas, and A. Piskarskas (1992) *"Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal"*, Optics Communications 88, 437.

[6.5] I. N. Ross, J. L. Collier, P. Matousek, C. N. Danson, D. Neely, R. M. Allott, D. A. Pepler, C. Hernandez-Gomez, and K. Osvay (2000) *"Generation of terawatt pulses by use of optical parametric chirped pulse amplification"*, Applied Optics 39, 2422.

[6.6] I. Jovanovic, B. J. Comaskey, C. A. Ebbers, R. A. Bonner, D. M. Pennington, and E. C. Morse (2002) *"Optical parametric chirped pulse amplifier as an alternative to Ti:sapphire regenerative amplifiers"*, Applied Optics 41, 2923.

[6.7] N. Forget, A. Cotel, E. Brambrink, P. Audebert, C. Le Blanc, A. Jullien, O. Albert and G. Chériaux (2005) *"Pump-noise transfer in optical parametric chirped-pulse amplification*", Optics Letters 30, 2921-2923.

[6.8] F. Tavella, K. Schmid, N. Ishii, A. Marcinkevicius, L. Veisz, F. Krausz (2005) *"High-dynamic range pulse-contrast measurements of a broadband optical parametric chirped-pulse amplifier"*, Applied Physics B Laser and Optics 81, 753-756.

[6.9] A. Cotel, A. Jullien, N. Forget, O. Albert, G. Chériaux, C. Le Blanc (2006) *"Nonlinear temporal pulse cleaning for 1-µm optical parametric chirped pulse amplifier system"*, Applied Physics B Lasers and Optics 83, 7-10.

Chapitre 7

Implémentation du filtre non linéaire XPW

Chapitre 7
Implémentation du filtre non linéaire XPW

1. Limitations pour les caractéristiques de l'impulsion initiale 161
1.1. Taux de répétition du laser 162
1.2. Durée de l'impulsion 162

2. Implémentation du filtre XPW au microjoule 164

3. Implémentation du filtre XPW au millijoule : double CPA 166
3.1. Premier système CPA 166
3.2. Dispositif de filtrage 167
3.3. Deuxième système CPA 168

4. Implémentation du filtre en fin de chaîne 169

5. Conclusion 170

Bibliographie 171

L'objectif de ma thèse était d'étudier et de concevoir un dispositif efficace pour l'amélioration du contraste d'impulsions femtosecondes. Le filtrage non linéaire basé sur la génération de polarisation croisée dans des cristaux de BaF_2 s'est avéré être un dispositif tout à fait satisfaisant. Nous avons démontré qu'il répond à tous les critères exigés.

Son implémentation dans un système laser très haute puissance crête (100 TW, voire 1 PW) nécessite de réaliser un compromis entre les deux considérations suivantes.

D'une part, le bon contraste de l'impulsion transmise par le filtre sera bien conservé s'il n'est pas nécessaire d'injecter celle-ci dans les amplificateurs à fort gain (pré-amplificateurs). Du point de vue du contraste, il paraît donc judicieux d'installer le filtre lorsque l'impulsion a atteint un niveau d'énergie élevé.

D'autre part, l'efficacité de transmission du filtre, de 20%, éventuellement de 40% dans certaines conditions spatiales, oblige à prendre en compte les grandes pertes d'énergie subies si l'impulsion est très énergétique.

Au laboratoire, une chaîne haute intensité (500 TW) à fort contraste (10^{10}) est en cours de montage. Il s'agit de LUIRE, *Laser Ultra-Intense à Récurrence Elevée*. Cette chaîne vise à installer un filtre XPW dans le cadre d'un double CPA. Ce chapitre de perspectives propose ainsi quelques pistes de discussion quant aux choix possibles pour l'implémentation du filtre XPW dans une chaîne laser dont on souhaite améliorer le contraste.

La première partie rassemble les caractéristiques nécessaires que doit présenter l'impulsion avant filtrage. Les paragraphes suivants posent les conditions d'installation du filtre selon la gamme d'énergie de l'impulsion injectée dans le filtre : microjoule, millijoule, joule.

1. Limitations pour les caractéristiques de l'impulsion initiale

Les études détaillées dans ce manuscrit ont permis d'établir les caractéristiques requises des impulsions laser pour le filtrage temporel par génération de polarisation croisée.

L'impulsion initiale, polarisée linéairement, est comprimée à la limite de Fourier et de durée inférieure à 1 ps. L'intensité crête nécessaire sur le cristal est de l'ordre de 10^{12} Wcm^{-2}.

Pour obtenir un très bon contraste après filtrage, les polariseurs employés doivent présenter un taux d'extinction élevé. Enfin, un profil spatial propre est préférable, mais non indispensable, afin d'optimiser la transmission du filtre.

Les autres caractéristiques du laser peuvent être discutées.

1.1. Taux de répétition du laser

L'effet de génération de polarisation croisée, instantané et sans effet thermique, ne dépend absolument pas de la cadence du laser. Par contre, cette spécification influence les caractéristiques du filtre en terme de stabilité. En effet, nous avons vu au chapitre 6 (p. 152) que le faisceau filtré est d'autant plus instable que la source l'est.

Il est donc préférable d'utiliser une source stable, c'est-à-dire émettant des impulsions à haute cadence, de type kilohertz.

1.2. Durée de l'impulsion

La limite supérieure de durée d'impulsions pour le filtrage XPW a été évoquée au chapitre 6 (p. 137). Le seuil de dommage du cristal impose de travailler avec des impulsions plus brèves que 1 ps.

Il n'y a, a priori, pas de limite inférieure en durée pour le processus de conversion. L'achromaticité du phénomène autorise la conversion d'impulsions à spectre très large.

Les impulsions très courtes, de durée environ 10 fs, présentent souvent des défauts de profil temporels, tels qu'impulsions parasites [7.1-7.3] ou piédestal [7.4] dus à de fortes modulations sur ces spectres extrêmement larges et à des distorsions de phase résiduelles. L'utilisation d'un filtre XPW pour de telles impulsions pourrait avoir pour but d'amoindrir ces défauts.

Notons que le point critique pour les impulsions sub-10 fs est la phase spectrale du second ordre introduite par les matériaux. Nous savons en effet que le chirp influence l'évolution spectrale lors du filtrage. Par exemple pour une impulsion de 10 fs, de spectre de largeur à mi-hauteur 90 nm centré à 800 nm, nous pouvons calculer l'évolution spectrale pendant le filtrage grâce au modèle développé dans le chapitre précédent (p. 140-146). Le calcul fait l'hypothèse que le spectre original est gaussien, ce qui est rarement le cas des spectres très larges. La figure 7.1, résultat du calcul, montre que le spectre après filtrage sera plus étroit qu'à l'origine si la phase spectrale du deuxième ordre de l'impulsion initiale excède $\pm 100\ fs^2$, ce qui est très faible.

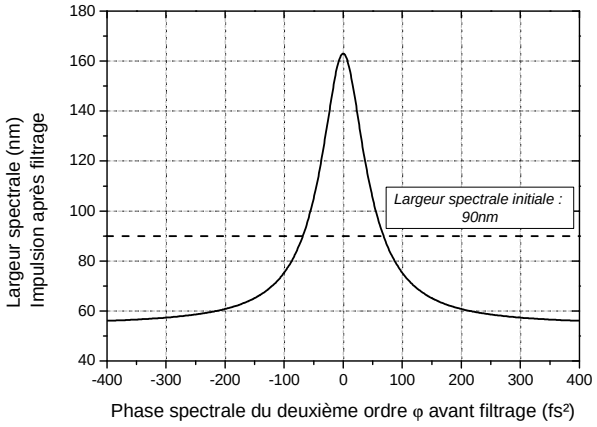

Figure 7.1 : Largeur spectrale après filtrage calculée selon la valeur initiale de phase spectrale pour une impulsion de durée 10 fs.

Cette constatation indique clairement qu'il est nécessaire de compenser soigneusement la phase des matériaux précédant le filtre.
Notons également que, toujours d'après ce graphe, le spectre peut être encore élargi durant le processus de filtrage si la phase est nulle. Ce résultat est à entourer de précautions, étant donné que le calcul est effectué en considérant un spectre initial gaussien, ce qui, expérimentalement, ne serait pas exact pour des impulsions si brèves. Par contre, cela indique que le spectre serait vraisemblablement modifié par le processus XPW.

Quant à la dispersion introduite par les cristaux eux-mêmes (130 fs^2cm^{-1} pour le BaF_2), elle est négligeable. Par exemple 2 mm de matériau ajoutent 26 fs^2 et la durée de l'impulsion passe de 10 fs à 12 fs. Il n'y aura pas de diminution de l'efficacité de conversion due à l'élargissement temporel de l'impulsion dans les cristaux.

Une fois ces considérations prises en compte, le filtrage non linéaire par génération de polarisation croisée est adapté aux impulsions sub-10 fs.

Du point de vue énergétique, nous avons obtenu des rendements équivalents pour des impulsions d'énergie allant de quelques microjoules à quelques millijoules. Les limites supérieures en énergie sont technologiques et dépendent du choix d'implémentation du filtre.

2. Implémentation du filtre XPW au microjoule

L'implémentation du filtre par génération de polarisation croisée au niveau d'énergie microjoule correspond à une configuration pour l'amélioration du contraste décrite dans le chapitre 1 (p. 22). Le filtre temporel, alors un absorbant saturable, est placé après un pré-amplificateur fonctionnant en régime femtoseconde.

Le filtre XPW, composé de un ou deux cristaux de BaF_2 entre polariseurs croisés, remplacerait l'absorbant saturable. Les avantages du processus XPW par rapport à l'absorbant saturable sont nombreux. Le filtre engendre une amélioration du contraste d'au moins quatre ordres de grandeur (contre deux ordres de grandeur seulement pour l'absorbant saturable). Il n'introduit pas de modulations spectrales et résiste à une cadence élevée.

Cette configuration est résumée par le schéma suivant (fig. 7.2):

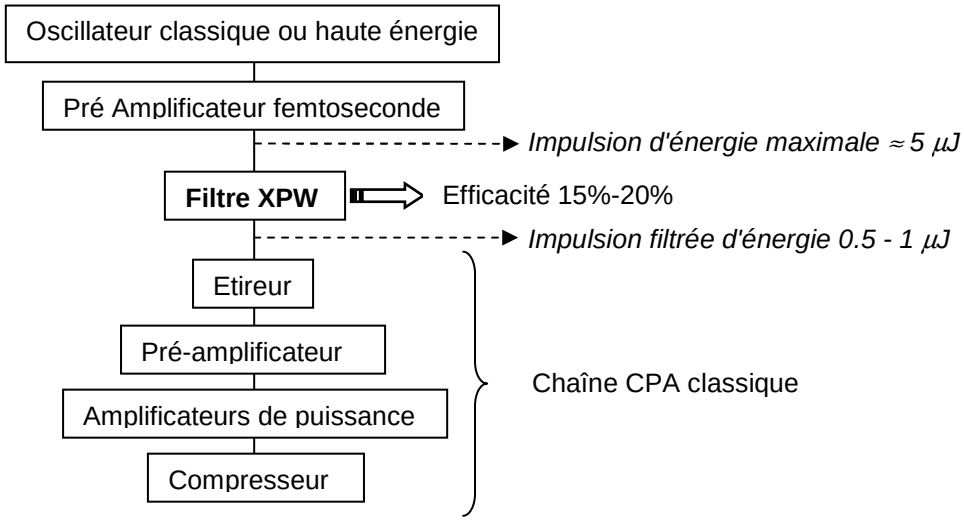

Figure 7.2 : Schéma d'un système CPA incluant un filtre XPW fonctionnant au microjoule

L'avantage de cette méthode est qu'elle ne comprend qu'un seul système CPA. Par contre, quelques points délicats doivent être pris en compte.

Considérons tout d'abord le filtre non linéaire. Nous avons vu (chap. 6, p. 146) qu'il est préférable que l'impulsion soit parfaitement comprimée lors de l'interaction. Il faut donc prévoir de compenser avant filtrage la dispersion introduite par le pré-amplificateur (cristal amplificateur), l'éventuelle cellule de Pockels pour sélectionner la cadence, et les divers éléments optiques

(lentilles, premier polariseur du filtre...). Cette compensation peut être effectuée avec un Dazzler ou des miroirs chirpés. De plus, le pré-amplificateur doit être stable pour permettre un fonctionnement correct du filtre.

D'autre part, l'énergie maximale disponible en sortie d'un tel pré-amplificateur est de 4 ou 5 μJ. L'efficacité du filtre est de l'ordre de 15% - 20%. L'impulsion filtrée présente ainsi un très bon contraste mais une énergie faible, inférieure à 1μJ. Il faut l'injecter dans un pré-amplificateur à fort gain avant les amplificateurs de puissance.

Bien sûr, le gain du premier étage d'amplification est moins élevé que dans une chaîne CPA classique puisque l'énergie de l'impulsion nettoyée est 100 à 200 fois plus énergétique qu'un oscillateur traditionnel.

Il est donc certain que le contraste final du système incluant ce filtre au microjoule sera meilleur que celui d'une chaîne classique. Il est par contre difficile d'estimer de combien d'ordres de grandeur. En effet, nous ne savons pas si le contraste de l'impulsion temporellement propre est préservé lors de la pré-amplification.

Des travaux concernant l'installation d'un filtre XPW à la suite d'un pré-amplificateur femtoseconde sont actuellement en cours au laboratoire CUOS (*Center for Ultrafast Optical Science*) au Michigan.

3. Implémentation du filtre XPW au millijoule : double CPA

Nous avons démontré expérimentalement que le filtre XPW est adapté pour des impulsions d'énergie 1 ou 2 mJ. Cette propriété a été validée en vue de l'implémentation du filtre dans une chaîne de type double CPA.

En effet, les travaux réalisés récemment au MBI à Berlin, où a été monté le premier double CPA pour l'amélioration du contraste, semblent indiquer qu'une impulsion filtrée au millijoule peut être ensuite amplifiée jusqu'à 20 mJ en préservant son bon contraste [7.1].

Au laboratoire, nous avons choisi pour LUIRE d'implémenter le filtre après pré-amplification au niveau millijoule (fig. 7.3).

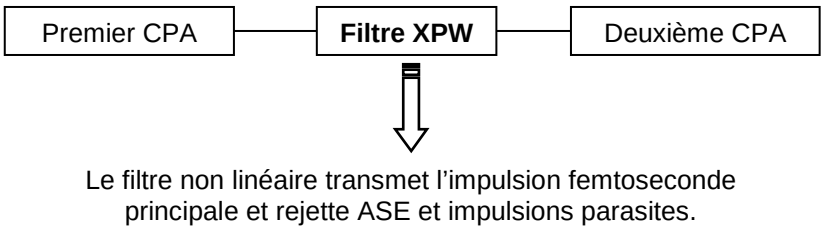

Figure 7.3 : Schéma de principe d'un double CPA incluant un filtre non linéaire

3.1. Premier système CPA

L'objectif du premier système CPA est de fournir des impulsions comprimées d'énergie 1 mJ, cadence kilohertz pour une meilleure stabilité.

Un pré-amplificateur classique fonctionnant à une telle cadence émet généralement des impulsions d'énergie environ 1 mJ. Un compresseur à réseaux standard introduirait ensuite au moins 30 % de pertes en énergie : 700 μJ, au mieux seraient alors disponibles. Le premier CPA doit donc s'affranchir des pertes du compresseur.

Une solution est d'étirer l'impulsion en introduisant une dispersion négative, au contraire d'un étireur classique [7.2], pour comprimer ensuite l'impulsion par propagation dans un matériau transparent. Ceci est appliqué par exemple aux systèmes très haute cadence, afin d'éviter toute perte excessive d'énergie après amplification [7.3].

La configuration actuellement envisagée par le laboratoire est résumée par le schéma de la figure 7.4.

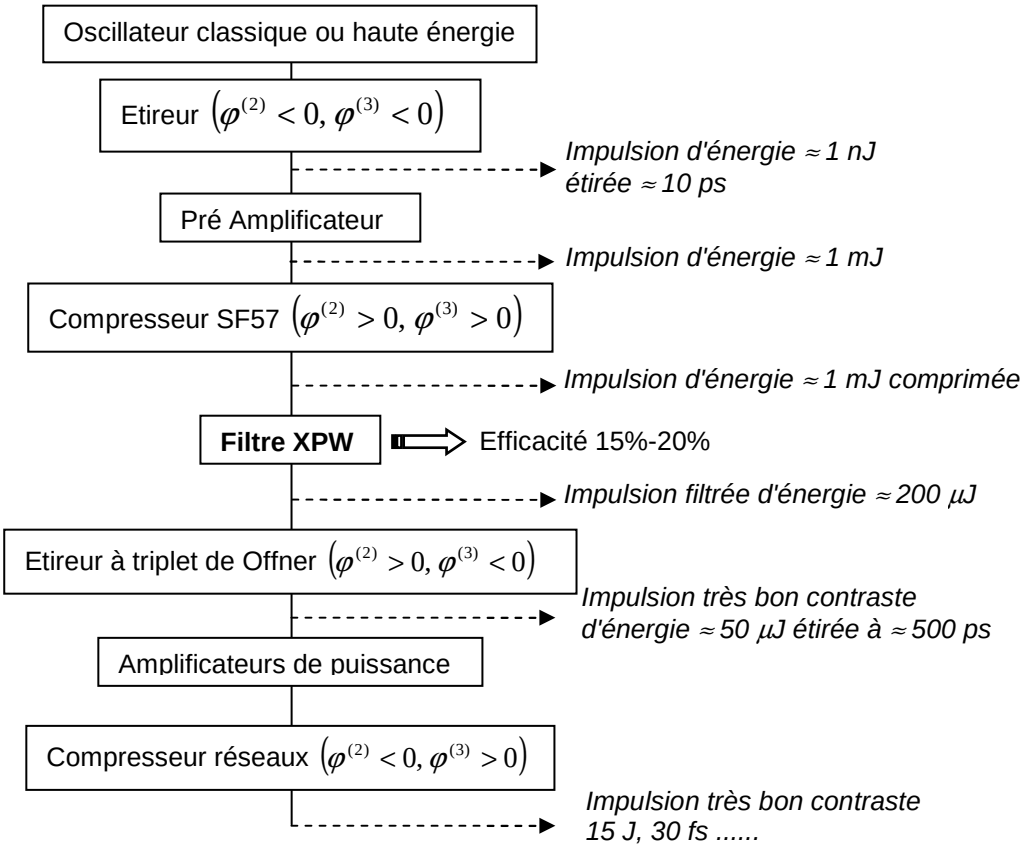

Figure 7.4 : Schéma d'un système double CPA incluant un filtre XPW fonctionnant au millijoule

L'étireur est une configuration particulière qui introduit une phase spectrale du deuxième et troisième ordre négatives et allonge la durée de l'impulsion à une dizaine de picosecondes. Après pré-amplification, l'impulsion d'énergie environ 1 mJ est comprimée par traversée de matériaux très dispersifs tels que le SF 57 (2200 fs^2cm^{-1}) taillés à l'angle de Brewster pour minimiser les pertes par réflexion.

L'inconvénient du dispositif est le manque de souplesse de réglage du compresseur. Il est envisageable d'ajouter un Dazzler à la suite de l'oscillateur pour un ajustement fin des valeurs de phase spectrale.

L'impulsion ne subit donc aucune perte d'énergie pendant la compression. Elle est ensuite injectée dans le filtre XPW.

3.2. Dispositif de filtrage

Le filtre est prévu pour fonctionner dans les mêmes conditions que celles décrites dans le chapitre 6, paragraphe 1 (p. 127). Une lentille longue focale (2.5 m -3 m) est nécessaire pour

focaliser le faisceau sur les deux cristaux de BaF2. Le filtre est installé dans une cellule sous vide primaire pour éviter tout effet non linéaire supplémentaire dû à la focalisation du faisceau dans l'air.

La cellule prévue est un tube en acier inox, de diamètre 320 mm, de longueur 1600 mm. Elle comprend le filtre XPW replié, dont un schéma de principe est représenté figure 7.5.

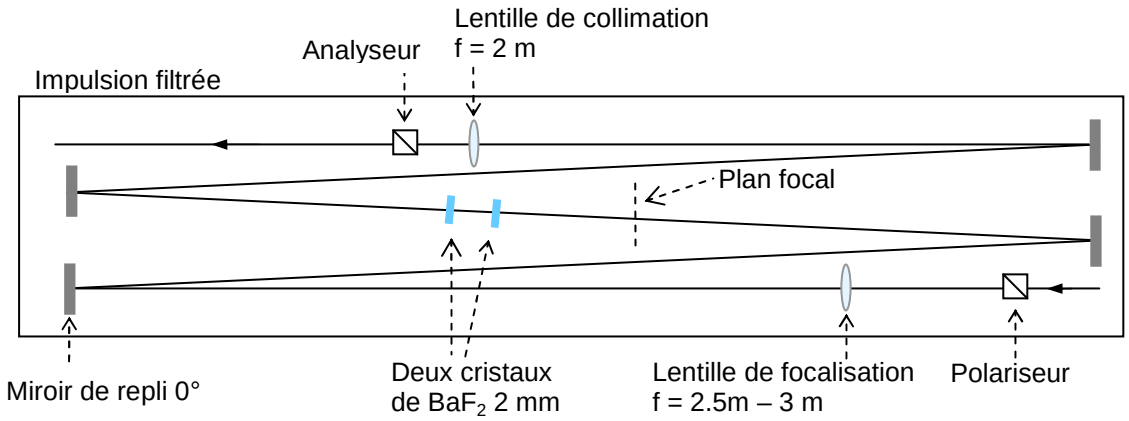

Figure 7.5 : Filtre XPW replié dans la cellule sous vide

Les miroirs de repli fonctionnent à incidence quasiment normale pour éviter une dépolarisation excessive du faisceau qui dégraderait le taux d'extinction des polariseurs et donc le contraste final de l'impulsion. La grande longueur du tube prévient tout dommage sur les miroirs qui encadrent le plan focal. Les supports des deux cristaux seront motorisés pour permettre leur déplacement l'un par rapport à l'autre une fois la cellule placée sous vide.

La cellule est modélisée et est actuellement en cours de réalisation.

3.3. Deuxième système CPA

Le deuxième système CPA ne présente pas d'innovation technologique majeure (fig. 7.4). L'étireur à triplet de Offner allonge la durée de l'impulsion filtrée à plusieurs centaines de picosecondes. Un compresseur standard à réseaux suivra plusieurs amplificateurs de puissance fonctionnant à un taux de répétition de 10 Hz.

Le dispositif décrit ci-dessus est adapté à des impulsions d'énergie 1 mJ ou 2 mJ, de durée environ 30 fs. Le filtrage d'impulsions très énergétiques (5 mJ à 10 mJ par exemple) requiert l'usage de lentille très longue focale qui finit par poser des problèmes évidents d'encombrement.

4. Implémentation du filtre en fin de chaîne

Une dernière solution envisageable consiste à implémenter le filtre XPW en fin de chaîne laser.

Considérons par exemple une chaîne 100 TW Ti: Sa émettant des impulsions d'énergie 3 J avec une durée de 30 fs. La section du faisceau en fin de chaîne peut atteindre 70 mm. Dans ce cas l'intensité crête d'une telle impulsion après compression sans focalisation atteint environ 2.10^{12} Wcm^{-2}. De même, une chaîne 100 TW basée sur l'amplification dans du verre dopé au néodyme (1.06 µm) génère des impulsions de 20 J, 300 fs avec un diamètre de faisceau de 90 mm. L'intensité est alors de l'ordre de 10^{12} Wcm^{-2}.

La gamme d'intensité disponible est suffisante pour envisager de filtrer l'impulsion en champ proche, en employant un cristal de BaF_2 de grande dimension de longueur 2 mm ou 3 mm. En champ proche, le profil spatial du faisceau peut être plus ou moins top-hat. L'efficacité de conversion du processus XPW, si le profil spatial ne présente pas de surintensités, pourrait atteindre 30% à 40%. La perte d'énergie reste considérable.

Le choix des polariseurs pose de plus un souci technologique. Il est nécessaire d'utiliser des polariseurs par réflexion (fig. 7.6).

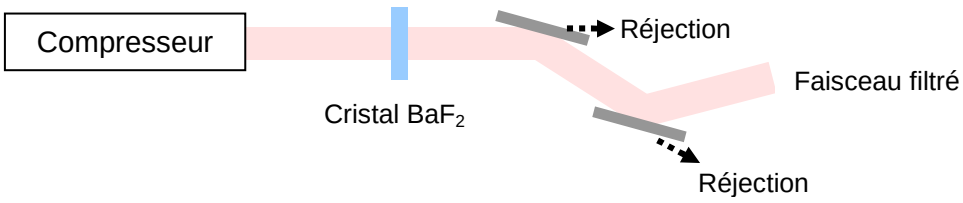

Figure 7.6 : Schéma d'un filtre XPW implémenté en fin de chaîne 100 TW

Ces polariseurs, pour les impulsions de durée inférieure à 100 fs, sont moins efficaces que des polariseurs de Glan. Le taux d'extinction est de l'ordre de 10^{-2}. Au moins deux polariseurs doivent suivre le cristal pour obtenir quatre ordres de grandeur d'amélioration sur le contraste. Il faut alors également tenir compte des pertes supplémentaires par réflexion (≈ 4% par face).

L'installation du filtre en fin de chaîne est possible mais au prix d'une grande perte d'énergie (plus de 70%). L'efficacité du filtre, en terme de transmission et de contraste, est moins avantageuse que celle offerte par des miroirs à plasma, par exemple (cf chapitre 1, p. 25). Mais le filtre XPW présente un encombrement réduit et une relative simplicité de mise en œuvre.

5. Conclusion

Pour conclure, l'implémentation du filtre XPW après pré-amplification femtoseconde, c'est-à-dire au niveau microjoule présente l'avantage d'une mise en œuvre assez simple. Cependant, en l'absence de modélisation réaliste de l'amplification de l'émission spontanée, une grande incertitude demeure quant à la conservation du contraste lors de l'inévitable pré-amplification.

Le filtrage par génération de polarisation croisée en fin de chaîne laser peut fonctionner de manière anecdotique car l'implémentation du filtre n'est pas excessivement complexe. Les pertes consécutives d'énergie sont beaucoup trop grandes pour envisager une installation définitive.

La solution la plus équilibrée est celle du double CPA incluant le filtrage d'impulsions millijoules. Tout d'abord, cette solution ne présente pas de risque technologique majeur. De plus, le fonctionnement du filtre dans cette gamme d'énergie est maintenant bien connu et maîtrisé. Enfin, l'impulsion filtrée est suffisamment énergétique pour être réinjectée dans un amplificateur de puissance, à faible gain. Dans cette configuration, le contraste sera conservé jusqu'à ce que l'impulsion atteigne une énergie de quelques joules, voire davantage.

Nous sommes tout à fait confiants dans cette technique, qui devrait donner, au laboratoire, dans les mois à venir, confirmation de sa pertinence.

BIBLIOGRAPHIE :

[7.1] P. Schlup, J. Biegert, C. P. Hauri, G. Arisholm and U. Keller *"Design of a sub - 13 fs, multi-gigawatt chirped pulse optical parametric amplification system"*, Applied Physics B Lasers and Optics 79, 285-288.

[7.2] R. T. Zinkstok, S. Witte, W. Hogervorst and K. S. E. Eikema *"High power parametric amplification of 11.8 fs laser pulses with carrier-envelope phase control"*, Optics Letters 30, 78-79.

[7.3] N. Ishii, L. Turi, V. S. Yalovlev, T. Fuji, F. Krausz, A. Baltuska, R. Buktus, G. Veitas, V. Smilgevicius, R. Danielus and A. Piskarkas *"Multimillijoule chirped parametric amplification of few-cycle pulses"*, Optics Letters 30, 567-569.

[7.4] F. Tavella, K. Schmid, N. Ishii, A. Marcinkevicius, L. Veisz, F. Krausz (2005) *"High-dynamic range pulse-contrast measurements of a broadband optical parametric chirped-pulse amplifier"*, Applied Physics B Laser and Optics 81, 753-756.

[7.5] M. P. Kalashnikov, E. Risse, H. Schönnagel and W. Sandner (2005) *"Double CPA : a way to temporally clean pulses ?"*, Optics Letters 30, 923-925.

[7.6] G. Chériaux (1997) *"Influences des distorsions de phase sur le profil d'impulsions femtosecondes dans l'amplification à derive de frequences"*, Thèse de doctorat de l'Université Paris XI.

[7.7] D. M. Gaudiosi, A. L. Lytle, P. Kohl, M. M. Murname, H. C. Kapteyn and S. Backus (2004) *"11-W average power Ti:Sapphire system using downchirped pulse amplification"*, Optics Letters 29, 2665-2667.

Conclusion

Le travail effectué au cours de ces trois années de thèse a eu pour objectif l'étude et la conception d'un dispositif pour l'amélioration du contraste temporel d'impulsions laser ultra-brèves et ultra-intenses.

Le dispositif retenu consiste en un filtre temporel basé sur un effet non linéaire du troisième ordre agissant sur la polarisation de l'onde. Au cours de ma thèse, j'ai principalement étudié deux filtres non linéaires. De nombreuses expériences ont été menées, consolidées par les résultats d'un modèle théorique adapté aux différents cas traités.

Les premières expériences de filtrage ont porté sur l'étude de la rotation de polarisation elliptique par biréfringence induite dans l'air. Ce filtre, pour des impulsions incidentes d'énergie millijoule, présente quelques avantages. Sous certaines conditions de phase spectrale initiale, la transmission est élevée (23%). De plus la qualité spatiale du faisceau est préservée et l'amélioration du contraste est estimée valoir 3 à 4 ordres de grandeur. Cependant, le dispositif s'est avéré sensible à l'automodulation de phase, ce qui peut nuire aux qualités temporelles et spectrales de l'impulsion filtrée, et d'une manière générale, extrêmement instable. Nous avons conclu que ce filtre n'est pas implémentable dans un système laser.

Le deuxième dispositif de filtrage étudié consiste en la génération d'une onde polarisée orthogonalement (XPW), à partir d'une polarisation linéaire, dans des milieux cristallins. Le cristal employé est le fluorure de baryum, anisotrope en optique non linéaire. Le filtre basé sur ce phénomène répond à toutes les exigences imposées pour son implémentation dans les systèmes femtosecondes.

Tout d'abord, l'amélioration du contraste engendrée par ce procédé dépend principalement de la qualité d'extinction du système polarimétrique servant de discriminateur entre l'impulsion transmise et l'impulsion rejetée. Cet argument rappelle l'intérêt d'opérer avec une polarisation linéaire plutôt qu'elliptique, puisque les lames d'onde nécessaires pour produire l'ellipticité dégradent souvent le taux d'extinction. Dans ces conditions, l'amélioration du contraste par génération de polarisation croisée peut atteindre 5 à 6 ordres de grandeur. Les mesures de profils temporels sur une grande dynamique, réalisées après filtrage sur deux lasers aux caractéristiques différentes, ont confirmé ce potentiel.

L'efficacité maximale de transmission du filtre, supérieure à 20%, a été estimée théoriquement pour un faisceau spatialement gaussien et atteinte dans les expériences. Nous avons conçu un dispositif pour optimiser la génération de polarisation croisée, basé sur l'imagerie successive des signaux XPW générés par plusieurs cristaux. Ce dispositif permet d'atteindre l'efficacité de transmission maximale et dans le même temps préserve la viabilité des cristaux et assure la stabilité du système. Il fait l'objet d'un dépôt de brevet.

Nous avons démontré l'efficacité du processus pour des impulsions d'énergie variant du microjoule au millijoule. Cette dernière étape, particulièrement importante, valide l'adaptabilité du filtre XPW à un concept de double CPA, pertinent pour la génération d'impulsions ultra-intenses à très bon contraste temporel.

Le spectre de l'impulsion filtrée ne présente pas de modulations. Cette performance s'explique par le processus lui-même qui exploite l'anisotropie de la susceptibilité non linéaire du cristal pour la génération de l'onde XPW. Ceci permet d'employer un matériau modérément non linéaire, ce qui limite l'automodulation de phase.

De plus, la possibilité d'augmenter la largeur du spectre d'un facteur $\sqrt{3}$ lors du filtrage et d'obtenir la réduction de la durée de l'impulsion correspondante a été démontrée expérimentalement et théoriquement. Cette propriété est un atout majeur pour l'amplification ultérieure de l'impulsion XPW générée et permet d'augmenter le rendement du filtre en terme d'intensité crête à une valeur supérieure à 30%.

Du point de vue de l'évolution spatiale du faisceau, nous avons montré que le filtre préserve les bonnes qualités du faisceau initial. Si celui-ci est distordu, le dispositif agit alors comme un efficace filtre spatial, au prix d'une légère perte d'efficacité.

Enfin, l'adaptabilité sur différentes chaînes laser et l'achromaticité du filtre ont été amplement décrites dans ce manuscrit, puisque les résultats présentés ont été obtenus et reproduits sur plusieurs systèmes femtosecondes aux caractéristiques diverses.

Le filtrage par génération d'une onde polarisée orthogonalement réunit toutes les propriétés nécessaires à son implémentation dans des systèmes laser de type Petawatt.

Au laboratoire, l'implantation du filtre dans un double CPA pour la conception d'un laser 500 TW à fort contraste est en cours et devrait donner des résultats dans les mois à venir. Des travaux complémentaires sont actuellement menés sur cette technologie dans plusieurs autres laboratoires, tels que le LULI à Palaiseau, le CUOS au Michigan, le CLRC (Central Laser Facility, Rutherford Appleton Laboratory) en Angleterre ou encore le MBI à Berlin.

Les recherches sur le filtrage non linéaire et, d'une manière générale, l'amélioration du contraste ne sont pas pour autant achevées.

La volonté de poursuivre la fiabilisation du filtre XPW se traduit par des investigations complémentaires, à la fois théoriques et expérimentales, sur le schéma multi-cristaux, afin d'en maîtriser parfaitement le mécanisme et d'en exploiter tout le potentiel.

De plus, des perspectives pour l'augmentation du rendement de conversion du processus existent. Elles passent, par exemple, par le recherche d'autres matériaux cristallins, possédant une valeur d'anisotropie plus élevée que le BaF_2, ou encore par un travail important sur la mise en forme des qualités spatiales du laser pour générer des profils rectangulaires en champ lointain.

Enfin, il apparaît maintenant nécessaire de parvenir à modéliser le processus d'émission spontanée amplifiée dans les amplificateurs de puissance, afin de préserver au mieux lors de la ré amplification le bon contraste des impulsions générées par le filtre.

ANNEXES

Annexes

A. Modifications de la polarisation dans un milieu cristallin anisotrope (calcul complet des équations de propagation).....179

B. Automodulation de phase et élargissement spectral.....185

C. Efficacité XPW théorique effective pour des ondes réelles : calcul de K.....189

A. Modifications de la polarisation dans un milieu cristallin anisotrope (calcul complet des équations de propagation)

Cette annexe détaille le calcul complet des équations de propagation d'une onde se propageant dans un milieu cristallin dont la susceptibilité non linéaire d'ordre 3 est anisotrope. Ces équations sont l'objet du paragraphe 1.3 du chapitre 2 (p. 38-43). Les hypothèses utilisées ici sont celles présentées dans le chapitre 2. Le champ incident est caractérisé par ses composantes orthogonales A et B, le cristal par ses axes *x* et *y*.

Nous rappelons l'expression de l'anisotropie du tenseur $\chi^{(3)}$ du milieu :

$$\sigma = \frac{\chi^{(3)}_{xxxx} - \chi^{(3)}_{xxyy} - 2\chi^{(3)}_{xyyx}}{\chi^{(3)}_{xxxx}} \qquad (A.1)$$

Rappelons également que : $\gamma_0 = \frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}$.

Nous avons établi que le développement de la polarisation non linéaire du troisième ordre s'écrit :

$$P_x^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0}{8}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left|E_x\right|^2 E_x + \chi^{(3)}_{xxyy}\,E_x^{*}\,E_y^2 + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left|E_y\right|^2 E_x\right] \qquad (A.2(a))$$

$$P_y^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0}{8}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left|E_y\right|^2 E_y + \chi^{(3)}_{xxyy}\,E_y^{*}\,E_x^2 + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left|E_x\right|^2 E_y\right] \qquad (A.2(b))$$

Dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable, l'évolution des champs E_x et E_y lors de la propagation est liée à la polarisation non linéaire :

$$\frac{dE_x}{dz} = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\times\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left|E_x\right|^2 E_x + \chi^{(3)}_{xxyy}\,E_x^{*}\,E_y^2 + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left|E_y\right|^2 E_x\right] \qquad (A.3(a))$$

$$\frac{dE_y}{dz} = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\times\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left|E_y\right|^2 E_y + \chi^{(3)}_{xxyy}\,E_y^{*}\,E_x^2 + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left|E_x\right|^2 E_y\right] \qquad (A.3(b))$$

Le repère *(xyz)* correspond aux axes cristallins du matériau. Soit β l'angle entre l'axe *x* et la direction *a* de la composante *A* du champ incident (fig. 2.3).

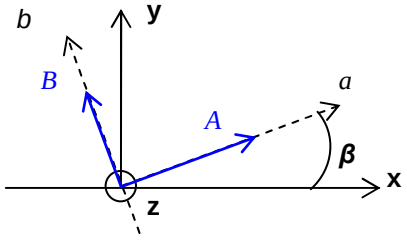

Figure 2.3 : Repères (xyz) et (abz), angle β.

Nous cherchons à exprimer $\frac{dA}{dz}$ et $\frac{dB}{dz}$ en fonction de *A* et *B*.

Les relations suivantes sont vérifiées :

$$E_x = \cos\beta\, A - \sin\beta\, B \qquad \textit{(A.4(a))}$$

$$E_y = \sin\beta\, A + \cos\beta\, B \qquad \textit{(A.4(b))}$$

$$\frac{dA}{dz} = \cos\beta \frac{dE_x}{dz} + \sin\beta \frac{dE_y}{dz} \qquad \textit{(A.5(a))}$$

$$\frac{dB}{dz} = -\sin\beta \frac{dE_x}{dz} + \cos\beta \frac{dE_y}{dz} \qquad \textit{(A.5(b))}$$

$\frac{dE_x}{dz}$ s'exprime en fonction de *A* et *B* d'après (*A.3)* et *(A.4)* :

$$\frac{dE_x}{dz} = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0} \times \left[\Sigma_1 \chi^{(3)}_{xxxx} + \Sigma_2 \chi^{(3)}_{xxyy} + 2\Sigma_3 \chi^{(3)}_{xyyx}\right] \qquad \textit{(A.6(a))}$$

$$\begin{aligned}\Sigma_1 = {} & \cos^3\beta |A|^2 A + 2\cos\beta\sin^2\beta |B|^2 A - \sin\beta\cos^2\beta A^2 B^* \\ & - 2\sin\beta\cos^2\beta |A|^2 B - \sin^3\beta |B|^2 B + \cos\beta\sin^2\beta B^2 A^*\end{aligned} \qquad \textit{(A.6(b))}$$

$$\begin{aligned}\Sigma_2 = {} & \cos\beta\sin^2\beta |A|^2 A - 2\cos\beta\sin^2\beta |B|^2 A - \sin^3\beta A^2 B^* \\ & + 2\sin\beta\cos^2\beta |A|^2 B - \sin\beta\cos^2\beta |B|^2 B + \cos^3\beta B^2 A^*\end{aligned} \qquad \textit{(A.6(c))}$$

$$\begin{aligned}\Sigma_3 = {} & \cos\beta\sin^2\beta |A|^2 A + \left(\cos^3\beta - \cos\beta\sin^2\beta\right)|B|^2 A + \sin\beta\cos^2\beta A^2 B^* \\ & - \left(\sin^3\beta - \sin\beta\cos^2\beta\right)|A|^2 B - \sin\beta\cos^2\beta |B|^2 B - \cos\beta\sin^2\beta B^2 A^*\end{aligned} \qquad \textit{(A.6(d))}$$

De la même manière,

$$\frac{dE_y}{dz} = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0} \times \left[\Sigma_4 \chi^{(3)}_{xxxx} + \Sigma_5 \chi^{(3)}_{xxyy} + 2\Sigma_6 \chi^{(3)}_{xyyx}\right] \qquad \textit{(A.7a))}$$

$$\begin{aligned}\Sigma_4 = {} & \sin^3\beta |A|^2 A + 2\sin\beta\cos^2\beta |B|^2 A + \cos\beta\sin^2\beta A^2 B^* \\ & + 2\cos\beta\sin^2\beta |A|^2 B + \cos^3\beta |B|^2 B + \sin\beta\cos^2\beta B^2 A^*\end{aligned} \qquad \textit{(A.7(b))}$$

$$\begin{aligned}\Sigma_5 = {} & \sin\beta\cos^2\beta |A|^2 A - 2\sin\beta\cos^2\beta |B|^2 A + \cos^3\beta A^2 B^* \\ & - 2\cos\beta\sin^2\beta |A|^2 B + \cos\beta\sin^2\beta |B|^2 B + \sin^3\beta B^2 A^*\end{aligned} \qquad \textit{(A.7(c))}$$

$$\begin{aligned}\Sigma_6 = {} & \sin\beta\cos^2\beta |A|^2 A + \left(\sin^3\beta - \sin\beta\cos^2\beta\right)|B|^2 A - \cos\beta\sin^2\beta A^2 B^* \\ & + \left(\cos^3\beta - \cos\beta\sin^2\beta\right)|A|^2 B + \cos\beta\sin^2\beta |B|^2 B - \sin\beta\cos^2\beta B^2 A^*\end{aligned} \qquad \textit{(A.7(d))}$$

Nous cherchons l'expression de $\frac{dA}{dz}$ et $\frac{dB}{dz}$ sous la forme :

$$\frac{dA}{dz} = \gamma_1 |A|^2 A + \gamma_2 |B|^2 B + \gamma_3 |B|^2 A + \gamma_4 A^2 B^* + \gamma_5 |A|^2 B + \gamma_6 B^2 A^* \qquad \textit{(A.8(a))}$$

$$\frac{dB}{dz} = \gamma_1' |B|^2 B + \gamma_2' |A|^2 A + \gamma_3' |A|^2 B + \gamma_4' B^2 A^* + \gamma_5' |B|^2 A + \gamma_6' A^2 B^* \qquad \textit{(A.8(b))}$$

Le calcul suivant établit l'expression des coefficients γ_1, γ_2, γ_3, γ_4, γ_5, γ_6 d'après les équations *(A.5), (A.6) et (A.7)*.

Calcul de γ_1 :

$$\gamma_1 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left(\cos^4\beta + \sin^4\beta\right) + \left(\chi^{(3)}_{xxyy} + 2\chi^{(3)}_{xyyx}\right)\left(2\sin^2\beta\cos^2\beta\right)\right] \qquad \textit{(A.9)}$$

De *(A.1)*, on déduit :

$$\chi^{(3)}_{xxyy} + 2\chi^{(3)}_{xyyx} = \chi^{(3)}_{xxxx}(1-\sigma) \qquad \textit{(A.10)}$$

L'équation *(A.9)* devient :

$$\gamma_1 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}\left(\cos^4\beta + \sin^4\beta + \frac{\sin^2 2\beta}{2} - \frac{\sigma}{2}\sin^2 2\beta\right) \qquad \textit{(A.11)}$$

$$\boxed{\gamma_1 = i\gamma_0\left(1 - \frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)\right)} \qquad \textit{(A.12)}$$

Calcul de γ_2 :

Le coefficient γ_2 correspond au terme de génération de polarisation croisée, il est désigné simplement par γ au cours du chapitre 2.

$$\gamma_2 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left(\cos^3\beta\sin\beta - \cos\beta\sin^3\beta\right) + \left(\chi^{(3)}_{xxyy} + 2\chi^{(3)}_{xyyx}\right)\left(\sin^3\beta\cos\beta - \sin\beta\cos^3\beta\right)\right]$$

(A.13)

$$\gamma_2 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\left(\cos^3\beta\sin\beta - \cos\beta\sin^3\beta\right)\left(\chi^{(3)}_{xxxx} - \chi^{(3)}_{xxyy} - 2\chi^{(3)}_{xyyx}\right)\right] \qquad \textit{(A.14)}$$

$$\gamma_2 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}\,\sigma\,\frac{\sin(4\beta)}{4} \qquad \textit{(A.15)}$$

$$\boxed{\gamma_2 = i\gamma_0\,\sigma\,\frac{\sin(4\beta)}{4}} \qquad \textit{(A.16)}$$

Calcul de γ_3 :

$$\gamma_3 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\ \sin^2 2\beta - \chi^{(3)}_{xxyy}\sin^2 2\beta + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left(\cos^4\beta + \sin^4\beta - 2\sin^2\beta\cos^2\beta\right)\right] \quad (A.17)$$

$$\gamma_3 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\ \sin^2 2\beta - \chi^{(3)}_{xxyy}\sin^2 2\beta + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\left(1 - \sin^2 2\beta\right)\right] \quad (A.18)$$

A ce stade du calcul, il est nécessaire d'établir les approximations suivantes :

$$\chi^{(3)}_{xxyy} \approx \chi^{(3)}_{xxxx}\frac{1-\sigma}{3} \quad (A.19(a))$$

$$2\,\chi^{(3)}_{xyyx} \approx 2\,\chi^{(3)}_{xxxx}\frac{1-\sigma}{3} \quad (A.19(b))$$

L'équation *(A.18)* devient :

$$\gamma_3 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}\left(\sigma\sin^2 2\beta + 2\frac{1-\sigma}{3}\right) \quad (A.20)$$

$$\boxed{\gamma_3 = i\,2\,\gamma_0\left(\frac{\sin^2(2\beta)}{2} + \frac{1-\sigma}{3}\right)} \quad (A.21)$$

Calcul de γ_4 :

$$\gamma_4 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left(\sin^3\beta\cos\beta - \sin\beta\cos^3\beta\right) + \left(\chi^{(3)}_{xxyy} + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\right)\left(\cos^3\beta\sin\beta - \cos\beta\sin^3\beta\right)\right]$$

(A.22)

$$\gamma_4 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\left(\sin^3\beta\cos\beta - \sin\beta\cos^3\beta\right)\left(\chi^{(3)}_{xxxx} - \chi^{(3)}_{xxyy} - 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\right)\right] \quad (A.23)$$

$$\gamma_4 = -i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}\ \sigma\ \frac{\sin(4\beta)}{4} \quad (A.24)$$

$$\boxed{\gamma_4 = -i\,\gamma_0\ \sigma\ \frac{\sin(4\beta)}{4}} \quad (A.25)$$

Calcul de γ_5 :

$$\gamma_5 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\left(2\sin^3\beta\cos\beta - 2\sin\beta\cos^3\beta\right) + \left(\chi^{(3)}_{xxyy} + 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\right)\left(2\cos^3\beta\sin\beta - 2\cos\beta\sin^3\beta\right)\right]$$

(A.26)

$$\gamma_5 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[2\left(\sin^3\beta\cos\beta - \sin\beta\cos^3\beta\right)\left(\chi^{(3)}_{xxxx} - \chi^{(3)}_{xxyy} - 2\,\chi^{(3)}_{xyyx}\right)\right] \quad (A.27)$$

$$\gamma_5 = -i\frac{6\pi}{8\lambda n_0} 2\chi^{(3)}_{xxxx}\ \sigma\ \frac{\sin(4\beta)}{4} \qquad (A.28)$$

$$\boxed{\gamma_5 = -i\,2\gamma_0\ \sigma\ \frac{\sin(4\beta)}{4}} \qquad (A.29)$$

Calcul de γ_6 :

$$\gamma_6 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\left[\chi^{(3)}_{xxxx}\ 2\sin^2\beta\cos^2\beta - \chi^{(3)}_{xxyy}\left(\cos^4\beta+\sin^4\beta\right) - 2\chi^{(3)}_{xyyx}\,2\sin^2\beta\cos^2\beta\right] \qquad (A.30)$$

D'après les équations *(A.19)*,

$$\gamma_6 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}\left(\frac{\sin^2 2\beta}{2} + \frac{1-\sigma}{3}\left(\cos^4\beta+\sin^4\beta-4\cos^2\beta\sin^2\beta\right)\right) \qquad (A.31)$$

$$\gamma_6 = i\frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}\left(\frac{\sin^2 2\beta}{2} + \frac{1-\sigma}{3}\left(1-3\,\frac{\sin^2 2\beta}{2}\right)\right) \qquad (A.32)$$

$$\boxed{\gamma_6 = i\,\gamma_0\left(\frac{1-\sigma}{3}+\frac{\sigma}{2}\sin^2 2\beta\right)} \qquad (A.33)$$

Les champs *A* et *B* étant interchangeables, les coefficients γ'_1, γ'_2, γ'_3, γ'_4, γ'_5, γ'_6 s'expriment directement en fonction de γ_1, γ_2, γ_3, γ_4, γ_5, γ_6 selon la définition de l'angle β.

L'expression de l'équation d'évolution du champ *A* finalement obtenue est :

$$\frac{dA}{dz} = i\,\gamma_0\left(1-\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)\right)|A|^2 A \quad \text{.....automodulation de phase}$$

$$+\,i\,\gamma_0\,\frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|B|^2 B \quad \text{.....génération de polarisation croisée}$$

$$+\,i\,2\,\gamma_0\left[\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)+\frac{1-\sigma}{3}\right]|B|^2 A \quad \text{.....modulation de phase croisée}$$

$$\left.\begin{aligned} &-i\,\gamma_0\,\frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)A^2B^* \\ &-i\,2\,\gamma_0\,\frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|A|^2 B \\ &+i\,\gamma_0\left[\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)+\frac{1-\sigma}{3}\right]B^2A^* \end{aligned}\right\} \quad \text{..... autres processus de mélange à 4 ondes} \qquad (A.34(a))$$

De la même manière,

$$\frac{dB}{dz} = i\gamma_0\left(1-\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)\right)|B|^2 B \quad \text{.....automodulation de phase}$$

$$-i\gamma_0\frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|A|^2 A \quad \text{.....génération de polarisation croisée}$$

$$+i2\gamma_0\left[\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)+\frac{1-\sigma}{3}\right]|A|^2 B \quad \text{.....modulation de phase croisée}$$

$$\left.\begin{aligned} &+i\gamma_0\frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)B^2A^* \\ &+i2\gamma_0\frac{\sigma}{4}\sin(4\beta)|B|^2 A \\ &+i\gamma_0\left[\frac{\sigma}{2}\sin^2(2\beta)+\frac{1-\sigma}{3}\right]A^2B^* \end{aligned}\right\} \quad \text{..... autres processus de mélange à 4 ondes}$$

(A.34(b))

B. Automodulation de phase et élargissement spectral

Nous voulons connaître l'évolution du spectre d'une impulsion subissant de l'automodulation de phase sur une longueur d'interaction z. Ces calculs ont été effectués par le groupe ILM du laboratoire.

1. Hypothèses

L'expression simple de l'automodulation de phase subie par une onde A s'écrit :

$$\frac{dA}{dz} = i\gamma_0 |A|^2 A \qquad (B.1)$$

Avec $\gamma_0 = \frac{6\pi}{8\lambda n_0}\chi^{(3)}_{xxxx}$, et $n_2 = \frac{3}{4\varepsilon_0 c n_0^2}\chi^{(3)}_{xxxx}$.

Soit I l'intensité de l'onde :

$$I = \frac{c\varepsilon_0 n_0}{2}|A|^2 \qquad (B.2)$$

On suppose que l'intensité se conserve, on considère donc I indépendant de z.

L'équation *(B.1)* devient :

$$\frac{dA}{dz} = i\frac{2\pi}{\lambda} n_2 I A = i\alpha I A \qquad (B.3)$$

$$A(t,z) = A_0 e^{i\alpha I z} \qquad (B.4)$$

2. Evolution de la fréquence moyenne du spectre

Soit $A(\omega)$ la répartition spectrale en intensité associée :

$$A(\omega,z) = \int A(t,z) e^{i\omega t} dt \qquad (B.5)$$

La valeur moyenne du spectre s'écrit :

$$\langle\omega\rangle = \int \omega |A(\omega)|^2 d\omega \qquad (B.6)$$

D'après *(B.6)* :

$$A(\omega,z) = \int A_0 e^{i\alpha I z} e^{i\omega t} dt \qquad (B.7)$$

$$A(\omega,z)A^*(\omega,z) = \int A^*(\omega,z) A_0 e^{i\alpha I z} e^{i\omega t} dt \qquad (B.8)$$

$$\langle\omega\rangle = \int \omega |A(\omega)|^2 d\omega = \int A_0 e^{i\alpha I z} \left(\int \omega A^*(\omega,z) e^{i\omega t} d\omega\right) dt \qquad (B.9)$$

$$\langle\omega\rangle = \frac{-i}{2\pi}\int A_0 e^{i\alpha I z} \frac{d A^*(t,z)}{dt} dt = \frac{-i}{2\pi}\int A_0 e^{i\alpha I z} \frac{d}{dt}\left(A_0^* e^{-i\alpha I z}\right) dt \qquad (B.10)$$

Le développement de l'équation *(A.10)* conduit à :

$$\langle\omega\rangle = \frac{-i}{2\pi}\underbrace{\int A_0 \frac{d\,A_0^{*}}{dt}dt}_{\text{Indépendant de z}} - \frac{\alpha z}{2\pi}\int A_0\,A_0^{*}\,e^{i\alpha I z}\underbrace{\frac{dI}{dt}}_{=0}dt \qquad (B.11)$$

La fréquence moyenne du spectre ne dépend pas de z, elle ne varie pas lors de l'interaction.
Ce calcul est utile pour évaluer l'élargissement spectral.

3. Evolution de la largeur du spectre

La largeur spectrale à mi-hauteur s'exprime par :

$$\langle\omega^2\rangle = \int \omega^2 \left|A(\omega)\right|^2 d\omega \qquad (B.12)$$

Par analogie avec le calcul précédent, nous obtenons :

$$\langle\omega^2\rangle = \int A_0\,e^{i\alpha I z}\left(\int \omega^2\,A^{*}(\omega,z)e^{i\omega t}\,d\omega\right)dt \qquad (B.13)$$

$$\langle\omega^2\rangle = \frac{1}{4\pi^2}\int A_0\,e^{i\alpha I z}\frac{d^2\,A^{*}(t,z)}{dt^2}dt \qquad (B.14)$$

L'intégration par parties de cette expression conduit à:

$$\langle\omega^2\rangle = \frac{1}{4\pi^2}\int \frac{d\,A_0}{dt}\frac{d\,A_0^{*}}{dt}dt + \frac{i\alpha z}{4\pi^2}\int\left(A_0\frac{d\,I}{dt}\frac{d\,A_0^{*}}{dt} - A_0^{*}\frac{d\,I}{dt}\frac{d\,A_0}{dt}\right)dt + \frac{\alpha^2 z^2}{4\pi^2}\int I\left(\frac{dI}{dt}\right)^2 dt \qquad (B.15)$$

$$\langle\omega^2\rangle = \underbrace{\langle\omega^2\rangle(z=0)}_{\text{Largeur spectrale initiale}} + \frac{i\alpha z}{4\pi^2}\int\frac{d\,I}{dt}\left(A_0\frac{d\,A_0^{*}}{dt} - A_0^{*}\frac{d\,A_0}{dt}\right)dt + \underbrace{\frac{\alpha^2 z^2}{4\pi^2}\int I\left(\frac{dI}{dt}\right)^2 dt}_{>0} \qquad (B.16)$$

L'équation *(B.16)* montre que si z est très grand, alors la largeur du spectre augmente toujours, quadratiquement avec la valeur de z. Si z est petit, l'évolution de la largeur spectrale est alors déterminée par le terme intermédiaire dont il faut connaître le signe.
On introduit :

$$A_0(t) = a_0\,e^{i\varphi_0} \qquad (B.17)$$

Cela donne :

$$A_0\frac{d\,A_0^{*}}{dt} = a_0\left(\frac{da_0}{dt} - i\,a_0\frac{d\varphi_0}{dt}\right) \qquad (B.18)$$

$$A_0^{*}\frac{d\,A_0}{dt} = a_0\left(\frac{da_0}{dt} + i\,a_0\frac{d\varphi_0}{dt}\right) \qquad (B.19)$$

On obtient donc :

$$\frac{i\alpha z}{4\pi^2}\int \frac{d\,I}{dt}\left(A_0\,\frac{d\,A_0^{\,*}}{dt}-A_0^{*}\,\frac{d\,A_0}{dt}\right)dt=\frac{2\alpha z}{4\pi^2}\int \frac{dI}{dt}\,I\,\frac{d\varphi_0}{dt}\,dt$$

$$=\frac{\alpha z}{2\pi^2}\int \frac{dI^{\,2}}{dt}\,\frac{d\varphi_0}{dt}\,dt$$

$$=-\frac{\alpha z}{2\pi^2}\int I^{\,2}\,\frac{d^{\,2}\varphi_0}{dt^{\,2}}\,dt \qquad \textit{(B.20)}$$

Lorsque z est petit, c'est le signe de $\frac{d^2\varphi_0}{dt^2}$ qui détermine l'élargissement ou le rétrécissement du spectre.

- Si l'impulsion a une durée limitée par transformée de Fourier, alors $\frac{d^{\,2}\varphi_0}{dt^{\,2}}=0$ et son spectre s'élargit toujours grâce à l'automodulation de phase.
- Si l'impulsion possède un chirp négatif, c'est-à-dire $\varphi_0(t)=a\,t^2$ avec $a>0$ alors le spectre commence par rétrécir.
- Si l'impulsion possède un chirp positif, c'est-à-dire $\varphi_0(t)=a\,t^2$ avec $a<0$ alors le spectre commence par s'élargir.

Conclusion

En présence d'automodulation de phase, la fréquence centrale du spectre ne varie pas pendant l'interaction, le spectre n'est pas décalé en longueur d'onde. Pour les longueurs d'interaction relativement faibles, ce qui correspond aux cas expérimentaux, alors l'élargissement du spectre dépend du signe de la phase temporelle du second ordre de l'impulsion.

C. Efficacité XPW théorique effective pour des ondes réelles : calcul de K

Soit η l'efficacité de conversion XPW théorique pour une onde plane (temps et espace). Soit η_{eff} l'efficacité effective de conversion XPW, toujours théorique, pour une onde présentant une modulation d'intensité temporelle et spatiale.

Dans cette annexe, nous établissons une relation simple entre η et η_{eff}, $\eta_{eff} = K\eta$.

Cette relation est obtenue analytiquement dans le cas de non-déplétion de la pompe, régime dans lequel l'expression du champ généré par génération de polarisation croisée s'écrit :

$$A_{XPW} = \gamma_2 A_{in}^3 L \qquad (C1)$$

η, rendement pour une onde plane, est défini comme :

$$\eta = \left| \frac{A_{XPW\,0}}{A_{in0}} \right|^2 = \gamma_2^2 (A_{in0})^4 L^2 \qquad (C2)$$

Considérons le cas d'une impulsion de forme temporelle sécante hyperbolique (la largeur à mi-hauteur est notée Δt) et de forme spatiale gaussienne (largeur à mi-hauteur 2ρ).
La dépendance spatio-temporelle du champ incident s'écrit :

$$A_{in}(x,y,t) = A_{in0} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{w^2} \right) \frac{2}{\exp\left(\frac{t}{\tau}\right) + \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right)} \qquad (C3)$$

Avec $2\rho = w\sqrt{2\ln 2}$ et $\Delta t = 1.76\tau$.

L'énergie incidente est donc :

$$E_{in} = \frac{cn\varepsilon_0}{2} \iiint (A_{in})^2 dxdydt = \pi \frac{cn\varepsilon_0}{2} A_{in0}^2 w^2 \tau \qquad (C4)$$

Soit,

$$A_{in0}^2 = \frac{2}{cn\varepsilon_0} \frac{E_{in}}{\pi w^2 \tau} \qquad (C5)$$

De la même manière,

$$\left| A_{XPW}(x,y,t) \right|^2 = \gamma_2^2 \left| A_{in}(x,y,t) \right|^6 L^2 \qquad (C6)$$

$$E_{XPW} = \frac{cn\varepsilon_0}{2} \iiint (A_{XPW})^2 dxdydt = \frac{cn\varepsilon_0}{2} A_{in0}^2 \gamma_2^{\,2} A_{in0}^4 L^2 \left(\frac{8}{45} \pi w^2 \tau \right) \qquad (C7)$$

En considérant que

$$\eta_{eff} = \frac{E_{XPW}}{E_{in}} \qquad (C8)$$

En remplaçant A_{in0}^2 par sa valeur *(B.5)* dans *(B.8)*, on obtient finalement :

$$\boxed{\eta_{eff} = K\eta \; avec \; K = \frac{8}{45}} \qquad (C9)$$

Génération d'impulsions laser ultra-brèves et ultra-intenses à contraste temporel élevé.

Ce travail de thèse a porté sur la conception et la caractérisation d'un dispositif efficace pour l'amélioration du contraste d'impulsions laser femtosecondes ultra-intenses. La notion de contraste désigne le rapport d'intensité entre l'impulsion proprement dite et son piédestal, de durée nanoseconde. Ce piédestal est constitué par l'émission spontanée amplifiée (ASE pour Amplified Spontaneous Emission), inhérent au mécanisme d'amplification laser et particulièrement néfaste pour les interactions laser-matière sur cible solide.

Le travail présenté consiste en l'étude théorique et expérimentale d'un filtre temporel basé sur un effet non linéaire du troisième ordre, agissant sur la polarisation de l'impulsion. Nous avons étudié plusieurs déclinaisons de ce principe. Le dispositif finalement retenu repose sur la génération d'une onde polarisée orthogonalement (XPW) dans des matériaux cristallins dont la susceptibilité non linéaire d'ordre trois est anisotrope. Ce filtre non linéaire a été testé sur différents systèmes femtosecondes et permet l'amélioration du contraste sur plusieurs ordres de grandeur, comme le confirment les mesures de profils temporels sur une grande dynamique réalisées après filtrage. Nous avons également conçu un dispositif pour optimiser l'efficacité de conversion du processus non linéaire, c'est-à-dire la transmission du filtre. Cette méthode consiste à générer des interférences constructives entre les signaux XPW émis dans des cristaux distincts. Dans ces conditions, l'efficacité de transmission théorique (supérieure à 20%) est atteinte expérimentalement et dans le même temps la stabilité du système est assurée. Nous avons enfin démontré que le filtre préserve, voire améliore, les qualités spectrales et spatiales de l'impulsion.

Ces résultats sont donc particulièrement prometteurs et permettent d'envisager l'implémentation définitive du filtre dans les systèmes femtosecondes.

Mots clé : Laser, Impulsions femtoseconde, Contraste temporel, Emission spontanée amplifiée, Filtre non linéaire, non linéarités d'ordre trois, anisotropie, génération de polarisation orthogonale.

Generation of ultra-intense and ultra-short laser pulses with high temporal contrast.

The topic of this thesis work concerns the design and the characterization of an efficient device devoted to the temporal contrast improvement for ultra-intense femtosecond laser pulses. The contrast is defined as the intensity ratio between the main femtosecond pulse and its nanosecond pedestal. This pedestal is the amplified spontaneous emission (ASE), inherent with laser amplification mechanism. The ASE background has dramatic effects for laser-matter interactions on a solid target.

The presented work consists in the theoretical and experimental study of a temporal filter based on a third order nonlinear effect acting on the pulse polarization. We have studied several kinds of nonlinear filters. The selected device is based on the process of cross-polarized wave generation (XPW) in crystals with an anisotropic third-order nonlinear susceptibility. This nonlinear filter has been experimented on various femtosecond systems. It allows a contrast improvement of several orders of magnitude, as demonstrated by temporal profiles measurements on a large intensity dynamic. A device to improve the nonlinear process conversion efficiency, it means the filter transmission, has also been achieved. This method is based on constructive interferences between XPW signals generated in different crystals. This setup has made it possible to reach experimentally the maximum theoretical efficiency (> 20%) and in the same time ensures the system stability. At least, we have demonstrated that the filter preserves, or even improves, spectral and spatial qualities of the laser pulse.

These results are thus particularly promising and allow contemplating the implementation of the filter in current femtosecond systems.

Key words: Laser, Femtosecond pulse, Temporal contrast, Amplified spontaneous emission, Nonlinear filter, Third-order nonlinearities, Anisotropy, Cross-Polarized Wave generation.