Génération et filtrage d'impulsions ultracourtes par effet XPW

4.1 Introduction

Le chapitre s'attache à étendre la compréhension de l'effet XPW dans les régimes extrêmes. On s'intéresse, d'une part, au cas des très hauts rendements pour la génération d'impulsions ultracourtes (partie 4.2) et, d'autre part, au filtrage des impulsions de quelques cycles optiques (partie 4.3). Ces deux parties sont l'occasion de mettre en regard les études théoriques systématiques qui découlent des codes présentés précédemment et les résultats expérimentaux sur les injecteurs ultra-courts pour chaine de puissance et le schéma de filtrage XPW à haute énergie et haut rendement. L'implémentation de ces deux types de schéma font l'objet du chapitre 5.

4.2 XPW à très haut rendement pour la production d'impulsions ultracourtes

4.2.1 XPW haute efficacité : sur-élargissement spectral et effets de phase en régime de saturation

Dans cette section, on s'intéresse à l'influence de la phase spectrale d'entrée, en particulier le rôle du chirp, sur le signal XPW, en termes de rendement, de largeur spectrale et de qualité spectrale. L'analyse complète menée dans [1] dans le régime de non déplétion de la pompe (i.e. bas rendement) a établi l'influence d'une

phase spectrale initiale arbitraire. Dans le cas des hauts rendements, les procédés de mélange à quatre ondes, en particulier la SPM, vont modifier fortement les caractéristiques XPW. Les résultats théoriques présentés ci-dessous sont issus du code Matlab 1D (Chap. 3.4.2).

Phases spectrales d'ordre deux optimale et critique à haut rendement

 $Phase(s) \ optimale(s)$?



FIGURE 4.1 – Phase optimale pour l'efficacité (ligne pleine) et l'élargissement spectral (ligne hachurée) dans les cas du bas rendement (S=0,9) et du haut rendement (S=4,1).

Dans un premier temps, on considère l'effet de la phase d'ordre 2 lorsque l'efficacité du processus de conversion augmente. On définit en particulier $\phi_{opt-E}^{(2)}$ et $\phi_{opt-S}^{(2)}$, les valeurs de la phase du deuxième ordre qui optimisent la conversion (énergie XPW) et l'élargissement spectral respectivement. La figure 4.1 montre la dépendance de la conversion XPW et de l'élargissement spectral en fonction du

chirp initial à bas rendement (S=0.9) et haut rendement (S=4.1). L'impulsion d'entrée a une durée de $25 \,\mathrm{fs}$, un profil spatial gaussien et le cristal de BaF₂ fait 3 mm. Dans le premier cas, l'efficacité maximum est environ 3% et est atteinte pour un chirp légèrement négatif qui pré-compense une partie de la dispersion du cristal de sorte que l'impulsion est comprimée en son coeur. L'élargissement spectral maximal correspond aussi à un chirp légèrement négatif de l'ordre de 25 fs². Autour de cette valeur optimale, la dépendance en chirp est symétrique comme prévu par les modèles précédents. Dans le cas à bas rendement, $\phi_{opt-E}^{(2)}$ et $\phi_{opt-S}^{(2)}$ sont donc égaux et il est possible d'optimiser à la fois la conversion et l'élargissement spectral XPW. On remarque que le facteur d'élargissement maximum est légèrement inférieur à 1,7 (valeur calculée théorique). Ceci est dû au chirp induit par la propagation dans le cristal. En fait, si l'on néglige la dispersion du cristal ou si l'on utilise un cristal plus fin (1 mm) ou encore une impulsion plus longue (> 40 fs). alors on atteint la valeur de 1,7. Dans cette configuration, la dispersion du cristal n'est donc pas négligeable et le chirp positif induit sur l'impulsion fondamentale conduit à ce léger sous-élargissement, même avec une impulsion pré-chirpée négativement.



FIGURE 4.2 – Mise en évidence de l'effet de l'auto-modulation de phase (SPM) sur le sur-élargissement du spectre XPW à haut rendement. Evolution des spectres normalisés du fondamental (à g.) et de l'XPW (à d.) en fonction du chirp dans les cas à bas (S = 0.9) et haut (S = 4.1) rendements.

La situation est différente pour S = 4,1. L'efficacité maximum (25%) est atteinte pour la même valeur de chirp (-25 fs²). Par contre, pour le comportement spectral, on remarque d'abord que $\phi_{opt-S}^{(2)}$ est décalé vers une valeur positive de l'ordre de 40 fs² et que cette valeur correspond à un élargissement spectral plus important. A haut rendement, le spectre le plus large ne correspond donc pas à l'efficacité maximale. De plus, le facteur d'élargissement est beaucoup plus important (jusqu'à $\approx 2,5$) que dans le cas à bas rendement.

Ce sur-élargissement du spectre XPW peut provenir de plusieurs effets qui sont par ordre croissant d'importance: la SPM sur l'XPW, la XPM et la SPM sur le fondamental. Afin de mieux comprendre, la figure 4.2 montre les spectres de sortie (fondamental et XPW) en fonction du chirp initial dans les deux cas de rendements bas et haut. Ce qui nous intéresse particulièrement ici est le cas S = 4,1pour lequel la structure du spectre de sortie du fondamental est marquée par la présence de SPM (fenêtre en bas à gauche). On observe que, lorsque l'impulsion est chirpée négativement (-200 fs² à -100 fs²), le spectre du fondamental est plus étroit. Au contraire, lorsque le chirp est positif en entrée (0 fs² à 200 fs²), le spectre se creuse et s'élargit fortement. Ce comportement est caractéristique de la SPM. L'élargissement "se transfère" en partie au spectre XPW (fenêtre en bas à droite).

L'explication de ce transfert tient au fait que l'impulsion XPW est toujours plus courte (d'un facteur $\geq \sqrt{3}$) que l'impulsion fondamentale [3]. Le spectre XPW s'élargit donc en bénéficiant de la SPM sur l'impulsion fondamentale dans la limite où cette dernière subit un chirp limité à la traversée du cristal. Cela s'observe dans le cadran en bas à droite de la figure 4.2 où le spectre XPW en sortie est représenté. La largeur spectrale passe par un maximum pour $\phi_{opt-S}^{(2)} \approx 40 \, fs^2$. Au-delà de cette valeur, l'élargissement décroit car la valeur totale de chirp (initial + traversée du cristal) subi par le fondamental est trop importante. La phase, en particulier le chirp, ajoutée à la traversée du cristal a deux origines : la dispersion du cristal et la SPM. A 30 fs, la dispersion d'un cristal de 2 mm de BaF_2 a peu d'influence car $L_D \approx 8 \, mm$ (cf. Eq. 3.4). A haut rendement, c'est donc bien la SPM sur le fondamental qui est à l'origine de l'élargissement du spectre XPW. Ce phénomène est logiquement favorisé pour une valeur de chirp légèrement positive. Cependant la SPM n'étant pas homogène spectralement, il est important d'observer que la dissymétrie du spectre fondamental n'est pas ou peu transférée à l'XPW. Ceci est l'illustration du filtrage spectro-temporel de l'XPW : les éléments parasites induits par SPM sur le profil temporel de l'impulsion fondamentale sont filtrés lors de la conversion vers l'XPW, ce qui conduit à un spectre et une impulsion temporelle propres. La préservation d'un spectre XPW gaussien et régulier est la marque d'effets de SPM et XPM négligeables sur l'impulsion XPW.

Pour mieux apprécier la qualité de l'impulsion XPW, il est néanmoins intéressant d'introduire à l'occasion un nouveau critère: l'écart à la gaussienne du spectre XPW généré. Ce paramètre permet de mesurer une donnée cruciale, la qualité spectrale de l'impulsion XPW. A titre d'illustration de la cohérence entre les résultats de simulation et l'expérience, la figure 4.3 regroupe l'ensemble des quatre caractéristiques de la génération XPW dont nous venons de parler, à savoir: le rendement, l'élargissement spectral, le décalage vers le bleu du spectre et l'écart à la gaussienne du spectre. Si l'on s'intéresse à ce dernier critère (Fig. 4.3, quadrant en haut à droite), l'optimum est atteint pour un chirp de +100 fs² environ. A ce niveau de chirp, le spectre est également proche de son élargissement maximum (2,4) et du décalage vers le bleu maximum. Sur le quadrant en bas à droite de la figure 4.3, on observe à nouveau l'écart entre la valeur retournée par le code et la mesure expérimentale (≈ 5 nm).

Par contre, l'efficacité est maximale (25%) pour $\phi_{opt-E}^{(2)} = -50 \text{ fs}^2$. L'écart entre $\phi_{opt-S}^{(2)}$ et $\phi_{opt-E}^{(2)}$, de l'ordre de 150 fs², se trouve ainsi dans la précision de mesure et de correction d'appareils de compensation de la phase (AOPDF, compresseur à réseaux). Expérimentalement, l'utilisateur a donc à choisir entre un spectre plus large et plus gaussien, soit une impulsion potentiellement plus courte, et un rendement plus élevé.



FIGURE 4.3 – Critère d'optimalité de la génération XPW à haut rendement: efficacité ou qualité spectrale? Les données expérimentales ont été obtenues avec un laser de 25 fs et un cristal de BaF_2 de 2,5 mm avec une orientation holographique.

Phase critique



FIGURE 4.4 – Domaines délimités par les phases spectrales d'ordre deux critiques pour l'élargissement spectral (FWHM_{xpw} > FWHM_{fondamental} en bleu), le sur-élargissement spectral (FWHM_{xpw} > 1,7 FWHM_{fondamental} en vert) et l'efficacité (Eff_{xpw} > 0,5 Eff^{max}_{xpw}).

On peut également extraire du code la valeur maximale tolérable de chirp résiduel en fonction de S pour une impulsion donnée. Comme cela est fait dans [1] dans le régime de non-déplétion, on nomme $\phi_{cr-E}^{(2)}$ la phase du second ordre critique pour obtenir la moitié de l'efficacité XPW maximale et $\phi_{cr-S-1}^{(2)}$ la phase critique pour obtenir un spectre XPW élargi ($\Delta \lambda_{XPW} \geq \Delta \lambda_0$). Afin d'illustrer le domaine de chirp tolérable pour obtenir un sur-élargissement du spectre XPW, on définit $\phi_{cr-S-1,7}^{(2)}$, la phase d'ordre 2 pour laquelle $\Delta \lambda_{XPW} \geq 1, 7\Delta \lambda_0$. On se place dans le cas d'une impulsion initiale de 25 fs, de spectre gaussien centré à 800 nm traversant un cristal de BaF_2 de 2 mm (cf. Fig. 4.4). Pour de basses valeurs de S, les résultats sont en bon accord avec [1]. En particulier, comme la phase spectrale optimale, les domaines des phases critiques pour l'efficacité et l'élargissement sont centrés sur une valeur comprise entre -25 fs^2 et -50 fs^2 et se recouvrent largement. Ensuite, le domaine de phase spectrale tolérable augmente avec S car à la fois l'efficacité et l'élargissement augmentent. On remarque une différence fondamentale néanmoins. $\phi_{cr-E}^{(2)}$ reste centrée sur la même valeur, signe d'un élargissement du domaine symétrique. Par contre, dans le cas de $\phi_{cr-S}^{(2)}$, l'asymétrie du domaine est de plus en plus marquée avec le signe du chirp. $\phi_{cr-S}^{(2)}$ et $\phi_{cr-S-1,7}^{(2)}$ se décalent conjointement vers les chirps positifs. Pour des valeurs de S élevées, la condition limitante est le critère portant sur le sur-élargissement. Cependant, il reste une zone relativement large (450 fs² pour S = 4 et une impulsion de 25 fs) permettant d'obtenir une génération XPW efficace et un élargissement spectral significatif.

La même étude peut être menée pour les phases spectrales d'ordre 3, 4, etc. A titre d'exemple, pour la phase spectrale d'ordre 3 et une impulsion de 25 fs avec S = 4 dans un cristal de BaF₂ de 2 mm en coupe [011], l'optimum est obtenu pour $\phi_{opt}^{(3)} = 0$ fs³ et la phase critique est $\phi_{cr}^{(3)} = \pm 2000$ fs³ (valeurs obtenues expérimentalement, cf. Sec. 5.2, Chap. 5).

Conclusion intermédiaire

Notre modèle permet de rendre finement la génération XPW dans le cas d'impulsions courtes $(10 fs \le \Delta T \le 50 fs)$ et à haut rendement. Le seul bémol est le décalage de quelques nanomètres entre le blue-shift donné par les simulations et le blue-shift observé. Cependant ce décalage est quasiment constant quelles que soient les conditions de simulation et expérimentales. Par conséquent, même si l'origine de ce décalage reste à éclaircir, il n'est pas gênant en soi pour l'interprétation des résultats.

Cet outil numérique a donc permis de comprendre et maîtriser les paramètres expérimentaux importants pour la mise en forme spectrale de l'XPW dans le cas de haut rendement. Cela a deux implications fortes. D'une part, pour une impulsion donnée et un cristal donné, on est capable de représenter un domaine acceptable de chirp pour lequel la génération XPW est optimisée en termes d'efficacité et d'élargissement spectral tout en respectant la qualité gaussienne du spectre. A 30 fs, cette zone d'environ 100 fs² et 1000 fs³ permet une certaine souplesse d'utilisation. Pour des impulsions plus courtes (≤ 10 fs), la dispersion du cristal entre en jeu ($L_D \leq 1 mm$) et limite *in fine* les possibilités de mise en forme.

La deuxième implication est pratique. Pour des impulsions de 20-30 fs, on est à présent capable expérimentalement d'associer un rendement élevé ($\geq 20\%$) avec la production d'impulsions XPW beaucoup plus courtes que les impulsions initiales avec un spectre parfaitement gaussien. La compression temporelle des impulsions d'un facteur ≤ 3 , conduisant à des durées inférieures à 10 fs, est confirmée dans les chapitres suivants.

Dans la section suivante, les effets de phase sont momentanément laissés de côté et on s'intéresse au couplage spatio-temporel de l'onde lors de la génération XPW à haut rendement. Pour cela, on utilise le code 3D CommodPro détaillé en partie 3.4.3.

4.2.2 Couplage spatio-temporel de l'impulsion XPW

Le problème du couplage spatio-temporel de l'effet XPW a régulièrement fait l'objet de questions lors de conférences. L'interrogation classique consiste à se demander dans quelle mesure le faisceau XPW est spectralement homogène étant donné que la génération XPW ne se fait pas de manière homogène sur l'étendue spatiale du faisceau incident. En effet, on s'attend à ce que le rendement soit plus important au centre, et donc que l'élargissement spectral ainsi que le décalage vers le bleu y soient plus forts. De plus, cette tendance devrait être d'autant plus prononcée que le rendement est élevé car alors, l'impulsion fondamentale subit au centre une forte modulation spectrale, ce qui n'est a priori pas le cas sur les ailes.

L'étude théorique menée ici se décompose en trois étapes et est complétée par des mesures expérimentales. On montre d'abord qu'à bas rendement, le faisceau de polarisation croisée généré est homogène spectralement sur l'ensemble de la tache. De là, on s'intéresse aux effets à haut rendement, lorsque l'impulsion fondamentale est "chahutée". On observe effectivement l'inhomogénéité spectrale du faisceau XPW généré à la sortie du cristal. Cependant, au cours de la propagation après le cristal, il s'opère une remise en forme spatio-spectrale de l'impulsion XPW qui aboutit à la ré-homogénéisation du spectre sur l'étendue spatiale du faisceau. Ce phénomène n'étant pas intuitif, on y consacre une attention particulière, en cherchant notamment à observer la propagation de différentes longueurs d'onde indépendamment.

Avec CP, on s'est placé dans les conditions expérimentales (cf. chapitre 5.3) d'un cristal de BaF₂ de 2,5 mm en coupe holographique situé après une fibre creuse de diamètre 250 μ m, servant ici de filtre spatial. Le faisceau incident sur le cristal est gaussien et divergent. On positionne le cristal à une distance de la fibre de 22,5 cm et on fait varier l'énergie incidente de telle sorte que le rendement balaie la plage 10%-25%, conformément aux résultats expérimentaux. Dans ces conditions, on place des diagnostics tous les millimètres après le cristal jusqu'à 1 cm, puis tous les centimètres jusqu'à 5 cm, puis tous les 5 cm jusqu'à 30 cm, et enfin à 50, 70 et 100 cm. De cette manière, on peut observer l'évolution du spectre de l'impulsion au cours de la propagation en chaque point du profil spatial.

Génération XPW homogène à bas rendement

A bas rendement (ou à rendement modéré), les effets non-linéaires, en particulier la SPM sur le fondamental, ont une influence faible sur le spectre de l'impulsion fondamentale. En conséquence, l'élargissement spectral de l'XPW se déduit en première approximation de la relation $\Delta t_{XPW} = \Delta t_0/\sqrt{3}$ qui ne dépend pas du rendement. On s'attend donc intuitivement à un élargissement spectral homogène, ce que viennent confirmer les résultats de simulation de la figure 4.5(a). Le contenu



FIGURE 4.5 – Simulation avec le logiciel CommodPro de l'évolution de la répartition spatiale du spectre XPW avec la propagation (0, 20 et 100 cm après le cristal XPW) dans le cas d'un rendement faible (a) et d'un rendement fort (b). Les étoiles blanches indiquent la largeur spectrale à mihauteur (FWHM).

spectral XPW est pratiquement le même sur toute la tache et varie peu lors de la propagation. L'élargissement du spectre correspond au facteur $\sqrt{3}$ caractéristique de l'XPW à rendement faible ou modéré.

Génération XPW inhomogène à haut rendement et remise en forme spatio-temporelle

A haut rendement, 20% et au-delà, la SPM du fondamental crée un surélargissement spectral au centre de la tache que l'on ne retrouve pas sur les bords. Cela est très visible juste après le cristal comme le montre la figure 4.5(b). Cependant, au fur et à mesure de la propagation, l'écart se résorbe pour finalement laisser place à un faisceau spectralement homogène après 100 cm de propagation. La valeur finale de l'élargissement spectral se stabilise ici proche d'un facteur 3.

Mesures expérimentales d'homogénéité spectrale des impulsions XPW à bas et haut rendements

Ces tendances à haut et bas rendements sont observées expérimentalement. On s'est placé dans un schéma avec filtrage spatial par fibre des impulsions avant



FIGURE 4.6 – Mesures expérimentales de l'évolution de la répartition spatio-spectrale des impulsions XPW avec la propagation. Comparaison des cas de rendement faible (a) et de rendement élevé avec un cristal (b) et deux cristaux (c), à 20, 100, 150 et 200 cm après le cristal. Les étoiles ou losanges indiquent les largeurs à mi-hauteur.

le cristal XPW. Puis on a utilisé un pinhole de $200 \,\mu m$ pour observer le spectre du faisceau dans les directions transverses à la propagation. Pour des raisons pratiques, nous n'avons pu observer le spectre qu'à partir de plusieurs centimètres après le cristal. Les mesures sont résumées sur la figure 4.6. A bas rendement, le spectre est spatialement homogène dès 20 cm après le cristal. A haut rendement, le comportement est différent comme l'illustre le cas à un cristal. 20 cm après le cristal, on observe un facteur 1,5 entre la largeur spectrale au centre et sur les bords de l'impulsion. Au centre, la largeur spectrale est de l'ordre de 120 nm tandis qu'elle est de 80 nm sur les bords, ce qui correspond bien à un élargissement spectral maximal de 3 au centre et limité à 2 aux bords. Après 1 m de propagation, le ratio n'est plus que de 1,25 entre la largeur au centre et sur les bords, puis il baisse à 1,15 après 1,5 m pour se stabiliser proche de 1,1 après 2 m avec des largeurs comprises entre 95 et $105\,\mathrm{nm}$, soit un élargissement spectral global d'un facteur de 2,5. Le même comportement est observé dans le cas où deux cristaux séparés de quelques centimètres sont positionnés après la fibre. La présence d'un second cristal permet un élargissement encore supérieur du spectre XPW. Il atteint une largeur à mi-hauteur de 100 à 110 nm, correspondant à un facteur 3 par rapport au spectre d'entrée. Ces mesures expérimentales confirment donc la ré-homogénéisation du spectre après un à deux mètres de propagation libre dans le cas des hauts rendements.

En conclusion, simulations et expériences confortent le fait que le spectre XPW est relativement homogène quel que soit le régime de génération à condition de se placer à une distance convenable après le cristal (entre 1 et 2 m). Elles montrent également que la largeur spectrale "finale" atteignable est supérieure à un facteur 2 dans le cas d'un rendement de 25%. En se plaçant dans une configuration à deux cristaux après la fibre, on augmente le rendement interne XPW jusqu'à 30% et le spectre homogène final est jusqu'à 3 fois plus large que le spectre d'entrée. Ces performances exceptionnelles dans cette configuration particulière — fibre de filtrage + 1 cristal (ou 2) — font l'objet de la partie 5.3.

Propagation des différentes longueurs d'onde à haut rendement

Notre approche s'inscrit dans la lignée des travaux réalisés par Adams qui s'est intéressé au couplage spatio-temporel non-linéaire lors de l'auto-focalisation [2] puis au cas particulier de l'XPW [3]. La technique utilisée pour étudier le couplage spectro-spatial de l'XPW au niveau du cristal à bas rendement (<5%) est une méthode d'interférométrie résolue spatialement et spectralement. Cette étude permet de remettre en lumière l'importance des phénomènes liés à l'effet Kerr qui sont utiles pour la compréhension du cas à haut rendement, à savoir:

- l'auto-focalisation qui dépend d'abord du profil spatio-temporel de l'impulsion,
- la SPM qui ajoute un terme non-linéaire de phase spectrale,
- l'auto-raidissement qui déforme le profil de la SPM,
- *in fine*, la lentille (spatiale) non-linéaire présente une dépendance chromatique qui est l'image de la phase (temporelle ou spectrale) non-linéaire:

$$1/f_{NL}(\lambda) \propto \phi_{NL}(\lambda) \tag{4.1}$$

Dans [2], les auteurs ont mis en évidence cette correspondance. Dans [3], seul le cas à bas rendement, et pour une dispersion faible (cristal fin), est considéré. Les effets non-linéaires sont alors portés principalement par le fondamental. Dans ce cas, l'XPW est exempt de toute auto-action et le couplage entre la lentille nonlinéaire et la phase non-linéaire du fondamental est en quelque sorte recopié sur l'impulsion XPW. Cette dernière étant plus courte, elle ne sélectionne que la partie centrale, plus "plate", de la phase temporelle quadratique du fondamental. C'est l'illustration du filtrage temporel de l'XPW. Il se traduit dans le domaine spectral par un spectre plus homogène que celui du fondamental.



FIGURE 4.7 – Récapitulatif de la propagation de différentes longueurs d'onde du spectre XPW à haut rendement (26% avec un cristal) avec prise en compte des effets de phase d'ordres supérieurs (HOP). Les profils de l'impulsion incidente (*pompe*) en entrée et sortie de cristal sont tracés ainsi que les profils XPW à la sortie du cristal et 50 cm plus loin. A gauche, les profils XPW à la sortie du cristal pour les différentes longueurs d'onde considérées.

Dans notre cas, à haut rendement, le mécanisme devient plus complexe. Les effets mis en jeu précédemment sur le fondamental s'étendent à l'XPW. De plus, les effets croisés tels que la XPM ont également une influence plus marquée. Enfin, la "rétro-action" de l'XPW vers le fondamental ajoute une perturbation supplémentaire dont il faut tenir compte. Dès lors, on ne souhaite pas ici comprendre absolument les forces relatives des différents effets dans le cristal mais plutôt illustrer le mécanisme d'homogénéisation de la propagation libre après cristal à partir de quelques observations simples. Ainsi, on a utilisé des masques spectraux sur CP pour isoler les différentes longueurs d'onde et observer leur propagation. De cette façon, on peut obtenir une image découplant effets spatiaux et spectraux. La figure 4.7 récapitule les différentes observations faites pour S = 3,75 et un rendement de conversion de 26% avec un cristal.

On observe d'abord la déplétion du fondamental (pompe), visible sur le profil spatial en sortie de cristal. Par contre, le profil spatial de l'XPW est lui bien gaussien avec une taille $\sqrt{3}$ fois plus petite que la taille du fondamental en entrée de cristal. Cependant, à la sortie du cristal, la présence spatiale de chaque longueur d'onde du spectre XPW diffère. Ceci est dû à une auto-focalisation différente comme on l'a montré dans le cas à bas rendement pour le fondamental. En particulier, la longueur d'onde centrale à 800 nm est présente sur une plus grande étendue du faisceau. L'explication est visible dans la colonne de gauche où l'on observe un creusement du profil spatial à 800 nm similaire à celui du fondamental. La conséquence est donc une taille et une propagation différentes des longueurs d'onde XPW après le cristal. On observe que chaque longueur d'onde présente un foyer Kerr distinct dont la position après le cristal et la taille sont spécifiques. En conséquence, chaque longueur d'onde diverge différemment à partir d'un waist particulier. Dès lors, rien ne laisse *a priori* entrevoir une propagation homogène. Ce n'est d'ailleurs pas le cas tant que toutes les longueurs d'onde ne sont pas passées par leur waist. La dernière à le faire est la longueur d'onde centrale dont le waist se situe 30 cm après le cristal. Or, on observe bien à partir de cette distance du cristal que le faisceau s'est ré-homogénéisé. En particulier, entre 30 et 60 cm après le cristal, le profil spatial est quasiment homogène sur toute la tache. Même si c'est un peu moins le cas au-delà, le faisceau reste globalement homogène spectralement.

Expérimentalement, on a observé que l'homogénéité spatio-spectral de l'XPW perdurait plusieurs mètres après le cristal, sans que ce soit le cas pour le fondamental. Une mesure FROG effectuée sur toute la pupille du faisceau (cf. Fig. 6.8, Partie 6) a également permis de valider un durée de 10 fs, autrement mesuré localement par Wizzler. Afin de valider les observations de la figure 4.7, il reste à faire une expérience permettant d'isoler différentes longueurs d'onde (par exemple, avec des filtres interférentiels). Cette propagation si particulière ayant été identifiée à la fin de la thèse, elle est encore en cours d'étude. Néanmoins, on peut dire qu'une éventuelle inhomogénéité résiduelle (légère après propagation) sera gommée par la ré-amplification dans un setup double-cpa tel qu'on l'a imaginé pour l'architecture de la chaine laser en Salle Noire. Si le faisceau issu de l'XPW doit être utilisé directement, la ré-homogénéisation progressive laisse penser que le comportement au foyer sera acceptable. Cependant une vérification expérimentale est à faire.

4.2.3 Blueshift : résultats préliminaires et perspectives

Dans la partie 3.4.2, le code 1D Matlab a permis de mettre en évidence l'influence du self-steepening et de la dispersion du $\chi^{(3)}$ sur le décalage spectral systématique de l'XPW vers le bleu (*blueshift*). Cependant, un décalage persiste entre les mesures expérimentales et ce que prévoit la simulation. Les raisons *a priori* que nous avons identifiées sont les suivantes:

- 1. un faisceau fondamental inhomogène spatialement,
- 2. un mode de détection mal calibré,
- 3. une composante plasma dans l'effet,
- 4. une dépendance spectrale de l'auto-focalisation dans le cristal,

Dans nos expériences, les deux premières pistes peuvent être écartées car, d'une part, le faisceau est homogène après la fibre, et d'autre part, nous mesurons généralement les spectres avec une fibre après diffusion sur une mousse. Ainsi il est peu probable que les différentes longueurs d'onde soient couplées différemment dans le spectromètre. De plus, l'ensemble spectromètre + fibre est calibré en longueurs d'onde.

En ce qui concerne la présence d'un effet plasma, Dharmadhikari *et al.* [4–6] ont largement étudié le phenomène dans le BaF₂ en se plaçant dans le régime de génération de continuum (jusqu'à la multi-filamentation) avec une source laser de 40 fs environ à 800 nm. Leurs travaux indiquent notamment que, pour des impulsions de haute puissance (>10³ P_{cr} où $P_{cr} = \lambda_0^2/(2\pi n_0 n_2) \approx 3.3 MW$ est la puissance optique critique pour le BaF₂), l'absorption multi(6)-photonique est responsable d'un décalage du centre de masse spectral vers le bleu de plusieurs nanomètres (de 1 à 20 nm en fonction de la puissance optique). Ils ont également observé la fluorescence liée à cette absorption avec une signature spectrale marquée autour de 330 nm. Dans notre cas, il serait intéressant de mener une première expérience afin de déterminer l'existence d'une fluorescence à 330 nm. Si tel est le cas, il serait alors utile de caractériser cette fluorescence en la rapportant à la quantité de blueshift présente dans le spectre XPW et qui n'est pas encore reproduite par le code 1D. Cela permettrait de corréler l'absorption multi-photonique avec le décalage spectral vers le bleu.

Le dernier point à investiguer est la dépendance en longueur d'onde de la valeur de n_2 qui ne peut être considérée comme constante. Elle occasionne donc obligatoirement un phénomène d'auto-focalisation différent pour chaque longueur d'onde. La courbe de dispersion du n_2 indique que l'auto-focalisation est plus forte pour les basses longueurs d'onde, ce qui va dans le sens d'un blueshift.

Les limites des deux codes précédents sont, d'une part, l'absence d'effets spatiaux transverses dans le code 1D, et d'autre part, l'absence de dispersion du n₂ dans le code 3D. La première idée, et la plus simple à mettre en place, est d'incorporer un terme pour prendre en compte les différences d'autofocalisation des longueurs d'onde dans le code 1D. Cela se traduit par l'apparition d'un facteur correctif à chaque pas de la méthode split-step. Ce facteur, fonction de la longueur d'onde, agit sur l'intensité des champs incident et XPW. Concrètement, lors d'un pas, la valeur du n₂ donne la lentille de Kerr équivalente pour chaque longueur d'onde, ce qui se traduit par une augmentation de l'intensité qui varie en fonction de la longueur d'onde au pas suivant. Comme on l'a vu dans la section précédente, la relation entre la valeur de n₂ (en m²/W) et la lentille de Kerr f_{NL} à la traversée d'un milieu fin d'épaisseur L est:

$$\frac{1}{f_{NL}} = \frac{4n_2IL}{\omega^2} \tag{4.2}$$

où ω est le waist de l'impulsion et I est l'intensité en W/cm². L'implémentation de cet élément dans le code 1D est actuellement en cours.

4.3 Etude du filtrage XPW dans le régime d'impulsions de quelques cycles optiques

On vient de voir que la technique XPW pouvait permettre de générer des impulsions ultracourtes possédant un spectre gaussien et spatialement homogènes. On s'intéresse maintenant à la capacité de filtrage de l'effet XPW dans le régime du cycle optique où la qualité temporelle va de paire avec la qualité spectrale. Cette partie en donne une illustration remarquable en s'appuyant à la fois sur des résultats expérimentaux obtenus au Laboratoire Charles Fabry (LCF) de l'Institut d'Optique Graduate School sur l'injecteur ultra-court pour le laser de puissance ILE [7] et sur des résultats de simulation qui permettent une quantification fine de l'influence des différents paramètres. L'expérience est décrite en détails dans la partie 5.2 consacrée aux injecteurs de chaine de puissance à très haut contraste basés sur la technique XPW. Je vais d'abord résumer les résultats obtenus puis je donnerai une application possible au diagnostic de compression in-situ d'impulsions ultra-brèves pour des expériences d'interaction laser-plasma.

4.3.1 Influence du chirp: détermination de la compression optimale

Pour valider notre modèle dans un régime qui n'avait pas été étudié jusqu'alors, on compare nos calculs avec les expériences que l'on a réalisées dans le régime du cycle optique [7]. Pour les simulations, l'impulsion initiale de 5 fs est définie par son spectre et sa phase spectrale, obtenue par mesure FROG. Le cristal non linéaire est un BaF₂ de 1 mm en h-cut [011]. On choisit S = 5 en accord avec l'efficacité mesurée expérimentalement. On fait ensuite varier le chirp résiduel de l'impulsion initiale pour simuler l'insertion progressive de wedges (coins de verre). On a également pris en compte la phase d'ordre trois mais, dans la gamme de variation accessible avec les wedges, il s'est avéré que celle-ci n'a pas de réelle influence. On s'est donc concentré sur le chirp, dont on a étudié l'influence sur l'évolution spectrale de l'XPW. Les résultats sont regroupés sur la figure 4.8. On remarque que l'accord



FIGURE 4.8 – Evolution du spectre XPW en fonction du chirp dans le régime "few-cycle": résultats expérimentaux (colonne de gauche) et numé-riques (colonne de droite).

est bon entre les données expérimentales (colonne de gauche) et celles issues des simulations (colonne de droite). Partant d'un chirp excessivement négatif, l'ajout de chirp positif conduit à l'élargissement progressif du spectre XPW accompagné d'une homogénisation de la forme qui se rapproche d'une gaussienne, marquée par des modulations résiduelles. Une fois passé l'optimum, le spectre continue de s'élargir, mais au détriment de l'allure gaussienne. La forme devient plus carrée et les modulations s'accentuent. Le même type de comportement avait déjà été noté par Jullien *et al.* [8].

Afin de quantifier plus finement l'influence du chirp, on extrait trois valeurs caractéristiques des données expérimentales et théoriques: efficacité XPW, élargissement spectral XPW et écart à la gaussienne du spectre XPW. La figure 4.9 montre l'évolution de ces valeurs avec le chirp. La colonne de gauche résume les données expérimentales et celle de droite les résultats théoriques. Les tendances expérimentales et théoriques sont très proches l'une de l'autre.

Dans les deux cas, l'efficacité maximale est proche de 15% et reste supérieure à 10% sur une plage de 40 fs². L'efficacité est presque constante pour de faibles variations de chirp. Par contre, la bande spectrale de sortie a une sensibilité plus importante au chirp initial: le spectre XPW continue à s'élargir lorsque l'on ajoute du chirp positif. Comme on l'a déjà mentionné, partant d'un chirp négatif, la qualité gaussienne du spectre XPW s'améliore d'abord jusqu'à un optimum puis se dégrade si l'on continue à augmenter le chirp positif, pour donner une forme



FIGURE 4.9 – Rendement, élargissement spectral et écart à la gaussienne en fonction du chirp : définition d'un critère de compression optimale pour les impulsions "few-cycle" à partir de l'effet XPW.

plus carrée. Le comportement spectral de l'XPW indique clairement la meilleure configuration de compression pour obtenir le spectre le plus propre. Cette valeur optimale de chirp donne l'élargissement spectral maximum tout en conservant une bonne qualité gaussienne. Ce critère indique expérimentalement et théoriquement une zone de compression optimale précise (4 fs², zone grisée de la figure 4.9) et robuste aux variations d'énergie comme le montre la colonne de droite où l'on a tracé trois courbes pour une valeur d'énergie E0 arbitraire et E0 \pm 7%. On note, au passage, que l'efficacité XPW n'est pas un critère aussi précis car sa courbe présente un relatif plateau autour de la meilleure compression et une plus grande sensibilité aux fluctuations d'énergie comme on s'y attend pour un effet non linéaire du troisième ordre. Dans ces conditions (1 mm de BaF₂), la meilleure compression (léger chirp négatif, \approx -25 fs²) permet de préserver la bande spectrale initiale et fournit une forme spectrale gaussienne.

Le processus XPW dans le régime du cycle optique peut donc servir d'outil précis de diagnostic in-situ de compression d'impulsion de 5 fs à 800 nm. Le principe de cette technique est évoqué la section à suivre.

4.3.2 Diagnostic in-situ de la compression

On a démontré dans la section 4.3.1 que le comportement spectral de l'XPW dans le régime du cycle optique pouvait être utilisé comme indicateur local de la compression des impulsions. L'avantage d'un tel outil concerne l'interaction lasermatière dans le régime du cycle optique. En effet, comme les impulsions de quelques femtosecondes subissent un fort élargissement temporel lors de la propagation dans l'air ou à travers les fenêtres fines des enceintes, il est important de pouvoir confirmer que l'impulsion est optimalement comprimée le plus proche possible de la cible d'interaction. Les appareils de mesure classiques tels que le FROG ou le SPIDER, permettent d'indiquer la durée la plus courte accessible mais leur propre dispersion et la propagation doivent être précisément prise en compte. De plus, ces appareils ne sont en général pas placés au plus proche de l'expérience, cette dernière étant typiquement sous vide.

Le set-up de diagnostic basé sur un cristal XPW est quant à lui minimaliste puisqu'il ne consiste qu'en un cristal suivi d'un polariseur pour discriminer la polarisation croisée et peut donc être implanté à n'importe quel endroit en pratique. Il est donc très simple, peu encombrant et utilisable sous vide. De plus, on a vu que le critère spectral XPW proposé, i.e. la compression de l'impulsion conduisant au spectre le plus large tout en conservant une forme gaussienne est un critère précis et qui peut être facilement déterminé expérimentalement.

On s'est intéressé précédemment à la sensibilité de ce critère en fonction de la phase d'ordre deux et sa robustesse face aux fluctuations d'énergie de la source. Pour aller plus loin, on étudie comment la compression optimale est affectée par des résiduels de phase d'ordres supérieurs. On va pour cela s'appuyer sur les résultats de la figure 4.10. Elle regroupe dans sa colonne de gauche une évaluation de la sensibilité des différents critères utilisés à la variation de la composante de phase d'ordre trois. On voit que si cette phase est négative $(-50 \, \text{fs}^3)$, un spectre gaussien propre présente une largeur spectrale moindre. Si cet ordre de phase est positif $(+50 \, \text{fs}^3)$, la compression optimale est décalé d'environ $-10 \, \text{fs}^2$ mais l'écart à la gaussienne se traduit par une asymétrie spectrale comme le montre la figure 4.10. On peut comparer le spectre en bas à gauche avec celui de la colonne de simulation à droite pour un chirp identique ($\phi^{(2)} = -30 \,\mathrm{fs}^2$) mais un $\phi^{(3)}$ nul. On observe le creusement du spectre pour un $\phi^{(3)}$ de +50 fs³. Un faible résiduel de phase d'ordre trois est donc aisément détectable. Pour identifier les effets de phase d'ordres plus élevés, on a tracé sur les spectres théoriques de la figure 4.10 une ligne noire indiquant le spectre XPW calculé si la phase d'entrée est parfaitement plate. La distribution spectrale obtenue est alors plus lisse. Les faibles modulations résiduelles sur le spectre XPW sont donc la conséquence de la phase d'ordres élevés, comme c'est également le cas pour des impulsions plus longues. La forme globale



FIGURE 4.10 – Effets de la phase spectrale d'ordres supérieurs sur les caractéristiques spectrales de la génération XPW dans le régime du cycle optique. (a) Sensibilité des paramètres (efficacité, largeur spectrale et écart à la gaussienne) lors d'une variation de la phase d'ordre trois de \pm 50 fs³ (simulation). (b) Exemple de distortion du spectre pour un chirp de -30 fs² et un $\phi^{(3)}$ de +50 fs³. (c),(d) Comparaison des spectres expérimentaux et théoriques pour différentes valeurs de chirp (courbe noire: spectres XPW obtenus en supposant une phase initiale plate dans les simulations). (e) Spectre en sortie de fibre creuse et phase spectrale associée (en pointillés) reconstruite à partir d'une mesure FROG.

du spectre XPW permet d'apprécier la qualité de la compression de l'impulsion d'entrée.

La connaissance fine des effets de phase permet donc une évaluation précise de la zone de compression optimale pour une impulsion donnée. On a en outre démontré que le double critère spectral (largeur et qualité) était robuste aux fluctuations d'énergie principalement. Le dernier point qu'il est intéressant d'investiguer avant d'implanter un tel système de diagnostique sous vide est l'influence de la dispersion du cristal. Comme on va le voir dans le point suivant (section 4.3.3), plus un cristal est fin, plus la mesure est précise. Par exemple, pour un cristal de 0,5 mm de BaF₂, seul un décalage de -7 fs² pour des impulsions de 5 fs doit être pris en compte pour compenser la dispersion du cristal. C'est l'unique source d'erreur de cette méthode et elle est très faible.



4.3.3 Influence de la longueur de cristal

FIGURE 4.11 – Rendement XPW, largeur spectrale (la ligne discontinue indique la largeur du spectre en sortie de fibre creuse) et écart à la gaussienne du spectre XPW en fonction du chirp résiduel pour un cristal de 1 mm (rouge) et 0.5 mm (bleu) de BaF₂. Les domaines hachurés représentent la zone de meilleure compression pour chaque cas. La colonne de gauche résume les résultats expérimentaux et celle de droite les valeurs théoriques.

On a déjà vu pour des impulsions "longues" (25 fs et plus) que la dispersion du cristal avait une influence sur la génération XPW. En particulier, l'effet est optimisé lorsque la phase initiale pré-compense la dispersion du cristal et que l'impulsion incidente est comprimée au centre du cristal. Dans le régime du cycle optique, cet effet est naturellement exacerbé. C'est pourquoi l'on souhaite comparer l'efficacité XPW et le comportement spectral pour des cristaux de 0,5 et 1 mm de BaF₂. Les résultats expérimentaux et théoriques sont affichés sur la figure 4.11. On remarque un bon accord entre les deux tendances. En particulier, l'efficacité maximale subit une forte diminution dans chaque cas lorsque l'on passe du cristal de 1 mm à celui de 0,5 mm ainsi qu'un décalage positif de quelques fs² du chirp maximisant l'efficacité. Dans le même temps, la zone de meilleure compression est décalée de +12 à +15 fs² afin de compenser une plus faible dispersion, ce qui est cohérent avec une impulsion incidente comprimée au centre de chaque cristal. L'utilisation

d'un cristal plus fin permet un léger élargissement du spectre tout en conservant une bonne qualité gaussienne mais au détriment de l'efficacité. Le chirp résiduel correspondant à la meilleure compression est très proche d'une impulsion d'entrée comprimée (-7 fs^2), ce qui fait des cristaux fins un outil plus précis de diagnostic de la compression.

4.3.4 Effets dominants du mécanisme de filtrage



FIGURE 4.12 – Spectre après la fibre creuse (HCF) (zone grisée) et spectre XPW calculé (en rouge) pour un cristal de BaF_2 de 0.1 mm, en orientation [011], à bas rendement. Le chirp initial vaut 0 fs².

Afin de déterminer les effets dominants du filtrage des impulsions de quelques cycles optiques, on considère d'abord l'effet sur l'XPW uniquement. On s'intéresse au cas simple où la dispersion peut être négligée (cristal de 0,1 mm de BaF_2) et les effets non linéaires sont faibles. Dans ce cas, le spectre XPW est lisse et gaussien mais aussi plus large que le spectre d'entrée (Fig. 4.12). Il correspond à une impulsion plus courte, typique de la réponse cubique de l'intensité temporelle dans le procédé. Ceci décrit uniquement le cas idéal. Pour obtenir une véritable conversion XPW, il est nécessaire d'utiliser un cristal plus épais. Le chirp résiduel doit donc être choisi comme un compromis entre la dispersion du cristal et les non-linéarités impliquées dans le phénomène. Dans la section précédente, on a vu que pour un cristal de 1 mm, le chirp résiduel optimal était -25 fs² pour obtenir une compression de l'impulsion d'entrée au centre du cristal. La figure 4.13 permet d'avoir une compréhension plus globale de l'équilibre complexe entre dispersion et SPM lors de la génération XPW dans ce régime particulier. On peut voir comment se construit le signal XPW (et se détruit le fondamental) au fur et à mesure de la propagation dans le cristal. Au début de la propagation, l'XPW exhibe un spectre carré ayant la



FIGURE 4.13 – Mécanisme de filtrage d'impulsions few-cycle par XPW. *Colonne de gauche :* Récapitulatif des paramètres (efficacité, largeur spectrale et écart à la gaussienne) de l'onde XPW en fonction de l'énergie incidente avec un cristal de 1 mm. *Colonne de droite :* Récapitulatif de ces mêmes paramètres en fonction de la distance parcourue dans un cristal de 1 mm. En pointillés, la largeur du spectre fondamental initial. *Colonnes centrales :* Calcul dans les conditions expérimentales de l'évolution spectrale de l'impulsion fondamentale (zone grisée) et du signal XPW (ligne rouge) au cours de la propagation suivant z dans un cristal de BaF₂ de 1 mm. Pour tous les cas, le chirp initial est de -25 fs².

même largeur aux pieds que l'impulsion fondamentale. Progressivement le spectre de cette dernière se réduit, entrainant également la diminution de la largeur spectrale de l'XPW comme on peut l'observer sur la fenêtre du milieu dans la colonne de droite. Cette réduction s'accompagne néanmoins de l'amélioration de la forme du spectre, qui se rapproche d'une gaussienne. Arrivé à mi-cristal, l'impulsion initiale est comprimée (car la dispersion du cristal a compensé le pré-chirp de -25 fs²), le rendement est donc correct et l'élargissement symétrique. Sur les derniers dizièmes de millimètre, l'impulsion fondamentale subit une auto-modulation de phase qui élargit son spectre aux pieds. Cet élargissement se transfère à nouveau vers l'XPW qui regagne une largeur identique ou presque à celle de l'impulsion initiale mais avec une forme gaussienne. Pour des impulsions "few-cycle", cette situation est le meilleur compromis en termes de qualité spectrale, la dispersion du milieu rendant le gain de bande spectrale impossible.

4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, on s'est intéressé à l'étude de la génération XPW dans les régimes extrêmes : très haut rendement et/ou impulsions « few-cycle ». Ces résultats ont été rendus possibles par la concomittance des méthodes numériques développées (Chapitre 3) et des implémentations expérimentales réalisées (Chapitre 5). En résumé :

- 1. à (très) haut rendement:
 - influence de la SPM de l'impulsion fondamentale sur le sur-élargissement XPW (FWHM_{XPW} > 1,7 FWHM_{fondamental});
 - influence de la phase spectrale sur le rendement et l'élargissement;
 - ré-homogénisation spatio-spectrale au cours de la propagation;
 - explication partielle du blueshift.

Des pistes sont en cours d'étude pour parfaire l'explication du blueshift. On a isolé la probable influence de la dispersion de l'indice non-linéaire sur l'autofocalisation. Son impact n'est pour l'instant pris en compte par aucun des deux codes. L'effort va donc se porter sur l'implémentation de ce paramètre dans les simulations.

- 2. dans le régime du cycle optique:
 - influence de la phase spectrale;
 - influence de la dispersion du cristal.

Dans le régime du cycle optique, la dispersion du cristal domine les autres effets et empêche l'élargissement spectral. Néanmoins, le lissage spectral reste efficace ce qui permet 1) d'envisager l'utilisation de l'XPW pour le diagnostic in-situ de compression d'impulsions dans le régime du cycle optique, et 2) de filtrer spectrotemporellement des impulsions ultra-brèves comme le démontre le chapitre suivant.

Bibliographie

- Canova, L.; Albert, O.; Forget, N.; Mercier, B.; Kourtev, S.; Minkovski, N.; Saltiel, S. and Lopez-Martens, R. "Influence of spectral phase on crosspolarized wave generation with short femtosecond pulses," Applied Physics B: Lasers and Optics, 93, 443-453 (2008). 68, 73
- [2] D. Adams, T. Planchon, A. Hrin, J. Squier, and C. Durfee, "Characterization of coupled nonlinear spatiospectral phase following an ultrafast self-focusing interaction," Opt. Lett. 34, 1294-1296 (2009). :OL2009
- D. E. Adams, T. A. Planchon, J. A. Squier and C. G. Durfee, "Spatiotemporal dynamics of cross-polarized wave generation," Opt. Lett., 2010, 35, 1115-1117 (2010). :OL2010
- [4] Dharmadhikari, A. K., Rajgara, F. A., and Mathur, D., "Systematic study of highly efficient white light generation in transparent materials using intense femtosecond laser pulses," Appl. Phys. B 80, 61–66 (2005). :2005
- [5] Dharmadhikari, A. K., Rajgara, F. A., and Mathur, D., "Plasma effects and the modulation of white light spectra in the propagation of ultrashort, highpower laser pulses in barium fluoride," Appl. Phys. B 82, 575–583 (2006). :2006
- [6] Dharmadhikari, A. K., Dharmadhikari, J. A., and Mathur, D., "Visualization of focusing-refocusing cycles during filamentation in BaF₂," Appl. Phys. B 94, 259–263 (2009). :2009APB
- [7] A. Jullien, X. Chen, A. Ricci, J. P. Rousseau, R. Lopez-Martens, L. Ramirez, D. Papadopoulos, A. Pellegrina, F. Druon and P. Georges, "High-fidelity frontend for high-power, high temporal quality few-cycle lasers," Appl. Phys. B, 2010, 102, 769-774. :2010
- [8] Jullien, A.; Durfee, C.; Trisorio, A.; Canova, L.; Rousseau, J.-P.; Mercier, B.; Antonucci, L.; Chériaux, G.; Albert, O. and Lopez-Martens, R. "Nonlinear spectral cleaning of few-cycle pulses via cross-polarized wave (XPW) generation," Applied Physics B, 2009, 96, 293-299. 83