

Amélioration du contraste

Théorie et modélisation de l'effet XPW

3.1 Introduction

L'objectif de cette thèse vis-à-vis de la technique de génération d'onde de polarisation croisée ("XPW" pour *Cross-Polarized Wave*) a été double:

1. D'une part, mettre au point un schéma expérimental permettant le filtrage efficace (rendement de conversion $> 25\%$) d'impulsions possédant une énergie supérieure au millijoule. Cet objectif répond à la nécessité d'améliorer le contraste temporel de la chaîne existante en Salle Noire (10^8) afin d'accéder au régime relativiste de génération d'harmoniques sur cible solide et *in fine* générer un rayonnement attoseconde plus intense;
2. D'autre part, rendre compte théoriquement des effets observés lors de la génération XPW, en particulier dans les régimes "extrêmes" d'impulsions de quelques cycles optiques et de très hauts rendements. Dans ces régimes-là, les modèles proposés jusqu'à présent ne donnent qu'une représentation imparfaite du processus. En particulier, s'ils rendent généralement bien compte de son efficacité, leur description des effets sur le spectre est incomplète. De plus, aucune modélisation 3D n'a été proposée jusqu'ici.

Compte-tenu des nombreux axes de recherche abordés, l'étude de l'XPW se décompose en trois grands ensembles dans ce mémoire:

- Ce chapitre s'attache tout d'abord à rappeler les enjeux et solutions à la question du contraste temporel des impulsions femtosecondes (partie 3.2). Puis je

présente les bases de la technique XPW ainsi qu'une revue de l'état de l'art au début de ma thèse (partie 3.3). Ensuite je détaille la théorie et les modèles numériques 1D puis 3D (partie 3.4) qui nous ont permis de reproduire fidèlement un certain nombre de phénomènes. En particulier, une application du code 1D a été la détermination des caractéristiques non-linéaires relatives à l'XPW de cristaux de Diamant (section 3.4.2). La modélisation 3D à l'aide du logiciel CommodPro dans lequel l'effet XPW a été implémenté par nos soins a quant à elle permis l'étude des effets spatiaux (section 3.4.3).

- Le chapitre 4 s'appuie sur ces modèles et apporte un certain nombre de réponses quant aux conditions optimales de génération dans les régimes extrêmes. Les données théoriques sont renforcées par les résultats obtenus expérimentalement. Ensemble, ils permettent d'observer clairement quels mécanismes sont responsables de l'élargissement spectral et expliquent en partie le décalage systématique vers le bleu du spectre XPW par rapport au spectre fondamental. La simulation des effets spatiaux a également permis de mieux comprendre la structure spatiale des faisceaux après cristal et tout au long de leur propagation ainsi que le couplage avec le profil spectral.
- Le chapitre 5, qui clôture l'étude de l'XPW, reprend les différentes réalisations expérimentales qui ont émaillé cette thèse. Une première partie présente les injecteurs ultra-courts à haut contraste pour des chaînes de puissance. La seconde partie est consacrée au dernier venu des dispositifs expérimentaux dont le développement a été réalisé pendant le courant de la thèse. Il permet pour la première fois d'obtenir des rendements de conversion proche de la limite théorique, dans le régime de saturation de l'effet (rendement de conversion proche de 35%) et ce, quelles que soient les énergies d'entrée de filtre que nous avons eu l'occasion de tester (jusqu'à plus de 10 mJ).

3.2 Méthodes d'amélioration du contraste temporel d'une impulsion laser

Améliorer le contraste temporel d'impulsions laser femtosecondes intenses est crucial pour accéder au régime d'interaction laser-plasma à très haute intensité (sur cible solide) [1–5]. Une distinction est généralement admise entre le contraste incohérent, dû à l'amplification de l'émission spontanée (ASE) et présent sur une plage temporelle s'étendant au-delà de la nanoseconde, et le contraste cohérent, proche du pic (échelle picoseconde) et dont l'origine provient de la compression imparfaite des impulsions. Les sources laser femtosecondes commerciales basées sur l'amplification à dérive de fréquences (CPA) fournissent actuellement un contraste ASE de 10^8 lorsqu'aucune méthode d'amélioration du contraste n'est utilisée. L'ionisation

de la cible intervenant dès 10^{12} W/cm^2 , on comprend bien dès lors que ce niveau de contraste est insuffisant pour des expériences où l'intensité crête sur cible dépasse 10^{20} W/cm^2 . Il est donc nécessaire d'implémenter sur ces chaînes un outil permettant l'amélioration du contraste d'au moins 3 ou 4 ordres de grandeur.

Parmi les méthodes existantes, un certain nombre sont limitées à l'amélioration du contraste incohérent. C'est le cas en particulier des méthodes électro-optiques telles que les cellules de Pockels dont le temps d'ouverture et de fermeture ne permet pas aujourd'hui d'agir sur le contraste en-dessous de la centaine de picosecondes. A ma connaissance les alimentations haute-tension et les contrôleurs électroniques fournis par FID GmbH [6] associés aux cellules de Pockels de Leysop Ltd [7] sont les seules à fournir des temps d'ouverture de l'ordre de la centaine de picosecondes tout en assurant une amélioration de contraste de 3 ordres de grandeur au mieux [13]. L'amélioration du contraste sur des temps plus courts ne peut se faire que par des méthodes purement optiques non-linéaires. Sachant que la dégradation du contraste très tôt dans la chaîne est le fait du pré-amplificateur en raison d'un niveau d'amplification de l'ordre de 1000, les différentes méthodes d'amélioration peuvent être répertoriées selon leur point d'implantation dans la chaîne. Ainsi, on choisira l'absorbant saturable [8] ou l'amplification paramétrique optique [à dérive de fréquences] (O[CP]PA) [9–12] pour agir dès le pré-amplificateur, l'interféromètre non-linéaire de Sagnac [14], la rotation non linéaire de polarisation elliptique (NER) dans les milieux isotropes [15–17] ou la génération de polarisation croisée (XPW) [18, 19] pour intervenir après le pré-amplificateur et la génération de seconde harmonique (SHG) [20, 21] ou les miroirs plasma (PM) [22–24] pour nettoyer le contraste temporel en fin de chaîne. En combinant ces différentes méthodes, un contraste supérieur à 10^{12} devient accessible à l'échelle de quelques dizaines de picosecondes. Aujourd'hui, les techniques les plus répandues sont le OPCPA, les miroirs plasma et l'XPW.

Dans un OP(CP)A, le contraste est dominé par la fluorescence paramétrique due à l'impulsion pompe. L'utilisation de pompes de durée picoseconde a permis d'obtenir un contraste de 10^{10} à quelques dizaines de picosecondes du pic principal de l'impulsion dans les étages de pré-amplification. Cependant cette méthode a une efficacité de l'ordre de 10% et requiert l'amplification des impulsions produites pour atteindre les niveaux d'intensité recherchés. De plus, l'OP(CP)A représente un changement radical de technologie laser par rapport à la technique CPA traditionnelle. En conséquence, son implémentation dans notre salle n'aurait été possible qu'au prix d'une modification complète de l'architecture laser pré-existante. La seconde option est le miroir plasma. L'effet repose sur le changement de réflectivité d'un matériau diélectrique lorsque ses électrons de surface sont chauffés en un plasma par l'intensité laser incidente de l'ordre de 10^{12} W/cm^2 . Initialement, la surface diélectrique transmet l'impulsion jusqu'à ce que la densité électronique

critique soit atteinte et que le miroir plasma soit "activé", c'est-à-dire que la surface du plasma réfléchisse l'impulsion laser incidente. Le contrôle fin du temps d'activation du miroir plasma permet l'amélioration du contraste à des temps de l'ordre de la picoseconde par rapport au pic principal. Dans une configuration en double miroir plasma, l'amélioration du contraste peut atteindre quatre ordres de grandeur avec une transmission de l'énergie d'environ 50%. Cette technique peut donc être utilisée en fin de chaîne laser, juste avant la cible d'interaction. La principale difficulté de mise en oeuvre est le rafraîchissement de la surface du diélectrique en accord avec le taux de répétition du laser tout en maintenant la stabilité de l'interaction. Cette implémentation peut devenir d'autant plus complexe que le même travail est nécessaire pour la cible elle-même. Pour ces raisons, le miroir plasma est une option que nous laissons ouverte pour la suite si une amélioration supplémentaire du contraste se révèle nécessaire.

Néanmoins la technique que nous avons décidé de privilégier dans notre système laser est celle de l'XPW. Bien qu'elle soit moins efficace que la SHG (conversion maximum de 35% contre 50-70%), elle présente l'avantage de conserver la longueur d'onde, de pouvoir être positionné entre deux CPA pour restaurer un niveau d'énergie élevé après le filtre. De plus, la SHG amène la longueur d'onde dans l'UV, ce qui est contraire aux lois d'échelle pour la génération d'harmoniques sur cible solide. Outre la comparaison avec la SHG, le choix de l'XPW s'explique par au moins quatre raisons que je liste ici. D'abord, un schéma double CPA avec filtre XPW a déjà été démontré [25, 26] pour améliorer le contraste de plus de trois ordres de grandeur. De plus, la mise au point d'un nouveau schéma XPW avec guidage préalable de l'impulsion dans une fibre creuse a permis d'élargir les possibilités d'implantation du filtre XPW, notamment au niveau multi-millijoule avec de très bonnes efficacités. Cette méthode ne doit pas être confondue avec la technique NER dans les fibres remplies de gaz et notamment le travail de Gaeta *et al.* [27]. L'XPW bénéficie également d'autres avantages, inhérents à l'effet, tels que l'élargissement spectral et l'amélioration de la phase spectrale. Cela pourrait nous permettre d'obtenir des impulsions amplifiées de durée inférieure à 25 fs et donc d'accéder après la technique de la fibre creuse à des impulsions comprimées de durée inférieure à 5 fs. Enfin, l'implémentation d'un tel filtre XPW, sans être exclusive, est plus simple et plus versatile, spécialement au kHz, que des miroirs plasma en fin de chaîne, dans une enceinte sous vide. La dernière raison tient au fait que le LOA, et particulièrement le groupe PCO, détient une expertise et un savoir-faire en matière de génération XPW.

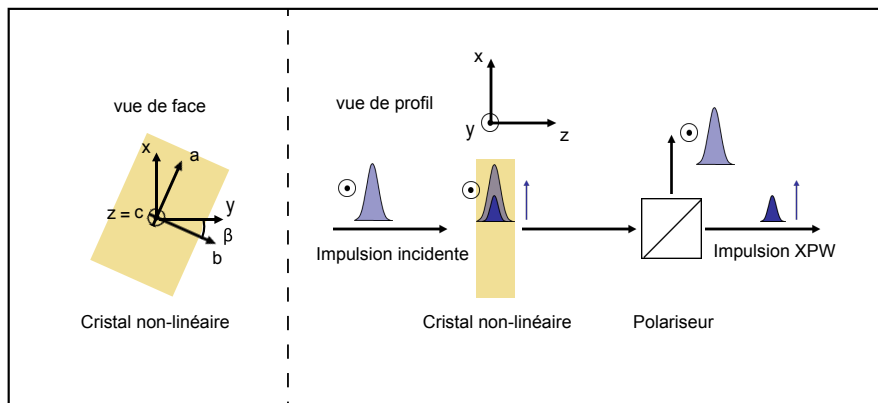


FIGURE 3.1 – Principe de base de la génération de polarisation croisée (XPW). Repère (x,y,z) suivant la polarisation de l'onde XPW (x), du laser incident (y) et de la direction de propagation (z). Repère (a,b,c) suivant les axes cristallographiques. Angle β entre les axes cristallins et les axes de polarisation.

3.3 Etat de l'art et bases de la technique XPW

L'effet XPW est un effet non-linéaire du troisième ordre ($I_{XPW} \propto I_{Laser}^3$) de mélange à quatre ondes dégénéré et achromatique dont le principe est décrit par la Figure 3.1. Une onde polarisée linéaire produit dans un cristal non-linéaire une onde de polarisation croisée. Le phénomène ne se produit efficacement que pour les parties de l'onde incidente suffisamment intenses (de l'ordre de 10^{12} W/cm²). Autrement dit, le piédestal et les pré-impulsions de l'onde incidente ne sont pas convertis. Un polariseur "croisé" permet alors de ne sélectionner que l'onde XPW. En pratique, c'est le taux d'extinction des polariseurs croisés qui limite l'amélioration du contraste à environ quatre ordres de grandeur. La deuxième conséquence de ce phénomène non-linéaire d'ordre trois est, en première approximation, la réduction de la durée de l'impulsion XPW d'un facteur $\sqrt{3}$ par rapport à l'impulsion laser incidente (élargissement spectral du même facteur $\sqrt{3}$). L'XPW présente l'avantage d'être un processus électronique instantané (par rapport à l'échelle femtoseconde des impulsions laser) et dégénéré en fréquence. Il ne nécessite donc pas d'accord de phase. De plus, il se produit dans des cristaux cubiques où l'accord de vitesse de groupe entre les deux polarisations est automatique. Il est donc particulièrement adapté à l'amélioration du contraste temporel d'impulsions femtosecondes.

Si plusieurs matériaux sont candidats pour l'XPW, tels que le Fluorure de Lithium (LiF) ou le Fluorure de Calcium (CaF₂), le matériau le plus communément utilisé est le Fluorure de Baryum (BaF₂) avec l'orientation cristallographique z

([001]) ou holographique ([011]). Cette dernière est la plus efficace et permet théoriquement d'atteindre des rendements de conversion de l'ordre de 35% et un facteur de raccourcissement temporel de $\sqrt{3}$ correspondant à un processus non-linéaire d'ordre trois [28]. En conséquence, la transmission maximale en termes de puissance crête est de l'ordre de 60%.

3.3.1 Etat de l'art

Les premières travaux de Zheludev [29, 30] à propos de l'influence de l'anisotropie du tenseur $\chi^{(3)}$ sur les changements d'état de polarisation dans les cristaux datent des années 80. Elles furent complétées par les études théoriques d'Hutchings [31, 32] au cours des années 90. Le terme "XPW" n'est cependant apparu qu'à partir des travaux expérimentaux et théoriques de Saltiel et Etchepare [33–35] dans les années 2000. Ces dix dernières années, la communauté utilisatrice de l'XPW s'est élargie au fur et à mesure que ses applications se diversifiaient. D'abord utilisée pour nettoyer et raccourcir temporellement une impulsion laser, notamment dans les architectures double-CPA et pour améliorer le contraste des chaînes 100 TW et PW [5, 36–39], la technique a vu de nouvelles applications émerger telles que le nettoyage spectral d'impulsion de quelques cycles optiques [40, 41], leur caractérisation temporelle [42, 43] et la mise en forme temporelle de laser fibré à haut taux de répétition [44]. Des industriels laser tels que Thales [45] et Amplitude Technologies [46] proposent également des chaînes commerciales qui incluent un filtre XPW.

Malgré cet essor de la technique, au début de ma thèse, l'énergie d'entrée du filtre XPW était limitée à quelques centaines de microjoules pour obtenir une conversion efficace. Ainsi, l'énergie de sortie était à son tour limitée à moins d'une centaine de microjoules. Récemment, l'amélioration de l'efficacité de conversion [28, 47, 48] et l'augmentation de l'énergie d'entrée jusqu'au niveau multi-millijoule [49] ont été réalisés avec succès. Cependant parvenir à réaliser ces deux conditions en même temps est resté un défi qui n'a été relevé qu'au cours de la thèse [50].

Dans les premières configurations expérimentales, le cristal XPW était placé au foyer d'une lentille ou d'un miroir afin d'optimiser le profil spatial au niveau du cristal. La qualité spatiale du faisceau incident est en effet primordial pour une bonne efficacité de conversion. Dans cette configuration, l'efficacité avec un cristal est comprise entre 10% et 15% [48]. Ceci est dû à une saturation prématurée de l'effet à cause de l'autofocalisation du faisceau fondamental dans le cristal. De plus, augmenter l'énergie d'entrée dans un tel schéma à un cristal requiert des longueurs de focalisation allant jusqu'à plusieurs dizaines de mètres. Une option alternative consiste en le positionnement du cristal hors foyer. Cependant, la qualité du faisceau est en général moins bonne et les rendements de conversion interne

ne dépassent la barre des 15%.

Une manière élégante et efficace d'augmenter l'efficacité XPW est d'utiliser un schéma à deux cristaux [48, 51]. Dans ce schéma, le premier cristal est placé au foyer d'un système de focalisation et le second à une distance donnée après le foyer Kerr dû à l'autofocalisation dans le premier cristal. L'efficacité maximale dans ce schéma peut s'élever à 30%. Encore une fois, la distance entre les deux cristaux augmente avec l'énergie d'entrée et limite en pratique la mise en place de ce schéma au-delà de quelques centaines de microjoules. Pour filtrer efficacement des impulsions d'énergie plus élevée avec un seul cristal, les efforts se sont alors concentrés sur l'amélioration de la qualité spatiale hors foyer de l'impulsion incidente. Une technique de mise en forme spatiale, permettant d'obtenir un profil top-hat, couplée à un filtrage par iris a permis d'obtenir de bonnes efficacités au niveau sub-millijoule [47, 59] mais n'a pas été démontré au-delà. L'utilisation d'un iris seul au niveau multi-millijoule a conduit à des efficacités inférieures de l'ordre de 10% [49].

En 2010, lors d'expériences en collaboration avec le Laboratoire Charles Fabry (LCF) de l'Institut d'Optique Graduate School (IOGS), nous avons proposé un schéma basé sur le filtrage par fibre creuse de l'impulsion incidente avant le cristal XPW [50]. Cette méthode a permis d'obtenir des efficacités internes de l'ordre de 35% avec des cristaux de BaF₂, proches du maximum théorique. Nous avons également démontré que ce schéma pouvait être utilisable avec des énergies de plus de 10 mJ tout en donnant d'excellents rendements [52]. Le schéma sera décrit en détails dans le chapitre 5, partie 5.3.

3.3.2 Bases théoriques

L'effet XPW est un processus dégénéré de mélange à quatre ondes qui repose sur le tenseur de non-linéarité d'ordre trois d'un cristal donné, $[\chi^{(3)}]$, et en particulier de son anisotropie, σ , définie par:

$$\sigma = \frac{\chi_{xxxx}^{(3)} - 2\chi_{xyyx}^{(3)} - \chi_{xxyy}^{(3)}}{\chi_{xxxx}^{(3)}} \quad (3.1)$$

L'interaction à haute intensité d'une onde incidente (champ A), polarisée linéairement, avec le cristal engendre la génération d'une onde de polarisation orthogonale (champ B). Le phénomène est en première approximation décrit par l'ensemble d'équations couplées définies par l'équation 3.2 où l'on a décomposé le terme de droite de manière à faire apparaître le terme dominant dans chaque équation accompagné d'un terme négligeable à bas rendement, proportionnel au champ

B, multiplié par une fonction f ou g , dépendant de A et B.

$$\begin{cases} -i\frac{\partial A}{\partial z} = \gamma_1 |A|^2 A + f(A, B) \times B \\ -i\frac{\partial B}{\partial z} = \gamma_2 |A|^2 A + g(A, B) \times B \end{cases} \quad (3.2)$$

Dans ces équations, les coefficients γ_1 et γ_2 sont uniquement fonction de la longueur d'onde, du cristal et de l'orientation β de ses axes par rapport à la polarisation de l'onde incidente. γ_1 représente l'auto-modulation de phase (SPM) subie par le champ incident A. γ_2 quantifie lui l'effet XPW dont l'origine est donc le champ A. Il est directement proportionnel à $\chi^{(3)}$ et σ , si bien qu'un cristal présentant une anisotropie trop faible n'a que peu d'intérêt pour l'XPW. Au premier ordre, où on ne suppose que la présence du champ A initialement, on peut s'en tenir à ces deux termes seulement. Le rapport de ces deux quantités est $\gamma_2/\gamma_1 \approx 1/4$ pour un angle β maximisant le rendement XPW. Ainsi, même lorsque la SPM est forte sur le champ incident, ce qui est le cas pour obtenir un rendement élevé, l'onde XPW est, quant à elle, largement exempte d'effets délétères sur son spectre. L'expression des coefficients γ ainsi que celle des fonctions f et g sont explicitées dans la partie suivante (section 3.4).

Pour mesurer l'intensité avec laquelle le processus XPW a lieu, on utilise communément le facteur S défini par:

$$S = \gamma_0 \times I \times L \quad (3.3)$$

où:

- $\gamma_0 = (6\pi/8n_0\lambda) \chi_0^{(3)}$,
- I est l'intensité de l'onde incidente sur le cristal,
- L est la longueur du cristal.

S peut être vu comme l'intégrale B subie par le fondamental à la traversée du cristal. Typiquement l'intensité pour une génération efficace est de l'ordre de quelques 10^{12} W/cm², juste en dessous du seuil de génération de continuum.

3.3.3 Longueurs caractéristiques

Il est tout d'abord intéressant d'estimer quelques longueurs caractéristiques sur lesquelles la génération XPW peut être affectée par la dispersion, les effets non linéaires et l'auto-raïdissement. On définit donc trois longueurs caractéristiques, L_D , L_{NL} et L_{SS} , mesurant respectivement l'effet de la dispersion, l'impact des processus de mélange à quatre ondes qui accompagnent l'XPW et la force de

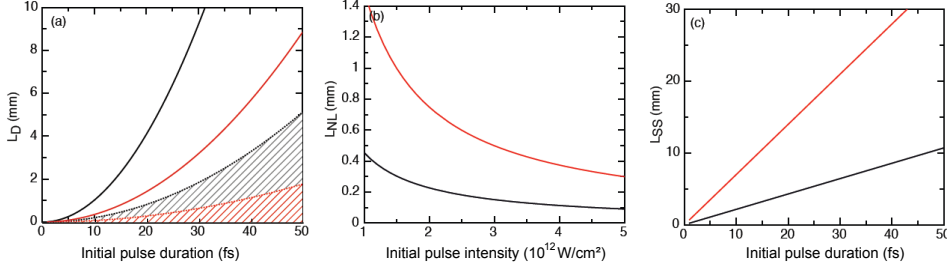


FIGURE 3.2 – Cas du BaF_2 sous les hypothèses d'un élargissement de $\sqrt{3}$ du spectre XPW par rapport au spectre initial et d'un haut rendement XPW ($\eta \approx 30\%$). (a) Longueur de dispersion, L_D , pour la pompe (ligne noire) et l'XPW (ligne rouge) en fonction de la durée initiale d'impulsion. Les aires hachurées délimitent la zone dans laquelle les deux impulsions sont affectées par la dispersion du cristal ($< 0.2 L_D$); (b) Longueur non-linéaire, L_{NL} , pour la pompe (ligne noire) et l'XPW (ligne rouge) en fonction de l'intensité initiale; (c) Longueur d'auto-raïdissement, L_{SS} , pour la pompe (ligne noire) et l'XPW (ligne rouge) en fonction de la durée initiale d'impulsion.

l'auto-raïdissement (*Self-Steepening* en anglais) [53]:

$$L_D = T_0^2 / \beta_2 \quad (3.4a)$$

$$L_{NL} = 1 / (\gamma_i |A_0|^2) \quad (3.4b)$$

$$L_{SS} = \omega_0 T_0 L_{NL} \quad (3.4c)$$

où β_2 est la GVD ($36 \text{ fs}^2/\text{mm}$ pour le BaF_2), T_0 la durée de l'impulsion initiale à $1/e^2$ ($T_0 = 1,65 \times \Delta t$) et γ_i est lié au coefficient non linéaire γ_0 . Pour un cristal de BaF_2 en coupe holographique ($[011]$), tourné par rapport à la polarisation du champ incident d'un angle β optimisant l'effet XPW, $\gamma_{\text{fondamental}} = 1,4 \gamma_0$ et $\gamma_{\text{XPW}} = 1,75 \gamma_0$.

Chacune de ses longueurs doit être comparée à la longueur du cristal utilisé afin d'en déterminer l'influence. La figure 3.2 représente ces trois longueurs caractéristiques dans le cas d'un cristal de BaF_2 . On s'est placé dans le cas le plus intéressant, celui des hauts rendements ($\eta \approx 30\%$). On a aussi fait l'hypothèse que l'impulsion XPW subit une réduction de durée d'un facteur $\sqrt{3}$ par rapport à

l'impulsion initiale. Sur la figure 3.2(a), L_D est représentée en fonction de la durée d'impulsion initiale. La longueur de dispersion pour l'XPW est d'autant plus courte que l'impulsion XPW subit un raccourcissement temporel (ici supposée être $\sqrt{3}$). Même si le BaF_2 est un milieu peu dispersif et que la quantité de matière traversée est faible (≈ 2 mm), la GVD ne peut être négligée pour des impulsions de moins de 30 fs. Sur la figure 3.2(b), L_{NL} est inférieure à un millimètre pour l'impulsion fondamentale (pompe) lorsque l'intensité est comprise entre $2 \times 10^{12} \text{W/cm}^2$ et $5 \times 10^{12} \text{W/cm}^2$. Enfin, sur la figure 3.2(c), on observe que l'effet de l'auto-raïdissement ne commence à se faire sentir que pour des impulsions de moins de 30 fs. La première conclusion est que pour des impulsions de durée supérieure à 50 fs, les effets de la dispersion et de l'auto-raïdissement sont peu ressentis. Dans le régime intermédiaire, de 50 fs à 20 fs, ces effets commencent à devenir importants pour bien représenter le processus XPW. Dans le régime "few-cycle" ($\Delta t < 10$ fs, leur influence est cruciale, et en particulier la dispersion, responsable de l'élargissement temporel de l'impulsion, va limiter les possibilités de réduction de durée d'impulsion par XPW.

Pour le cas précis d'impulsions de 25 fs et d'une intensité caractéristique de $3 \times 10^{12} \text{W/cm}^2$ sur un cristal de BaF_2 de 2 mm, on obtient pour l'impulsion pompe: $L_{NL} (0,15 \text{ mm}) < L_D (6 \text{ mm}) \sim L_{SS} (5,35 \text{ mm})$ et pour l'impulsion XPW $L_{NL} (0,7 \text{ mm}) < L_D (2,3 \text{ mm}) \sim L_{SS} (10 \text{ mm})$. On remarque que $L_{NL}(\text{XPW}) \sim 4L_{NL}(\text{pompe})$ et par conséquent la SPM sur l'impulsion XPW a peu d'influence en comparaison de la SPM sur le faisceau de pompe. De plus, dans le régime du cycle optique, $L_D = 200 \mu\text{m}$ et la dispersion est donc l'effet prédominant. Dans un filtre XPW standard, la longueur non-linéaire typique du cristal est 1 mm dans le régime du cycle optique, 2 mm pour les schémas à un cristal et 4 mm pour les schémas à deux cristaux. En conséquence, aucun de ces effets ne peut être négligé lorsque l'on s'intéresse aux impulsions ultra-courtes et ultra-intenses avec de forts rendements.

3.4 Théorie et modélisation complète de l'XPW

3.4.1 Equation vectorielle de propagation d'ondes couplées

Les deux modèles numériques qui seront présentés en détails par la suite ont été développés de manière indépendante. Ainsi ils font appel à un formalisme différent pour représenter l'évolution des champs lors de l'interaction. Néanmoins, ils s'appuient sur une base commune, l'équation vectorielle de propagation d'ondes couplées et la description de la polarisation non-linéaire en termes de tenseur de non-linéarités ($\chi^{(2)}$, $\chi^{(3)}$, ...). Je rappelle donc ici l'équation qui sert de point de

départ aux deux modèles numériques. Cette équation pour le champ électrique \mathbf{E} s'obtient à partir des équations de Maxwell et s'écrit sous la forme (Eq. 3.5):

$$\Delta E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} - \nabla (\nabla \cdot E) = \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \quad (3.5)$$

Le vecteur polarisation \mathbf{P} s'exprime en fonction du champ \mathbf{E} et se décompose en deux parties, une polarisation linéaire, \mathbf{P}_L correspondant à la réponse linéaire du milieu, et une polarisation non linéaire, \mathbf{P}_{NL} permettant de prendre en compte la réponse non linéaire du matériau. On fait l'hypothèse que cette réponse est instantanée. On suppose également que le milieu est centrosymétrique (cas des cristaux utilisés pour l'XPW), si bien que seules les puissances impaires de \mathbf{E} apparaissent dans la définition de \mathbf{P}_{NL} . Enfin, on se limite au premier ordre du développement de \mathbf{P}_{NL} , c'est-à-dire au terme d'ordre trois en puissance de \mathbf{E} (Eq. 3.6):

$$P_{NL} = [\chi^{(3)}] EE^*E \quad (3.6)$$

3.4.2 Modélisation numérique 1D à l'aide de Matlab

Description du modèle

A partir des équations 3.5 et 3.6, on a développé un code de calcul 1D (ondes planes) à pas fractionnaires (*split-step*) [54, 55] prenant en compte la dispersion, l'auto-raïdissement et tous les processus de mélange à quatre ondes dont l'auto-modulation de phase (SPM), la modulation de phase croisée (*Cross-Phase Modulation* en anglais, XPM) et la génération de polarisation croisée (XPW). Un précédent modèle avait été développé de manière indépendante dans le groupe PCO par Charles G. Durfee [56] qui prenait en compte les effets précédents sauf l'auto-raïdissement et la dispersion du $\chi^{(3)}$ qui ont permis d'affiner davantage les simulations conformément aux observations expérimentales.

L'ensemble de ces effets se retrouve dans le système d'équations couplées qui régit l'évolution de l'impulsion fondamentale (également appelée impulsion initiale ou pompe), définie par son champ électrique A, et de l'impulsion XPW, définie par son champ B (Eq. 3.7):

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{i}{2} \beta_2 \frac{\partial^2}{\partial t^2} - \frac{1}{6} \beta_3 \frac{\partial^3}{\partial t^3} - \frac{i}{24} \beta_4 \frac{\partial^4}{\partial t^4} \right) \begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix} = i \gamma_0 G \left(1 - \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial t} \right) M \quad (3.7)$$

où:

$$\beta_m = \text{Re} \left[\left(\frac{\partial^m k}{\partial \omega^m} \right)_{\omega_0} \right] \quad (3.8a)$$

$$\gamma_0 = \left(\frac{6\pi}{8n_0\lambda} \right) \chi_0^{(3)}(\lambda) \quad (3.8b)$$

$$G = \begin{bmatrix} \gamma_1 & \gamma_2 & 2\gamma_2 & 2\gamma_3 & \gamma_3 & \gamma_4 \\ \gamma_2 & \gamma_3 & 2\gamma_3 & 2\gamma_4 & \gamma_4 & \gamma_5 \end{bmatrix} \quad (3.8c)$$

$$M' = [AAA^*, AAB^*, ABA^*, ABB^*, BBA^*, BBB^*] \quad (3.8d)$$

Les coefficients γ_i ne dépendent que de γ_0 , la non-linéarité d'ordre trois, σ , l'anisotropie du tenseur $\chi^{(3)}$, et de β , l'orientation du cristal par rapport à l'axe de la polarisation du laser incident. Leur expressions analytiques pour les orientations cristallographiques [001] et [011] peuvent être consultées dans [28] dont je reproduis ci-dessous un tableau (Tableau 3.1).

	z [001]	h [011]
γ_1	$\gamma_0[1 - (\sigma/2)\sin^2(2\beta)]$	$\gamma_0[D - (\sigma/4)\cos(2\beta)]$
γ_2	$-\gamma_0(\sigma/2)\sin(2\beta)\cos(2\beta)$	$-\gamma_0(\sigma/8)\sin(2\beta)[3\cos(2\beta) - 1]$
γ_3	$(\gamma_0/3)(4 - \sigma) - \gamma_1$	$(\gamma_0/3)[D - (3\sigma/4)\cos(4\beta)]$
γ_4	$-\gamma_2$	$\gamma_0(\sigma/8)\sin(2\beta)[3\cos(2\beta) + 1]$
γ_5	γ_1	$\gamma_0[D + (\sigma/4)\cos(2\beta)]$
β_0	$0^\circ; 45^\circ; 90^\circ; 135^\circ; 180^\circ$	$0^\circ; 35,3^\circ; 90^\circ; 144,7^\circ; 180^\circ$

TABLE 3.1 – Expression des coefficients γ_i pour les orientations cristallographiques z [001] et h [011]. $D = 1 - 7\sigma/16 + (3\sigma/16)\cos(4\beta)$. β_0 représente les angles pour lesquels l'effet XPW est annihilé.

Le système d'équations 3.7 se dérive à partir de l'équation d'onde classique 3.5. La méthode utilisée est explicitée dans [60]. J'en redonne ici les grands principes. Le formalisme de départ de l'équation 3.5 s'écrit sous la forme suivante (Eq. 3.9):

$$\left(\partial_z^2 + \nabla_\perp^2 \right) E(r, t) - \frac{1}{c^2} \partial_t^2 \int_{-\infty}^t dt' \epsilon(t - t') E(r, t') = \frac{4\pi\epsilon_0}{c^2} \partial_t^2 P_{NL}(r, t) \quad (3.9)$$

où:

$$\nabla_{\perp}^2 = \partial_x^2 + \partial_y^2 \quad (3.10a)$$

$$\epsilon(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \epsilon(\omega) \exp(-i\omega t) \quad (3.10b)$$

$$\epsilon(\omega) = 1 + 4\pi\chi(\omega) \quad (3.10c)$$

$$P_{NL}(r, t) = [\chi^{(3)}] E^3 \quad (3.10d)$$

avec $\chi(\omega)$ la susceptibilité linéaire du vide et $\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12}$ A.s/(V/m) la perméabilité du vide.

Dans notre cas, les termes de diffraction sont retirés car on considère une propagation à une dimension suivant la direction perpendiculaire au cristal.

On applique ensuite la méthode de résolution proposée par Brabec *et al.* [60] ce qui permet d'obtenir l'équation 3.7 dans l'approximation de l'onde lentement variable (*Slowly Evolving Wave Approximation* en anglais, SEWA). Cette dernière impose les conditions suivantes sur le champ électrique E de l'onde:

$$|\partial_z E| \ll \beta_0 |E| \quad (3.11)$$

où:

$$\beta_0 = \text{Re}[k(\omega_0)] = (\omega_0/c)n_0 \quad (3.12a)$$

$$k(\omega) = (\omega/c)\sqrt{\epsilon(\omega)} \quad (3.12b)$$

n_0 étant l'indice de réfraction du milieu à ω_0 .

Si l'on considère une impulsion de quelques cycles optiques, alors la dispersion du $\chi^{(3)}$ (et de γ_0) doit être prise en compte. Pour inclure ces termes, on écrit à nouveau l'équation 3.7 sous la nouvelle forme:

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{i}{2}\beta_2 \frac{\partial^2}{\partial t^2} - \frac{1}{6}\beta_3 \frac{\partial^3}{\partial t^3} - \frac{i}{24}\beta_2 \frac{\partial^4}{\partial t^4} \right) \begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix}$$

$$= i\gamma_0 G \left[1 - i \left(\frac{1}{\omega_0} + \frac{\beta_{1\chi}}{\beta_{0\chi}} \right) \frac{\partial}{\partial t} + \left(\frac{\beta_{1\chi}}{\omega_0 \beta_{0\chi}} + \frac{\beta_{2\chi}}{2\beta_{0\chi}} \right) \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] M \quad (3.13)$$

Dans cette équation, γ_0 est calculé à la longueur d'onde centrale du spectre initial et les coefficients β_χ sont obtenus à partir de $\beta_{0\chi}$ par dérivations successives par rapport à λ . Ils sont donnés par les formules suivantes:

$$\beta_{0\chi} = \frac{\chi^{(3)}(\lambda_0)}{\lambda_0} \quad (3.14a)$$

$$\beta_{1\chi} = \frac{1}{2\pi c} \left[\chi^{(3)}(\lambda_0) - \lambda_0 \frac{d\chi^{(3)}}{d\lambda}(\lambda_0) \right] \quad (3.14b)$$

$$\beta_{2\chi} = \frac{\lambda_0^3}{4\pi^2 c^2} \frac{d^2 \chi^{(3)}}{d\lambda^2}(\lambda_0) \quad (3.14c)$$

Méthode de simulation numérique

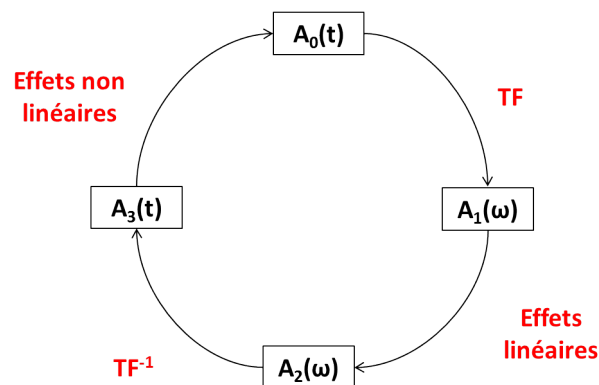


FIGURE 3.3 – Schéma de la méthode split-step pour un pas de propagation

On résout ensuite numériquement ce système d'équations avec un code développé sous Matlab. La méthode à pas divisés (*split-step* en anglais) utilisée pour résoudre séparément les effets linéaires et non-linéaires a d'abord été implémentée par Arnaud Malvache [61] pour simuler la propagation d'impulsions courtes dans une fibre creuse remplie d'un gaz rare. Je l'ai adaptée au cas de la propagation

dans un cristal XPW. La figure 3.3 schématise le principe de la méthode. Pour chaque pas dz , la "propagation" peut-être divisée en deux étapes indépendantes à condition que le pas soit suffisamment petit. La première, dans le domaine spectral, prend en compte les effets linéaires (tels que la dispersion et la différence de vitesse de groupe), tandis que la seconde, ramenée dans le domaine temporelle par transformée de Fourier inverse, permet de prendre en compte les effets non-linéaires en résolvant l'équation 3.7 sans les termes de gauche en β_m . Cela revient à traiter indépendamment le terme de gauche dans le domaine spectral en premier lieu, puis le terme de droite dans le domaine temporel dans un deuxième temps. La taille optimale de chaque pas dz est déterminée par la méthode Runge-Kutta à pas variable d'ordre six [62]. Les données de simulation obtenues avec ce code sont en très bon accord avec les résultats expérimentaux réalisés avec différentes intensités et durées d'impulsion mais aussi avec différents cristaux. L'ensemble de ces résultats est détaillé dans les sections suivantes.

Validation du code et premiers résultats

Rappel: on utilise le paramètre S , défini dans la section 3.3.2, pour mesurer l'intensité du processus XPW. Un S proche de zéro correspond à un effet XPW faible tandis qu'un S proche de 5 correspond à la limite de génération de continuum dans le cristal XPW. A titre indicatif, pour $S = 1$, le rendement est d'environ 5%.

Le code a d'abord été validé par rapport à la dépendance angulaire du rendement de conversion en fonction des axes cristallins puis avec la référence précédemment établie par Lorenzo Canova dont le domaine de validité est restreint au régime de faible rendement ($S \leq 1$). Ces courbes sont tracées plus loin, dans la partie consacrée au code 3D, afin de mettre en regard les différences entre les deux codes (Figs. 3.9, 3.10, partie 3.4.3). Ici, on s'intéresse aux différences notables dans le domaine spectral dès le régime de bas rendement. Comme on va le voir, l'expérience vient confirmer favorablement les nouveaux résultats.

Dans les simulations de Lorenzo dans le régime de non-déplétion de la pompe, le calcul en sortie de cristal était direct (pas de propagation) et ne prenait en compte ni la dispersion, ni l'auto-raïdissement. Cette méthode permet de reproduire fidèlement la courbe d'efficacité et l'élargissement spectral de l'XPW à bas rendement ainsi qu'une partie des effets de phase sur le spectre. Ces résultats sont également observables avec le nouveau code. Cependant certaines limites ont été observées même à bas rendement avec le code précédent. En particulier, le blue-shift, i.e. le décalage vers les longueurs d'onde courtes du barycentre spectral, typique de l'XPW, n'apparaît pas à phase nulle alors qu'il est présent expérimentalement. La figure 3.4 permet d'observer la différence sur ce point précis entre les deux codes

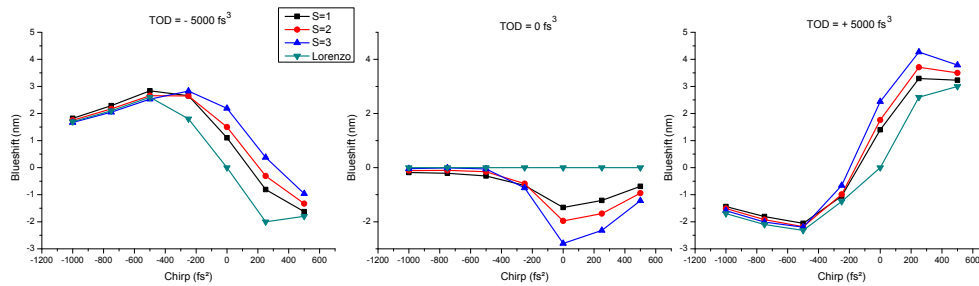


FIGURE 3.4 – Représentation du blue-shift en fonction du chirp pour trois valeurs du ϕ^3 (TOD). Résultats obtenus par Lorenzo Canova pour $S \approx 1$ [57] et par le nouveau code pour trois valeurs de S . Cristal de BaF_2 de 2 mm et impulsion de 30 fs.

pour différentes valeurs de la phase spectrale d'ordre trois ($\phi^{(3)}$). On observe des tendances similaires lorsque $\phi^{(3)} = \pm 5000 \text{ fs}^3$. Mais ce n'est pas le cas lorsque $\phi^{(3)} = 0 \text{ fs}^3$. Avec le nouveau code de calcul, on observe clairement un décalage vers le bleu du spectre XPW pour un chirp compris entre $\pm 500 \text{ fs}^2$. Ce décalage est d'autant plus prononcé que le rendement est élevé (S grand). En testant un à un les effets présents dans le nouveau code, on a mis en évidence l'influence de l'auto-raïdissement et de la dispersion du $\chi^{(3)}$ pour expliquer le blue-shift. Dans notre code, c'est principalement l'auto-raïdissement qui est responsable du blue-shift lorsque la phase spectrale initiale est nulle.

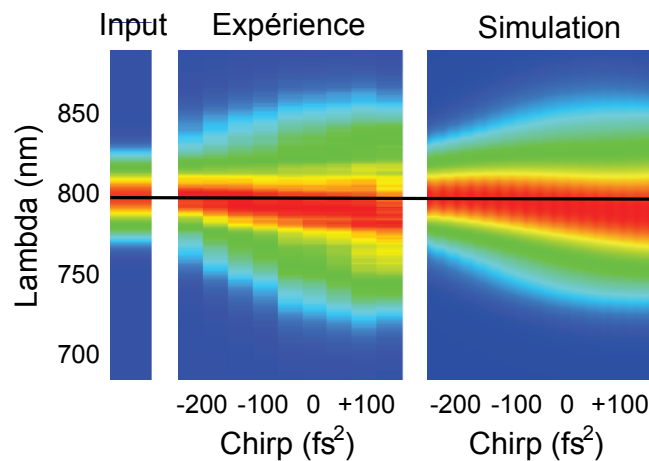


FIGURE 3.5 – Comportement spectral de l'XPW en fonction du chirp initial: comparaison entre l'expérience (à gauche) et la simulation (à droite). La colonne la plus à gauche représente le spectre initial, gaussien, centré à 800 nm, d'une impulsion de 25 fs.

La figure 3.5 représente le spectre XPW obtenu pour un chirp initial donné dans le cas d'une impulsion de 25 fs avec un spectre gaussien centré à 800 nm. Le spectre de cette impulsion est représenté dans la colonne de gauche. La carte de gauche est celle obtenue expérimentalement en utilisant le Dazzler pour modifier le chirp et celle de droite est obtenue par simulation. Dans les deux cas, S est compris entre 2 et 3 (cas de rendement modéré) et on suppose que la phase spectrale du troisième ordre est nulle. De la comparaison de ces deux cartes, il ressort tout d'abord une même tendance, allant à l'élargissement progressif du spectre XPW lorsque l'on passe d'un chirp légèrement négatif ($\approx -100 \text{ fs}^2$) à un chirp positif ($\approx +100 \text{ fs}^2$). La forme du spectre est également similaire dans les deux cas même si l'on note un élargissement légèrement plus prononcé vers les basses longueurs d'onde lors de l'expérience. Toutefois, la majeure différence réside dans le fait qu'expérimentalement, le spectre XPW est décalé vers le bleu de quelques nanomètres supplémentaires par rapport à la simulation, et ce quel que soit le chirp. Je reviendrai sur ce point que l'on ne parvient pas à expliquer pour l'instant dans la section 4.2.3 du prochain chapitre.

Néanmoins, en tenant compte de ce décalage, le code fournit des données très proches des valeurs observées lors des mesures expérimentales pour les hauts rendements et les impulsions ultra-courtes. On peut donc s'en servir pour étudier systématiquement un certain nombre de phénomènes. Dans la partie 4, je m'intéresse aux effets de phase sur le spectre XPW à bas et haut rendements, ce qui me permettra notamment de pointer l'influence de la SPM du fondamental sur le sur-élargissement du spectre XPW. La comparaison avec des données expérimentales sera également présentée. Avant cela, je présente une application du code Matlab 1D à la détermination des caractéristiques non-linéaires relatives à l'XPW du Diamant.

Utilisation du code Matlab pour la détermination des caractéristiques non-linéaires du Diamant

Le Diamant synthétique, produit par dépôt chimique en phase vapeur (CVD pour *Chemical Vapor Deposition*), est *a priori* un bon candidat pour la génération XPW. Comparé au BaF_2 , le Diamant-CVD se caractérise par une plus grande pureté cristalline, une plus grande conductivité thermique et une grande dureté [64, 65]. En conséquence, on s'attend à ce que le Diamant-CVD ait une plus haute tenue au flux et une qualité de poli plus grande, ce qui en fait un excellent cristal pour les applications à haute puissance moyenne (énergie et taux de répétition élevés). Afin de caractériser la génération XPW avec le Diamant, on doit d'abord déterminer les caractéristiques non-linéaires qui nous intéressent ($\chi^{(3)}$ et σ) et qui sont peu ou pas connues. On a donc utilisé le code Matlab mis en place et on s'est servi du

	Symmetry	Bandgap (eV)	Index (800nm)	GVD (800nm) (fs ² /cm)	TOD (800nm) (fs ³ /cm)	$\chi_{xxxx}^{(3)}$ (10 ⁻²² m ² /V ²)	σ
BaF ₂	Fm3m	9.21	1.47	370	200	1.59	-1.2
CVD-Diamond	Fd3m	5.45	2.40	1750	840	11*	-1.8*

TABLE 3.2 – Propriétés du BaF₂ et du Diamant-CVD (*: valeurs déterminées lors de nos expériences)

cas du BaF₂, que l'on maîtrise, comme d'une abaque pour déduire ces grandeurs. On peut alors comparer les propriétés linéaires et non-linéaires du Diamant-CVD et du BaF₂ ainsi que leurs performances respectives en termes de rendement de conversion et de comportement spectro-temporel. Dans la suite de cette partie, on note CVD-C le Diamant-CVD et on utilise la lettre "C" placée entre parenthèses pour dénoter les grandeurs qui s'y rapportent. On utilisera la lettre "B" pour le BaF₂.

Afin d'être un candidat potentiel pour la génération XPW, la maille cristalline doit posséder certaines caractéristiques. D'abord, elle doit être à symétrie cubique ou tétragonale (soit au moins un plan isotrope en régime linéaire). Cependant on préfère la première car elle est exempte de l'apparition parasite de biréfringence linéaire dans le cas où le cristal est légèrement désaligné. Ensuite, le milieu doit être transparent de l'UV jusque dans l'IR, i.e. avoir une bande interdite supérieure à 4 eV, afin d'éviter l'absorption multi-photonique. De plus, l'efficacité XPW est proportionnelle au produit du $\chi_{xxxx}^{(3)}$ et de l'anisotropie σ du tenseur $\chi^{(3)}$. Idéalement donc, un cristal XPW doit présenter une grande valeur de σ afin d'optimiser le rendement tout en conservant un indice non-linéaire faible, $n_2 \propto \chi_{xxxx}^{(3)}$, afin de limiter la SPM de l'impulsion d'entrée. Enfin, comme la dispersion du matériau déforme l'enveloppe temporelle de l'impulsion durant la propagation, la GVD et la TOD doivent être aussi faibles que possible. Le diamant-CVD possède les deux premières caractéristiques mais les valeurs de n_2 et σ ne sont pas bien connues. Le Tableau 3.2 résume les paramètres d'intérêt du BaF₂ et du Diamant-CVD à 800 nm. Comme on peut le voir, le Diamant a une bande interdite plus faible, un indice optique plus élevé, une plus grande dispersion mais aussi des coefficients non-linéaires plus élevés.

Afin de déterminer les caractéristiques non-linéaires du Diamant, on a comparé un cristal de 0.6 mm, en coupe [001] avec un cristal de BaF₂ de 2 mm en coupe [011]. Le terme diagonal du tenseur des nonlinéarités d'ordre trois est mesuré par la technique du Z-scan [66]. Cette première expérience a été effectuée sur la source laser de la Salle Noire avec des impulsions de 30 fs à 800 nm, au kHz, avec une énergie de quelques dizaines de microjoules. La polarisation du laser est linéaire

et on oriente le cristal afin d'éteindre l'effet XPW. En comparant l'amplitude du signal Z-scan pour les deux échantillons, on peut en déduire immédiatement le ratio des n_2 et ainsi la valeur du $\chi_{xxxx}^{(3)}$ du Diamant connaissant celle dans le BaF_2 . Or, $\chi_{xxxx}^{(3)} = 1.59 \times 10^{-22} \text{ m}^2/\text{V}^2$ dans le BaF_2 [67]. On en déduit que $\chi_{xxxx}^{(3)}(\text{C}) = 11 \times 10^{-22} (\pm 5\%) \text{ m}^2/\text{V}^2$ ($n_2(\text{C}) \approx 5 \times 10^{-20} \text{ W}^2/\text{cm}^{-2}$) pour le CVD-C. Cette valeur correspond aux ordres de grandeur donnés dans la littérature [68–70] et confirme que le Diamant est très non-linéaire.

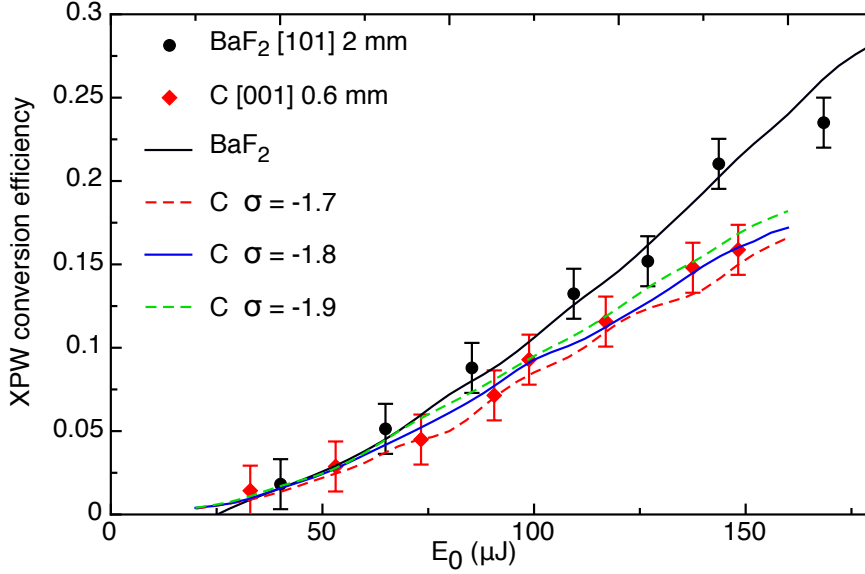


FIGURE 3.6 – Efficacité XPW interne mesurée pour le BaF_2 (2 mm, coupe [011], cercles noirs) et le CVD-C (0.6 mm, coupe [001], losanges rouges). E_0 est l'énergie incidente, pertes par reflexion déduites. Les courbes théoriques pour le BaF_2 (ligne noire), le CVD-C pour différentes valeurs de σ ($\sigma = -1.7$ (ligne pointillée rouge), $\sigma = -1.8$ (ligne bleue), $\sigma = -1.9$ (ligne pointillée verte)). Ligne pointillée bleue : efficacité théorique pour un cristal de CVD-C en coupe [011] de 0.6 mm avec $\sigma = -1.8$.

Comme l'efficacité de l'effet XPW est fonction d'une combinaison linéaire des termes non-diagonaux du tenseur $\chi^{(3)}$, on peut se servir de cet effet pour déterminer la valeur de σ . Dans de précédentes études, Minkovski *et al.* ont établi que pour l'orientation d'un cristal maximisant le signal XPW dans le régime de non déplétion (i.e. rendement faible), le signe de l'ellipticité induite sur le faisceau fondamental par le processus non-linéaire est directement lié au signe de σ [35]. Ce test simple indique que les σ du BaF_2 et du CVD-C sont de même signe, i.e. négatifs. Pour déterminer avec plus de précisions la valeur de $\sigma(\text{C})$, on mesure l'efficacité XPW en fonction de l'énergie d'entrée, jusqu'à 25% d'efficacité, pour

les deux échantillons, tous les autres paramètres restant identiques. Le laser mis à disposition par Fastlite pour cette expérience délivre 56 fs à 800 nm et 300 μJ , à 100 Hz. Le setup XPW utilisé est décrit dans [50] et plus en détails dans cette thèse (cf. partie 5.3, chapitre 5). Le faisceau d'entrée est spatialement filtré par une fibre creuse de 40 cm de long et d'un diamètre interne de 250 μm . Les deux cristaux sont placés l'un après l'autre à la même position, quelques centimètres après la fibre. L'ensemble {cristal + fibre} est sous vide et placé entre deux polariseurs croisés. L'efficacité mesurée, corrigée en tenant compte des pertes par réflexion sur les cristaux, est tracée sur la figure 3.6.

Les tendances expérimentales sont bien reproduites avec notre modèle numérique, en particulier dans le cas du BaF_2 . Pour le Diamant, comme on a déterminé précédemment la valeur de $\chi_{xxxx}^{(3)}$, σ reste le seul paramètre indéterminé. $\sigma = -1.8 \pm 0.1$ donne un excellent accord entre la théorie et les données expérimentales. L'efficacité de conversion est supérieure à 20% pour le cristal de 2 mm de BaF_2 comme on s'y attend dans cette configuration efficace de filtrage. Le cristal de Diamant, bien qu'il soit plus fin, est presque aussi efficace. Ceci est le résultat d'un indice non-linéaire et d'une anisotropie élevés. En conséquence, le Diamant apparaît comme un matériau prometteur pour la génération XPW, en particulier pour les impulsions de durée comprise entre 50 fs et 500 fs, pour lesquelles la dispersion plus grande du Diamant a peu d'influence. Pour les applications, une fine couche de SiO_2 sur les faces du cristal permettrait de réduire les hautes pertes par réflexion (16% par interface).

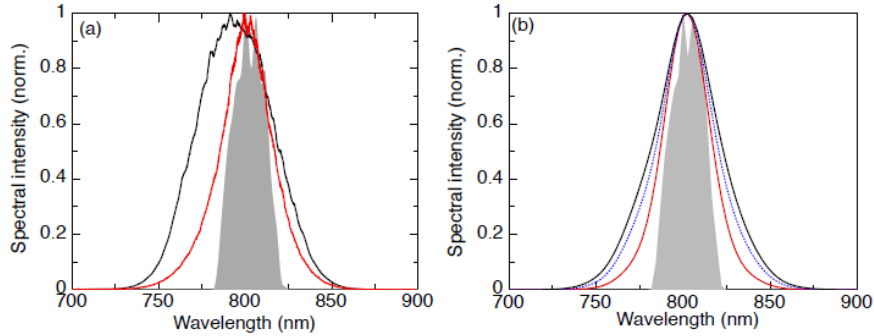


FIGURE 3.7 – Spectres expérimentaux (a) du laser (zone grisée), de l'XPW dans le BaF_2 [011] (noir) et dans le CVD-C [001] (rouge). (b) Spectres théoriques du laser (zone grisée), de l'XPW dans le BaF_2 [011] (noir), dans le CVD-C [001] (rouge) et dans le CVD-C [011] (bleu).

On compare ensuite les propriétés spectro-temporelles des signaux XPW pour

les deux cristaux dans les mêmes conditions. Les spectres expérimentaux sont comparés au spectre d'entrée sur la figure 3.7(a). Dans chaque cas, comme prévu après XPW, le spectre a subi un élargissement et une mise en forme significatifs. Le spectre initial de 20 nm est élargi à 49 nm et 40 nm dans le BaF₂ et le CVD-C respectivement (facteur d'élargissement spectral de 2,3 et 2). Le spectre d'entrée, carré et modulé, est adouci et transformé en un spectre proche d'une gaussienne. Cependant, le spectre XPW obtenu avec le BaF₂ est légèrement plus proche d'une gaussienne. Ce comportement est confirmé par les simulations (Fig. 3.7(b)). D'après les simulations, la différence de comportement est principalement due aux différentes orientations cristallographiques des deux cristaux. En effet, cette différence conduit à un équilibre différent des effets non-linéaires au cours du processus [63]. A y regarder de plus près, on se rend compte qu'un cristal de Diamant en coupe [011] devrait produire un spectre vraiment similaire au BaF₂ en coupe [011] comme le montre la courbe simulée de la figure 3.7(b). On s'attend également à une efficacité de conversion plus importante avec la coupe [011], comme le montre la figure 3.6. On note expérimentalement que le blue-shift est de 10 nm pour le BaF₂ et de 5 nm pour le CVD-C. La première raison est celle d'un rendement inférieur dans le cas du Diamant bien que l'intensité sur le cristal soit comparable. Cela est dû aux non-linéarités et aux orientations cristallographiques différentes pour chaque cristal. L'écart observé peut également avoir d'autres origines. N'étant parvenu à identifier l'ensemble des phénomènes à l'origine du blueshift, je dois me limiter ici à l'émission d'hypothèses, à savoir, par exemple, l'effet d'une ionisation multiphotonique plus faible ou d'une contribution Raman différente dans le CVD-C [64] par rapport à ce qui a été observé dans le BaF₂ [71].

Afin de confirmer le raccourcissement temporel associé à l'élargissement spectral, la dispersion résiduelle des impulsions XPW est compensée à l'aide de miroirs chirpés. Les impulsions comprimées sont ensuite caractérisées à l'aide d'un Wizzler. La figure 3.8 résume les résultats obtenus. Les durées FWHM mesurées pour l'XPW, 22 fs avec le BaF₂ et 28 fs avec le Diamant, sont toutes deux proches de leur transformée de Fourier. La mesure confirme également l'amélioration du contraste cohérent de l'impulsion filtrée par XPW sur une échelle temporelle femtoseconde. Le piédestal initial, causé par les modulations rapides du spectre laser, est fortement réduit au cours du processus XPW. La mesure du contraste cohérent de l'impulsion XPW est limitée dès ± 200 fs autour du pic par la dynamique de détection de 5 ordres de grandeur de l'appareil.

En conclusion, le filtrage XPW à l'aide du Diamant CVD a été démontré. L'étude a également permis de déterminer les caractéristiques non-linéaires des cristaux de Diamant CVD en s'appuyant notamment sur le modèle numérique

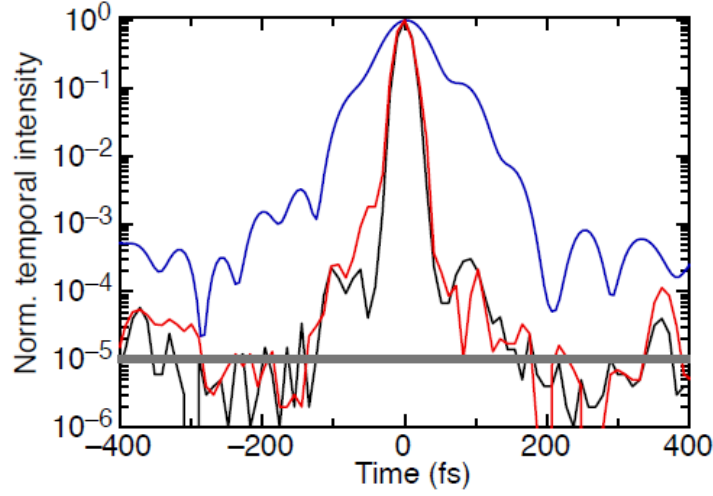


FIGURE 3.8 – Profils temporels mesurés avec Wizzler représentés en échelle logarithmique: laser (bleu, 57 fs FWHM), après XPW dans le BaF₂ (noir, 22 fs FWHM) et après XPW dans le CVD-C (rouge, 28 fs FWHM). La ligne épaisse désigne la limite de détection.

développé: $\chi_{xxxx}^{(3)} = 11 \times 10^{-22} \text{ m}^2/\text{V}^2$ et $\sigma = -1,8$. Ces valeurs montrent que le CVD-C est un milieu fortement non-linéaire et anisotrope, et donc a priori bien adapté à la génération de polarisation croisée. Avec un cristal de 0,6 mm, d'orientation [001], on a obtenu des efficacités internes élevées, un élargissement spectral d'un facteur deux et un nettoyage temporel de l'impulsion significatif. Les performances pourraient être améliorées avec un cristal d'orientation [011] et le dépôt d'une pellicule d'adaptation d'indice sur les faces du cristal afin de diminuer les pertes par réflexion. Compte tenu des excellentes propriétés thermo-mécaniques du Diamant, et à condition que la couche d'adaptation d'indice ne diminue pas son seuil de dommage, le Diamant-CVD est un excellent candidat pour le filtrage par XPW de lasers de haute puissance, à haut taux de répétition.

3.4.3 Modélisation des effets spatiaux lors de la propagation à l'aide du logiciel CommodPro

Le modèle théorique précédent présente la limitation de ne pas prendre en compte les effets spatiaux transverses lors de la propagation (simulation en ondes planes). Or l'étude du couplage spatio-spectral de la génération XPW est importante lorsque l'on atteint le régime de rendements élevés pour lequel rien n'indique *a priori* une génération homogène du faisceau XPW. La dynamique spatio-temporelle de l'XPW a fait l'objet de plusieurs études précédemment [72, 73] et

notamment dans le but d'optimiser les schémas à deux cristaux [74]. Ici, j'ai souhaité, à l'aide du logiciel CommodPro (CP) de la société Oxalis Laser [75], dont la structure est comparable au logiciel Miro du CEA [76], simuler la propagation d'un faisceau dans une chaîne laser suivant les trois axes de l'espace et la variable temporelle. Cela va nous permettre d'observer la propagation spatiale des faisceaux fondamental et XPW et de représenter l'évolution des propriétés spectrales du faisceau XPW au cours de cette propagation. On va ainsi pouvoir mettre en évidence le rôle de l'effet Kerr dans la remise en forme spatio-temporelle des impulsions XPW.

Dans la suite, je présente d'abord le logiciel CommodPro, notamment le modèle physique utilisé, son traitement numérique et le mode de calcul le plus adapté à la propagation d'impulsions courtes en trois dimensions. Malheureusement bien que ces logiciels incorporent cet effet dans leur modèle, il n'existe aucun élément prédéfini permettant d'observer la génération de polarisation croisée. C'est pourquoi nous avons décidé d'ajouter ce nouvel élément standard, que l'on a appelé "cristalXPW". Je consacre donc une partie à détailler la définition de cet élément dans CP et la modification du code de calcul afin de pouvoir l'utiliser. Je présente également la validation de l'élément sur un certain nombre de cas tests que je compare tantôt aux prédictions théoriques, tantôt au code Matlab. Enfin, dans le chapitre 4, la section 4.2.2 est consacrée aux nouveaux résultats obtenus grâce au code. Ils permettent d'observer le couplage spatio-temporel de l'effet XPW.

Introduction sur CP

CP reprend principalement l'architecture et les outils de Miro. Ces deux codes ont des possibilités quasiment infinies pour la simulation de systèmes et d'effets physiques complexes qu'il serait trop long d'expliquer ici. J'encourage le lecteur intéressé à se reporter à la documentation complète de Miro [77] qui présente à la fois les modèles physiques utilisés, les différents modes de calcul disponibles, les objets (amplificateur, lame de verre, etc.) prédéfinis ainsi qu'un grand nombre d'exemples. Ici, je me limiterai à la description des éléments de CP que j'ai utilisés pour la simulation de l'effet XPW en me basant sur la documentation de Miro. Dans un premier temps, je rappelle le modèle physique utilisé par CP/Miro et le mode de calcul permettant la prise en compte la plus complète des effets physiques intervenant dans nos expériences. Je présente ensuite la paramétrisation des impulsions et le choix de la boîte de calcul et sa discrétisation. La description de l'élément "cristalXPW" et la modification du code de calcul font l'objet de la dernière section. J'y inclus les résultats de tests de paramétrisation/validation de l'élément et de l'effet.

Modèle physique et mode de calcul

Partant des équations 3.5 et 3.6, Miro/CP fait l'hypothèse que le champ peut être représenté par une somme discrète d'ondes planes de vecteur d'onde \mathbf{k}_l et de fréquence ω_l . Après avoir effectué cette discrétisation du champ \mathbf{E} suivant ses différentes composantes spectrales \mathbf{E}_l et une normalisation de chacune d'elles de sorte que la somme de leur module soit égale à l'intensité de l'impulsion, chaque composante vérifie, dans un matériau diélectrique "standard" (ref. [77] p. 9), l'équation de Schrodinger non-linéaire 3.15:

$$-2ik_l \left(\frac{\partial E_l}{\partial z} + \frac{1}{v_{g,l}} \frac{\partial E_l}{\partial t} \right) + \Delta_{\perp} E_l + 2k_l \sigma_l \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} - ik_l v_l E_l + 2k_l \frac{\omega_l \gamma_l}{c} \frac{1}{3} (2E_l \cdot E_l^* E_l + E_l \cdot E_l E_l^*) = 0 \quad (3.15)$$

où:

- $\Delta_{\perp} = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$ est le laplacien transverse,
- v_l est le coefficient d'absorption,
- γ_l l'indice non linéaire,
- $v_{g,l} = \frac{\partial \omega}{\partial k}(k_l)$ est la vitesse de groupe,
- $\sigma_l = \frac{\omega''(k_l)}{2\omega'(k_l)} = -\frac{1}{2}k''(\omega_l)$ est la dispersion des vitesses de groupe.

L'expression *matériau diélectrique "standard"* exclut en fait les cristaux XPW, si bien que l'équation 3.15, tout en étant générale, n'est pas interprétée par le code de calcul comme génératrice de polarisation croisée. Cela vient uniquement de la résolution numérique qui, au moment de son implémentation, n'a pas fait cas de l'XPW en tant que tel. La création de l'élément XPW et l'implémentation d'une modification du code d'origine permettent de réparer cette injustice.

L'équation 3.15 est l'équation la plus générale résolue par Miro/CP. Seuls les modes de calcul *spectre large* et *modulation de phase* la résolvent sans plus de simplification. La seule différence entre ces deux modes réside dans le fait qu'en *modulation de phase*, la boîte de discrétisation temporelle change de taille pour prendre en compte l'étirement/compression de l'impulsion, ce qui permet de réduire le temps de calcul nécessaire. Dans notre cas, cela n'aura pas beaucoup d'influence car la traversée d'un cristal XPW n'a que peu d'influence sur la durée de l'impulsion.

Schéma numérique et traitement de l'effet Kerr

La méthode utilisée est celle du pas fractionnaire comme dans notre code Matlab. Dans le cas tridimensionnel qui nous intéresse, Miro/CP utilisent des transformées

de Fourier *spatio-temporelles* afin de prendre en compte simultanément les effets spatiaux et temporels. Enfin, de même que dans le code Matlab, chaque pas fractionnaire est subdivisé en deux afin de traiter séparément l'effet Kerr et les effets de diffraction et de dispersion. Cela présente un avantage énorme pour implémenter l'effet XPW associé à l'élément "cristalXPW" puisqu'il suffit d'ajouter dans le code une fonction *case* permettant de basculer le calcul de l'effet Kerr classique vers l'effet XPW (prise en compte de tous les termes croisés) lorsque l'élément traversé est un cristal XPW. Le choix de la longueur du pas fractionnaire Δz est fonction de l'intégrale B accumulée sur le pas. Par analogie, on choisit le paramètre S pour l'XPW. Le critère exprime que l'intégrale B accumulée sur le pas Δz doit être plus petite qu'un déphasage ϵ arbitraire. Cela se traduit par la condition mathématique suivante (Eq. 3.16):

$$\max \frac{\omega_l}{c} \gamma I_l^{crete} \Delta z < \epsilon \quad (3.16)$$

Le maximum est pris sur l'ensemble indicé par l de discrétisation en fréquence du champ électrique de l'impulsion. La même condition est utilisée dans le cas de l'XPW. Le choix de ϵ conditionne le nombre de pas et donc le temps de calcul. Nous n'avons pas cherché à optimiser sa valeur dans le cas de l'XPW sous CP. On a en effet considéré que l'onde incidente ne subissait pas de compression/étirement de plus d'un ordre de grandeur à la traversée d'un cristal XPW. Ainsi, on a assigné une valeur à ϵ permettant de fixer le déphasage maximal lors d'un pas à un certain pourcentage du déphasage total, i.e. de la valeur de S. Supposons que S vaille 1, et que l'on ait choisi ϵ de sorte que le déphasage maximal lors d'un pas soit de 1 mrad, alors il y aura 1000 pas. De manière équivalente, un cristal de 1 mm sera alors divisé en 1000 couches de 1 μm d'épaisseur.

Condition de validité des hypothèses du mode modulation de phase

Dans le mode *modulation de phase*, Miro/CP font l'hypothèse que le champ \mathbf{E} de spectre large peut s'écrire sous la forme:

$$E(x, y, t; z) = \epsilon(x, y, t; z) e^{i\phi(t)} \quad (3.17)$$

où ϵ est de spectre étroit et ϕ une fonction de phase. On définit alors la *fréquence instantanée* par:

$$\bar{\omega}(t) = \frac{\partial \phi}{\partial t} \quad (3.18)$$

Pour nos études, nous nous limitons au cas où la dérive de fréquence est au

plus linéaire, soit:

$$\bar{\omega}(t) = 2bt \quad (3.19)$$

où le paramètre b peut être spécifié dans Miro/CP. Il représente le chirp de l'impulsion utilisée. Pour que le traitement numérique qui est fait soit valide, il est nécessaire et suffisant que $2b \geq 1/\delta t^2$, où δt est le pas de temps. Autrement dit la racine carrée du chirp temporel maximal de l'impulsion doit être inférieure au pas de temps choisi (condition 3.20):

$$\sqrt{|chirp|} \leq \delta t \quad (3.20)$$

N'ayant jamais utilisé d'impulsion pré-chirpée avec CP car ce n'était pas là le but principal, la condition 3.20 a toujours été automatiquement vérifiée.

Définition des impulsions et de la boîte de calcul

Les impulsions source sont définies par leur énergie, leur longueur d'onde centrale et leur profil d'intensité spatio-temporelle. Dans nos études, l'énergie est un paramètre libre que l'on ajuste pour obtenir des conditions d'interaction similaires à l'expérience. La longueur d'onde centrale est celle de nos lasers, et donc 800 nm en général. Pour la génération XPW, on simule des impulsions comprimées, la valeur du chirp est donc nulle. Bien que cela n'ait pas été fait, il aurait été possible de faire varier le chirp légèrement car cela influence l'interaction. Cependant, le logiciel CP est principalement utilisé pour observer la propagation spatiale. En choisissant des impulsions de 30 fs pour les simulations, on se libère de l'influence du chirp sur les excursions envisagées ($\pm 50 \text{ fs}^2$ au maximum si l'on souhaite prendre en compte la longueur des cristaux). Le dernier paramètre est le profil d'intensité spatio-temporelle, $I(x, y, t)$. Comme l'on s'intéressera en particulier à la propagation dans la configuration où le cristal XPW est placé après une fibre creuse (cf. partie 5.3), on choisit la source comme étant un faisceau gaussien avec un waist à la sortie de la fibre déterminé par le diamètre interne de la fibre. On a mesuré expérimentalement la propagation en sortie de fibre. On a ainsi pu déterminer le waist en sortie de fibre. Cette valeur est ensuite utilisée pour définir la source dans CP. On vérifie enfin que les simulations confirment une propagation identique à la mesure initiale. Avec nos impulsions de durée $\Delta T = 30 \text{ fs}$ et avec nos fibres de $250 \mu\text{m}$ de diamètre interne, le waist vaut $\omega = 48 \mu\text{m}$ (diamètre à $1/e^2 = 96 \mu\text{m}$) et le profil gaussien d'intensité s'écrit de la manière suivante:

$$I(x, y, t) = \exp \left[- \left(2\sqrt{\ln(2)} \times t/\Delta T \right)^2 \right]$$

$$\times \exp \left[- \left(\left(2\sqrt{\ln(2)} \times x/2\omega \right)^2 + \left(2\sqrt{\ln(2)} \times y/2\omega \right)^2 \right) \right] \quad (3.21)$$

Pour compléter la définition du système, il faut encore préciser dans CP la taille et le nombre de points de la boîte de calcul sur les axes spatiaux et temporel. Typiquement, on choisit un segment de 300 fs découpé en 64 points pour la partie temporelle, et un carré de 6 mm de côté cartographié par une grille de 128 x 128 points dans le domaine spatial. Cette taille de boîte permet de représenter l'élargissement temporel et la divergence des faisceaux jusqu'à 1 m environ après le cristal sans observer d'effets de bord trop importants. La source étant définie, il suffit alors de positionner le cristal à la distance souhaitée et de placer une lame servant pour la lecture des résultats après le cristal. La propagation se faisant sous vide, la partie temporelle de l'impulsion ne subit aucune modification jusqu'au cristal. Par contre, le faisceau diverge suivant la loi des faisceaux gaussiens. Le calcul des champs dans le cristal est fait selon le mode de calcul *modulation de phase* présenté dans la section précédente avec la prise en compte de l'effet XPW que je vais décrire à présent.

Implémentation et test de l'élément "cristalXPW" dans CP

L'implémentation de l'élément "cristalXPW" et l'apparition dans le code du calcul spécifique de l'XPW est le fruit d'une collaboration avec François Nesa d'Oxalis-Laser, société qui développe CommodPro (CP). Ensemble, nous avons incorporé les équations XPW telles qu'elles apparaissent dans l'équation 3.7 de la partie 3.4 ainsi que les coefficients γ_i correspondant aux différentes orientations cristallographiques utilisées (cf. tab. 3.1, partie 3.4). Une fois ce travail effectué, nous avons ajouté à la liste offerte par CP, l'élément "cristalXPW" qui permet d'utiliser ces équations. Son paramétrage est identique à celui d'une "lame de verre" (épaisseur, indice, transmission, dispersion, ...) avec l'ajout :

- d'un angle (en degré) permettant le choix de l'orientation des axes du cristal par rapport à l'axe de la polarisation incidente;
- d'un choix de coupe du cristal (holographique [011] ou suivant l'axe z [001]) qui détermine l'orientation optimale : 64.5° pour [011] et 22.5° pour [001];
- d'une susceptibilité non-linéaire d'ordre 3 correspondant au $\chi^{(3)}$;
- d'un facteur σ correspondant à l'anisotropie du $\chi^{(3)}$;
- d'une fréquence de diagnostic en pas, qui permet l'affichage au cours du calcul du pas en cours et de l'évolution des énergies suivant chaque axe de polarisation.

Dans les modes *spectre large* et *modulation de phase*, l'utilisation de l'élément XPW entraîne la commutation du code vers le calcul des équations XPW au lieu de l'effet Kerr classique. Cela n'a pas d'incidence sur les résultats obtenus. La méthode utilisée a simplement permis de ne pas modifier les parties du code existantes mais plutôt d'ajouter une "branche" dédiée au calcul de la génération de polarisation croisée dans l'élément "cristalXPW". Afin de confirmer la validité de l'implémentation des équations et de l'élément "cristalXPW", on effectue une série de tests visant à vérifier:

1. la dépendance en angle de la génération XPW pour chaque orientation cristallographique;
2. la dépendance en énergie, tout autre paramètre étant inchangé, du rendement de conversion XPW;
3. la propagation spatiale après le cristal XPW dans un cas test.

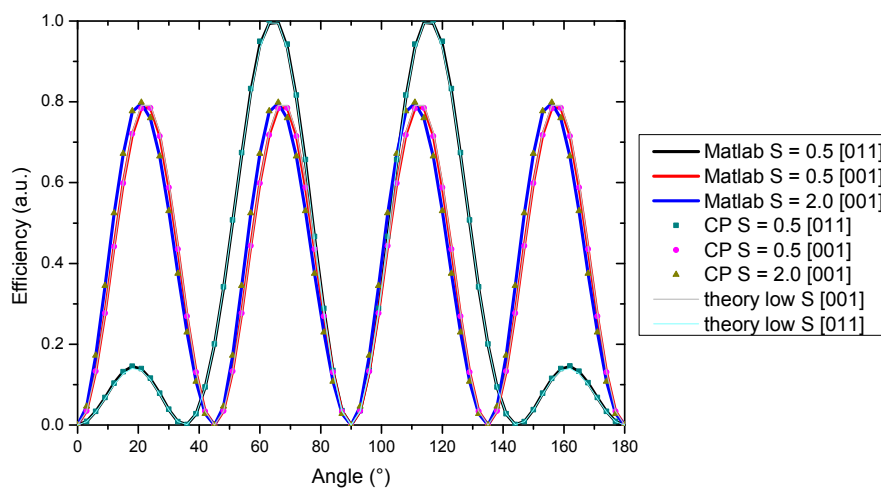


FIGURE 3.9 – Tests du code de simulation CP et de l'élément "cristalXPW": les résultats obtenus avec CP sont comparés aux résultats obtenus avec le code Matlab (partie 3.4.2) et le modèle théorique simplifié ne prenant en compte que les termes de couplage dû à la polarisation non-linéaire (Eq. 3.2). Dépendance angulaire du rendement dans les coupes [001] pour $S = 0,5$ et $S = 2$ et [011] pour $S = 0,5$ avec Matlab et CP et les courbes théoriques à bas rendement.

Pour les tests, j'ai pris un cristal de BaF_2 d'un millimètre d'épaisseur et une impulsion de 30 fs à 800 nm. Le premier test concerne la dépendance angulaire du rendement. La figure 3.9 résume les résultats obtenus avec les codes CP et

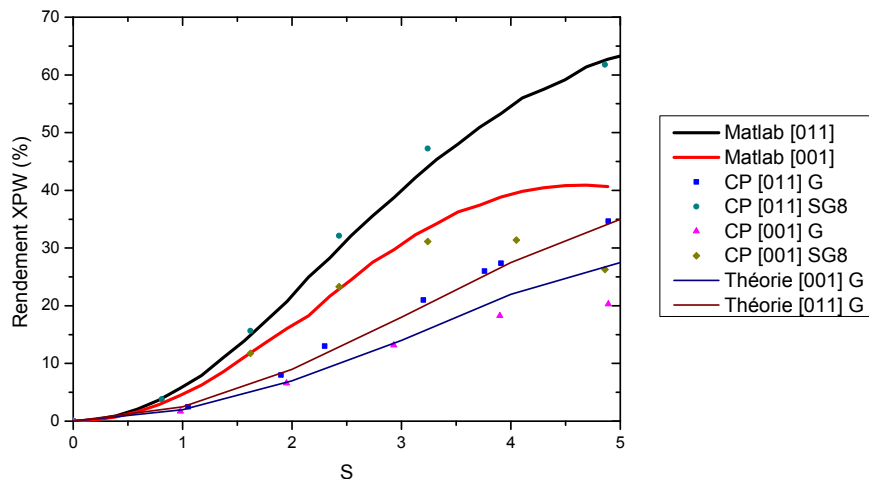


FIGURE 3.10 – Tests du code de simulation CP et de l'élément "cristalXPW": les résultats obtenus avec CP sont comparés aux résultats obtenus avec le code Matlab (partie 3.4.2) et le modèle théorique simplifié ne prenant en compte que les termes de couplage dû à la polarisation non-linéaire (Eq. 3.2). Rendement de conversion en fonction du paramètre S dans les coupes [001] et [011] avec Matlab (onde plane), CommodPro (faisceau gaussien, "G" et super-gaussien d'ordre 8, "SG8") et le modèle théorique simplifié (faisceau gaussien, "G").

Matlab dans différentes conditions: orientation [001] ou [011], $S = 0,5$ ou $S = 2$. Les courbes théoriques sont obtenues à partir de la résolution de l'équation 3.2. Pour faciliter la lecture graphique, on a normalisé à 1 le rendement maximum pour $S = 0,5$ de la coupe [011]. Le rendement en coupe [001] avec $S = 0,5$ a ensuite été tracé par rapport à la normalisation précédente afin de respecter la différence des deux coupes en termes d'efficacité maximale. La dernière série de données pour la coupe [001] et $S = 2$ a ensuite été normalisée au même niveau que l'autre cas en coupe [001]. Les positions théoriques des maxima et minima sont reproduites avec les deux codes avec un excellent accord. En particulier, il est clair qu'en coupe [001], l'angle qui maximise la conversion XPW se décale légèrement avec la valeur du paramètre S mais pas les positions des minima. On a vérifié que ce n'était pas le cas en coupe [011].

Sur la figure 3.10, la comparaison de la dépendance du rendement XPW en fonction du paramètre S montre la même évolution avec les deux codes et le modèle théorique de base. On peut la décomposer en trois régimes: 1) bas rendement avec une efficacité faible et "plate" à bas S, 2) rendement modéré à fort avec une zone de croissance linéaire du rendement, et 3) un plateau où la saturation de l'effet de conversion est atteint. On remarque, en outre, que le comportement est différent

entre les coupes cristallographiques [001] et [011]. En effet, pour cette dernière, la saturation apparaît nettement plus tard ($S = 5$) alors que pour la coupe [001], la saturation apparaît dès $S = 3$ et conduit à une reconversion pour des S plus grands. Un décalage quantitatif subsiste néanmoins entre les codes Matlab et CP. Ceci est dû à la définition spatiale du faisceau (gaussien avec CP alors qu'il était de forme carrée avec Matlab). Afin de démontrer la cohérence des deux modèles, j'ai tracé les résultats obtenus avec CP lorsque l'on utilise une onde incidente super-gaussienne d'ordre 8 spatialement. Le profil top-hat du faisceau se rapproche alors d'une onde plane et conduit aux mêmes résultats qu'avec Matlab pour l'orientation [011]. Pour un cristal avec une coupe [001], les deux codes divergent pour des valeurs de S élevées : le rendement avec CP est plus faible qu'avec Matlab. Un effet de saturation apparaît plus tôt lorsque les effets spatiaux sont pris en compte, conformément aux observations expérimentales. On perçoit l'amorce du même comportement en coupe [011]. Cependant, comme elle est plus efficace que la coupe [001], il aurait fallu poursuivre la courbe au-delà de $S = 6$ pour observer l'effet plus clairement. Le constat est le même lorsque l'on compare les résultats de CP avec les valeurs issues du modèle théorique simplifié. L'absence d'effets spatiaux dans ce dernier ne permet pas de rendre compte de la saturation prématurée. CP est donc consistant avec les modèles précédents et il permet en plus de reproduire plus fidèlement les conditions réelles d'interaction.

Enfin, pour tester la propagation spatiale, on reproduit avec CP les conditions d'une expérience menée par Charles Durfee et Xiaowei Chen, dont le but était d'observer la focalisation des faisceaux après XPW en raison de l'effet Kerr. Les conditions de l'expérience étaient les suivantes:

- impulsions de 22 fs, $45\mu\text{J}$;
- cristal de BaF_2 de 1 mm en coupe [001] placé au foyer d'une lentille de 1500 mm;
- transmission globale de 18%, soit un rendement XPW interne de l'ordre de 20% à 25%.

Avec ces informations, on est capable avec CP de créer la source des impulsions laser, puis de placer la lentille de focale 1500 mm et le cristal avec les caractéristiques décrites au foyer afin d'obtenir le rendement obtenu lors de l'expérience. On place ensuite des diagnostics après le cristal pour observer la propagation tel que cela a été fait pendant l'expérience. Les résultats expérimentaux et numériques démontrent un très bon accord comme on l'observe sur la figure 3.11. Sur le fondamental d'abord, on observe une zone de déplétion jusqu'à 1 cm après le cristal dans les deux cas: expérimentalement, l'intensité est moindre au centre du faisceau et numériquement, cela se traduit par une taille de faisceau plus importante. Ensuite, sur les deux faisceaux, un foyer Kerr est mis en évidence à la fois expérimentale-

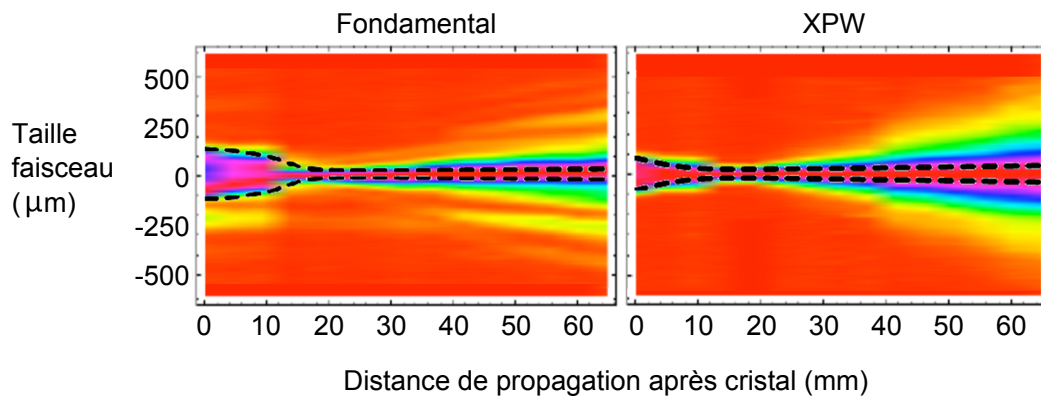


FIGURE 3.11 – Comparaison de la propagation des faisceaux fondamental (impulsion pompe) et XPW après le cristal : mesures expérimentales réalisées par Charles G. Durfee et Xiaowei Chen (carte de couleurs) et calcul numérique de la taille du faisceau (diamètre à $1/e^2$) par le logiciel CommodPro (courbe noire hachurée).

ment et numériquement et les positions sont concordantes. D’après la figure 3.11, il semble que le code prévoit une divergence des faisceaux moins importante que celle mesurée expérimentalement. Cela peut être dû à une légère différence des tailles de faisceaux en entrée, ainsi qu’à la différence entre les faisceaux réels dont les profils ne sont pas parfaitement gaussiens et les faisceaux utilisés pour la simulation. De plus, nous n’avons pas pris en compte les effets de la propagation dans l’air, ni la dépendance en λ de l’autofocalisation dans le cristal. Ce dernier point est abordé dans la partie 4.2.3. Néanmoins, à ces détails près qu’une étude plus fine permettrait de gommer, le code reproduit fidèlement la réalité de l’interaction XPW.

3.5 Conclusion

Ce chapitre a été l’occasion d’introduire la problématique de l’amélioration du contraste dans les chaînes CPA et de justifier le choix de la technique XPW. J’ai ensuite présenté le détail théorique de l’effet et les méthodes numériques mis en place durant la thèse. Ces nouveaux outils de simulation 1D et 3D ont été validés par rapport aux références précédentes et un certain nombre de cas tests. L’utilité de chaque modèle a été illustré par une application ou observation simple. Le code 1D a été utilisé pour la détermination des paramètres non-linéaires de cristaux Diamant tandis que le code 3D a permis d’observer la refocalisation après cristal par effet Kerr. Ces outils sont à nouveau mis à contribution dans le chapitre suivant afin de confirmer de nombreux comportements de l’XPW que l’on a par ailleurs

mis en évidence expérimentalement.

Bibliographie

- [1] J. P. Freidberg, R. W. Mitchell, R. L. Morse, and L. I. Rudisinski, "Resonant absorption of laser light by plasma targets," *Phys. Rev. Lett.* **28**, 795-799 (1972). :1972
- [2] F. Brunel, "Not-so-resonant, resonant absorption," *Phys. Rev. Lett.* **59**, 52-55 (1987). :1987
- [3] D. Neely, P. Foster, A. Robinson, F. Lindau, O. Lundh, A. Persson, C.-G. Wahlstrom, P. McKenna, "Enhanced proton beams from ultrathin targets driven by high contrast laser pulses," *Appl. Phys. Lett.* **89**, 021502 (2006). :2006
- [4] T. Ceccotti, A. Lévy, H. Popescu, F. Réau, P. D'Oliveira, P. Monot, J. P. Geindre, E. Lefebvre, and P. Martin, "Proton acceleration with high-intensity ultrahigh-contrast laser pulses," *Phys. Rev. Lett.* **99**, 185002 (2007). :2007
- [5] A. Flacco, F. Sylla, M. Veltcheva, M. Carrié, R. Nuter, E. Lefebvre, D. Batani and V. Malka, "Dependence on pulse duration and foil thickness in high-contrast-laser proton acceleration," *Phys. Rev. E* **81**, 036405 (2010). [30](#), [34](#)
- [6] <http://www.fidtechnology.com> [31](#)
- [7] <http://www.leysop.com> [31](#)
- [8] J. Itatani, J. Faure, M. Nantel, G. Mourou, and S. Watanabe, "Suppression of the amplified spontaneous emission in chirped-pulse-amplification lasers by clean high-energy seed-pulse injection," *Opt. Comm.* **148**, 70-74 (1998). :1998
- [9] A. Dubietis, G. Jonusauskas, and A. Piskarskas, "Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal," *Opt. Comm.* **88**, 437-440 (1992). :1992
- [10] H. Yoshida, E. Ishii, R. Kodama, H. Fujita, Y. Kitagawa, Y. Izawa, and T. Yamanaka, "High-power and high-contrast optical parametric chirped pulse amplification by β -BaB₂O₄ crystal," *Opt. Lett.* **28**, 257-259 (2003). :2003
- [11] C. Dorrer, I. Begishev, A. Okishev, and J. Zuegel, "High-contrast optical-parametric amplifier as a front end of high-power laser systems," *Opt. Lett.* **32**, 2143-2145 (2007). :2007

- [12] H. Kiriya, M. Mori, Y. Nakai, T. Shimomura, M. Tanoue, A. Akutsu, H. Okada, T. Motomura, S. Kondo, S. Kanazawa, A. Sagisaka, J. Ma, I. Daito, H. Kotaki, H. Daido, S. Bulanov, T. Kimura, and T. Tajima, "Generation of high-contrast and high-intensity laser pulses using an OPCPA preamplifier in a double CPA, Ti:sapphire laser system," *Opt. Comm.* **282**, 625–628 (2009). :2009
- [13] S. Adachi, N. Ishii, T. Kanai, A. Kosuge, J. Itatani, Y. Kobayashi, D. Yoshitomi, K. Torizuka, and S. Watanabe, "5-fs, multi-mJ, CEP-locked parametric chirped-pulse amplifier pumped by a 450-nm source at 1 kHz," *Opt. Exp.* **16**, 14341–14352 (2008). :2008
- [14] A. Renault, F. Augé-Rochereau, T. Planchon, P. d'Oliveira, T. Auguste, G. Chériaux and J. P. Chambaret, "ASE contrast improvement with a nonlinear filtering Sagnac Interferometer," *Opt. Comm.* **248**, 535–541 (2005). :2005
- [15] R. W. Boyd, "Nonlinear Optics," Academic Press, Boston, 161–171 (1992). :NLO
- [16] Stolen, R. H., Botineau, I. and Ashkin, A., "Intensity discrimination of optical pulses with birefringent fibers," *Opt. Lett.* **7**, 512–514 (1982). :1982
- [17] Winful, H. G., "Self-induced polarization changes in birefringent optical fibers," *Appl. Phys. Lett.* **47**, 213 (1985). :1985
- [18] Jullien, A.; Augé-Rochereau, F.; Chériaux, G.; Chambaret, J.-P.; d'Oliveira, P.; Auguste, T. and Falcoz, F. "High-efficiency, simple setup for pulse cleaning at the millijoule level by nonlinear induced birefringence," *Opt. Lett.*, OSA, 2004, 29, 2184-2186. [31](#)
- [19] A. Jullien, O. Albert, F. Burgy, G. Hamoniaux, J. P. Rousseau, J. Chambaret, F. Augé-Rochereau, G. Chériaux, J. Etchepare, N. Minkovski, and S. Saltiel, "10⁻¹⁰ temporal contrast for femtosecond ultraintense lasers by cross-polarized wave generation," *Opt. Lett.* **30**, 920-922 (2005). :2005
- [20] M. Aoyama, T. Harimoto, J. Ma, Y. Akahane, and K. Yamakawa, "Second-harmonic generation of ultra-high intensity femtosecond pulses with a KDP crystal," *Opt. Exp.* **9**, 579–585 (2001). :2001
- [21] A. Marcinkevicius, R. Tommasini, G. D. Tsakiris, K. J. Witte, E. Gaizauskas, and U. Teubner, "Frequency doubling of multi-terawatt femtosecond pulses," *Appl. Phys. B* **79** 547-554 (2004). :2004
- [22] H. Kapteyn, M. Murnane, A. Szoke, and R. Falcone, "Prepulse energy suppression for high-energy ultrashort pulses using self-induced plasma shuttering," *Opt. Lett.* **16**, 490-492 (1991). :1991
- [23] S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane, D. Gold, H. Nathel, and W. White, "Prepulse suppression for high-energy ultrashort pulses using self-induced plasma shuttering from a fluid target," *Opt. Lett.* **18**, 134-136 (1993). :1993

- [24] Doumy, G. and Quéré, F. and Gobert, O. and Perdrix, M. and Martin, Ph. and Audebert, P. and Gauthier, J. C. and Geindre, J.-P. and Wittmann, T., "Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultraintense laser pulses," *Phys. Rev. E* **69** 026402 (2004). :2004
- [25] Kalashnikov, M.; Risse, E.; Schonagel, H.; Husakou, A.; Herrmann, J. and Sandner, W. "Characterization of a nonlinear filter for the front-end of a high contrast double-CPA Ti:sapphire laser," *Opt. Express*, OSA, 2004, 12, 5088-5097. :2004
- [26] M. Kalashnikov, E. Risse, H. Schonagel, and W. Sandner, "Double chirped-pulse-amplification laser: a way to clean pulses temporally," *Opt. Lett.* **30**, 923-925 (2005). :2005
- [27] Homoelle, D., Gaeta, A. L., Yanovsky, V., and Mourou, G., "Pulse contrast enhancement of high-energy pulses by use of a gas-filled hollow waveguide," *Opt. Lett.* **27**, 1646–1648 (2002). :2002
- [28] L. Canova, S. Kourtev, N. Minkovski, A. Jullien, R. Lopez-Martens, O. Albert and S. M. Saitiel, "Efficient generation of cross-polarized femtosecond pulses in cubic crystals with holographic cut orientation," *Appl. Phys. Lett.*, 2008, 92, 1102-1104. :08
- [29] A. I. Kovrigin, D. V. Yakovlev, B. V. Zhdanov, and N. I. Zheludev, "Self-induced optical activity in crystals," *Opt. Comm.* **35**, 92 (1980). :1980
- [30] M. G. Dubenskaya, R. S. Zadoyan, and N. I. Zheludev, "Nonlinear polarization spectroscopy in GaAs crystals: one- and two-photon resonances, excitonic effects, and the saturation of nonlinear susceptibilities," *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 1174–1178 (1985). :1985
- [31] D. Hutchings, J. Aitchison, B. Wherrett, G. Kennedy, and W. Sibbett, "Polarization dependence of ultrafast nonlinear refraction in an AlGaAs waveguide at the half-band gap," *Opt. Lett.* **20**, 991-993 (1995). :1995
- [32] D. Hutchings, J. Aitchison, and J. Arnold, "Nonlinear refractive coupling and vector solitons in anisotropic cubic media," *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 869-879 (1997). :1997
- [33] G. Petrov, O. Albert, J. Etchepare, and S. Saitiel, "Cross-polarized wave generation by effective cubic nonlinear optical interaction," *Opt. Lett.* **26**, 355–357 (2001). :2001
- [34] N. Minkovski, S. Saitiel, G. Petrov, O. Albert, and J. Etchepare, "Polarization rotation induced by cascaded third-order processes," *Opt. Lett.* **27**, 2025–2027 (2002). :2002
- [35] N. Minkovski, G. Petrov, S. Saitiel, O. Albert, and J. Etchepare, "Nonlinear polarization rotation and orthogonal polarization generation experienced in a single-beam configuration," *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 1659–1664 (2004). :2004

- [36] V. Chvykov, P. Rousseau, S. Reed, G. Kalinchenko and V. Yanovsky, "Generation of 10^{11} contrast 50 TW laser pulses," *Opt. Lett.* **31**, 1456–1458 (2006). [34](#)
- [37] M. Kalashnikov, K. Osvay, R. Volkov, H. Schonnel, H. and W. Sandner, "High Temporal Contrast Front End with a multipass Ti:Sa amplifier and a CaF₂-based XPW temporal filter," *CLEO 2011, OSA, CWG3* (2011). [34](#)
- [38] J. Mikhailova, P. Heissler, R. Hoerlein, A. Buck, A. Borot, K. Schmid, C. Sears, L. Waldecker, S. Rykovanov, M. Zepf, F. Krausz, L. Veisz, and G. Tsakiris, "Few-cycle ultrahigh-contrast light pulses for single attosecond pulses in the relativistic regime," *CLEO 2011 San Jose, OSA Technical Digest, LWC4* (2011). [34](#)
- [39] F. Lureau, S. Laux, O. Casagrande, C. Radier, O. Chalus, F. Caradec, and C. Simon-Boisson, "High-energy 1 Hz titanium sapphire amplifier for Petawatt class lasers," *Proc. SPIE 823513* (2012). [34](#)
- [40] 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 front-end for high-power, high temporal quality few-cycle lasers," *Appl. Phys. B*, 2010, 102, 769-774. :10
- [41] J. M. Mikhailova, A. Buck, A. Borot, K. Schmid, C. Sears, G. D. Tsakiris, F. Krausz and L. Veisz, "Ultra-high-contrast few-cycle pulses for multipetawatt-class laser technology," *Opt. Lett.*, 2011, 36, 3145-3147. :11
- [42] T. Oksenhendler, S. Coudreau, N. Forget, V. Crozatier, S. Grabielle, R. Herzog, O. Gobert, and D. Kaplan, "Self-referenced spectral interferometry," *Appl. Phys. B*, 2010, 99, 7-12. :10
- [43] 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). :10
- [44] Y. Zaouter, L. P. Ramirez, D. N. Papadopoulos, C. Honninger, M. Hanna, F. Druon, E. Mottay and P. Georges, "Temporal cleaning of a high-energy fiber-based ultrafast laser using cross-polarized wave generation," *Opt. Lett.*, 2011, 36, 1830-1832. :11
- [45] <http://www.thalesgroup.com> [34](#)
- [46] <http://www.amplitude-technologies.com> [34](#)
- [47] A. Jullien, J. P. Rousseau, B. Mercier, L. Antonucci, O. Albert, G. Chériaux, S. Kourtev, N. Minkovski and S. M. Saitiel, "Highly efficient nonlinear filter for femtosecond pulse contrast enhancement and pulse shortening," *Opt. Lett.*, 2008, 33, 2353-2355. :08

- [48] A. Jullien, O. Albert, G. Chériaux, J. Etchepare, S. Kourtev, N. Minkovski and S. M. Saitiel, "A two crystal arrangement to fight efficiency saturation in cross-polarized wave generation," *Opt. Exp.*, 2006, 14, 2760-2769. :06
- [49] P. M. Paul and L. Canova, "Development of an 10^{-14} Ultra High Contrast Laser System Using High Energy XPW Filtering Scheme," *CLEO 2010, OSA, CTuK6*. :10
- [50] L. P. Ramirez, D. N. Papadopoulos, A. Pellegrina, P. Georges, F. Druon, P. Monot, A. Ricci, A. Jullien, X. Chen, J. P. Rousseau and R. Lopez-Martens, "Efficient cross polarized wave generation for compact, energy-scalable, ultra-short laser sources," *Opt. Exp.*, 2011, 19, 93–98. :11
- [51] Jullien, A.; Kourtev, S.; Albert, O.; Chériaux, G.; Etchepare, J.; Minkovski, N. and Saitiel, S. "Highly efficient temporal cleaner for femtosecond pulses based on cross-polarized wave generation in a dual crystal scheme," *Applied Physics B*, 2006, 84, 409-414. 35
- [52] A. Ricci, A. Jullien, J.- P. Rousseau, Y. Liu, A. Houard, P. Ramirez, D. Papadopoulos, A. Pellegrina, P. Georges, F. Druon, N. Forget and R. Lopez-Martens, "Energy-scalable temporal cleaning device for femtosecond pulses based on cross-polarized wave generation," *Rev. Sci. Inst.* **84**, 043106 (2013). :2013RSI
- [53] G. Agrawal, "Nonlinear Fiber Optics," Academic Press, Fourth Edition, 2007. :book
- [54] Weideman, J. A. C., and Herbst, B. M., "Split-step methods for the solution of the nonlinear Schrodinger equation," *SIAM J. Num. Anal.* **23**, 485–507 (1986). :1986
- [55] Wang, H., "Numerical studies on the split-step finite difference method for nonlinear Schrodinger equations," *Appl. Math. and Comp.* **170**, 17–35 (2004). :2004
- [56] Jullien, A., Durfee, C. G., Trisorio, A., Canova, L., Rousseau, J.-P., Mercier, B., Antonucci, L., Chériaux, G., Albert, O., and Lopez-Martens, R., "Non-linear spectral cleaning of few-cycle pulses via cross-polarized wave (XPW) generation," *Appl. Phys. B* **96**, 293–299 (2009). :2009
- [57] Canova, L. "Generation of high contrast, ultra-short pulses for high repetition rate relativistic optics", Thèse de Doctorat, Ecole Polytechnique, 2009. 44, 162
- [58] Albert, O. "Optique non linéaire ultra-rapide," Manuscrit en vue de l'obtention de l'Habilitation à Diriger des Recherches, Faculté des sciences d'Orsay, ENSTA ParisTech, Université Paris-Sud 11, 2010.