HAL
open science

Mesure du profil temporel exact d'impulsions laser femtosecondes intenses

Jean-François Ripoche

To cite this version:

Jean-François Ripoche. Mesure du profil temporel exact d'impulsions laser femtosecondes intenses. Optique [physics.optics]. Ecole Polytechnique, 1998. Français. NNT : . tel-01508596

HAL Id: tel-01508596

https://ensta-paris.hal.science/tel-01508596

Submitted on 14 Apr 2017

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE de DOCTORAT

de l'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité :

Physique des Lasers

présentée par

Jean-François RIPOCHE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Sujet de la thèse:

MESURE DU PROFIL TEMPOREL EXACT D'IMPULSIONS LASER FEMTOSECONDES INTENSES

Soutenue le 24 juin 1998 devant le jury composé de

M. Jean-Claude Diels	Rapporteur
M. Christos Flytzanis	Président du jury
M. Claude Froehly	Rapporteur
M. André Mysyrowicz	Directeur de thèse
M. Bernard Prade	
M. Claes-Goran Wahlström	

Ce travail a été effectué au Laboratoire d'Optique Appliquée et je remercie son directeur André Antonetti pour son accueil et pour m'avoir permis d'effectuer ces travaux dans les meilleures conditions.

Je suis très reconnaissant à Jean-Claude Diels et à Claude Froehly d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ma thèse. Leurs remarques et suggestions ont été très enrichissantes.

Je tiens également à remercier Christos Flytzanis pour l'intérêt qu'il a porté à mes travaux et pour avoir présidé le jury de thèse.

L'interaction avec le département de physique atomique de l'université de Lund en général et Claes-Göran Wahlström en particulier m'a beaucoup apporté.

André Mysyrowicz a été mon directeur de thèse pendant ces trois années. J'ai en particulier apprecié sa grande disponibilité.
Le travail au quotidien auprès de Bernard Prade fut un réel plaisir. Son enthousiasme et sa curiosité pour tout sont d'excellents stimulants.
Ma thèse s'est déroulée parallèlement à celle de Rüdiger Lange et nous avons pu partager de nombreux aspects de cette expérience.
J'ai également beaucoup appris au contact de Michel Franco, Georges Grillon, Arnaud Chiron et Brigitte Lamouroux.

Une mention spéciale pour leur aide à Christophe Dorrer (rédaction des bulletins POLOQ), à Olivier Albert (M. LaTeX) ainsi qu'à Catherine Le Blanc (pour sa campagne électorale à Santa Fé).

Aucun de mes travaux n'aurait pu être effectué sans l'aide experte de Yves-Bernard André, Pascal Rousseau, Guy Hamoniaux, Pierre Zaparucha, Armindo Dos Santos pour l'électronique et les lasers, de Jean-Lou Charles pour la mécanique et d'Alain Paris pour l'informatique.

Enfin je remercie tous ceux du LOA à qui j'ai fait appel à un moment ou un autre et qui ont toujours été disponibles (dans le désordre): Abdallah Bouhal, Jean Etchepare, Sébastien Ranc, Gilles Rey, Antigoni Alexandrou, Manuel Joffre, Jean-Pierre Likforman, Philippe Balcou, Michel Négrerie, Antoine Rousse, François Salin, Jean-Paul Chambaret, Pierre Agostini, Pierre Breger, Adeline Bonvalet, Jean-Christophe Lambry, Guillaume Lescroart, François-Xavier Camescasse, Régine Muller, Geneviève Mullot, Jean-Claude Pourny, Danièle Hulin, Noelle Yamada, Gilles Darpentigny, Marie-Jo Lécuyer, Dolorès Bourgeault, Fadila Debbou, Monique Rodriguez, Caroline Quoix et Charles-Antoine Gautier.

Table des matières

Introduction **9**

1 Interaction de deux ondes dans un milieu non linéaire **13**

1.1 Équation de propagation non linéaire 14

1.2 Polarisation non linéaire du troisième ordre 19

1.2.1 Calcul de la polarisation 19

1.2.2 Automodulation de phase et autofocalisation 20

1.3 Interaction de deux ondes 28

1.3.1 Ondes en polarisation y 28

1.3.2 Ondes en polarisation x-z 30

1.3.3 Polarisation croisées 31

1.4 Influence de l'autodiffraction 32

2 Recherche de la phase d'une impulsion ultracourte **37**

2.1 Généralités 38

2.2 Modulation de phase induite résolue spectralement 42

2.2.1 Principe et premières propriétés 42

2.2.2 Spectres typiques de modulation de phase induite 51

2.3 Étude numériques 54

2.3.1 Algorithme 54

2.3.2 Impulsion généralisée 55

2.3.3 Cas tests et performances 56

2.3.4 Rôle du paramètre q_{med} 60
2.4 Résultats expérimentaux 64
2.4.1 Dispositif pour la mesure de phase 64
2.4.2 Validation de la méthode 68
2.4.3 Caractérisation de chaînes laser amplifiées du LOA 69
2.4.4 Mesure et amélioration du contraste d'une impulsion 80
2.4.5 Acquisition mono-coup 83
2.5 Conclusion 88

3 Autres expériences pompe-sonde **91**
3.1 Modulation de phase induite dans un plasma. 92
3.1.1 Caractérisation d'impulsions femtosecondes par modulation de phase induite dans un plasma 98
3.1.2 Comparaison de l'ionisation dans l'argon et dans l'air 104
3.2 Dynamique temporelle de l'indice non linéaire 108
3.2.1 Un cas d'école: le disulfure de carbone (CS_2) 109
3.2.2 Cas de l'air 111

Conclusion et perspectives **121**

A Transformée de Fourier: définitions et propriétés **125**
1 Définitions 125
2 Propriétés 126

B Largeurs à mi-hauteur en temps et en fréquence **127**
1 Produit $\langle t^2 \rangle \langle \nu^2 \rangle$ 127
2 Largeur temporelle minimale pour un spectre donné 128

Bibliographie **131**

Table des figures **141**

Liste des tableaux **145**

Introduction

Ces dix dernières années ont vu un développement extraordinaire des sources lasers à impulsions courtes. La durée des impulsions s'approche ainsi de la durée d'un seul cycle optique qui est de l'ordre de la femtoseconde (10^{-15} seconde) dans le visible et le proche infrarouge. De plus, l'utilisation de ce type de sources devient de plus en plus courante à la fois pour la réalisation de sources secondaires et pour des applications fondamentales et pratiques.

Au fur et à mesure que l'usage des impulsions ultracourtes se répand, il devient de plus en plus important d'être capable de les mesurer. Tout d'abord, il est nécessaire de connaître avec précision les impulsions produites par les sources existantes afin de mieux comprendre le fonctionnement de celles-ci et de valider les modèles qui le décrivent. Cela permet également de comprendre les limitations des systèmes actuels avant de progresser vers des impulsions encore plus courtes.

Les sources secondaires obtenues à partir de lasers femtosecondes se situent principalement dans le domaine de longueur d'ondes XUV. En effet, un laser intense focalisé dans un jet de gaz produit des harmoniques d'ordre impair et cet ordre peut être très élevé. Pour pouvoir être utilisées ensuite ces sources doivent être le plus intense possible, or le rendement de conversion et les caractéristiques des harmoniques générés dépendent de celles du fondamental. On peut aussi créer un rayonnement X de courte durée en focalisant une impulsion courte et intense sur une cible solide [1].

Enfin, l'issue et l'interprétation de nombreuses expériences réalisées à l'aide d'impulsions ultracourtes sont liées à leurs caractéristiques. Ainsi la photodissociation de certaines molécules peut être beaucoup plus efficaces lorsqu'on utilise des impulsions ayant une phase qui varie au cours de l'impulsion qu'avec des impulsions dont la phase est constante. De même,

l'inversion de population électronique d'une molécule est optimale lorsque des impulsions possédant une phase quadratique positive sont utilisées [2].

L'objet de mon travail de thèse était de mettre au point une technique simple et robuste afin de pouvoir caractériser en amplitude et en phase les impulsions ultracourtes produites par différentes chaines lasers du laboratoire d'optique appliquée. Cette méthode devait également pouvoir être utilisée pour la caractérisation de sources secondaires dont la longueur d'onde peut varier du proche infrarouge ($\lambda \simeq 1$ μm) au proche ultraviolet (par exemple $\lambda = 266$ nm pour l'harmonique 3 d'un laser saphir-titane).

A la suite des travaux antérieurs sur la recherche de la phase d'impulsions femtosecondes qui s'appuyaient sur l'analyse de spectres d'automodulation de phase [3, 4], nous avons voulu explorer de manière plus précise la dynamique temporelle de la variation non linéaire de l'indice de réfraction induite par un faisceau laser intense. Pour cela, nous avons décidé de mettre en place une expérience de type pompe-sonde: le faisceau est divisé en deux répliques d'intensités inégales, l'une appelée pompe est intense et l'autre appelée sonde est de faible intensité. La pompe induit une variation non linéaire de l'indice de réfraction dans un échantillon et la sonde se propage dans la zone illuminée par le faisceau intense. L'information sur la dynamique temporelle du phénomène est obtenue en faisant varier le retard entre les deux ondes. De plus, le spectre de l'onde de sonde est enregistré pour différentes valeurs du retard.

L'étude de plusieurs types de milieux non linéaires était possible. Le cas le plus simple est celui des matériaux pour lesquels la variation non linéaire de l'indice de réfraction est proportionnelle à l'intensité du champ de l'onde incidente (effet Kerr instantané). Nous avons alors montré qu'un simple calcul en fonction du retard entre pompe et sonde du moment d'ordre 1 (ou centre de gravité) des spectres de la sonde donne la dérivée de l'autocorrélation en intensité de l'impulsion incidente [5]. Toutefois, pour obtenir une caractérisation complète d'une impulsion ultracourte, il a été nécessaire de mettre au point un algorithme pour le traitement des spectres. Celui-ci est simple, rapide et robuste. Les expériences numériques qui ont été conduites n'ont pas permis d'identifier de cas insolubles ou ambigus [6].

L'étape suivante a été de caractériser plusieurs sources laser amplifiées disponibles au laboratoire. Deux de celles-ci fonctionnent avec un taux de répétition de 10 Hertz et la dernière fonctionne au kiloHertz. Les impulsions infrarouges ($\lambda = 800$ nm) ont des durées

comprises entre 30 et 300 femtosecondes. Le second harmonique de ces lasers a également été caractérisé, la génération du rayonnement ultraviolet ayant lieu dans un cristal non linéaire tel que le BBO ou le KDP [7]. De plus, nous avons montré qu'il est possible d'acquérir en un seul tir laser un ensemble de spectres de la sonde correspondant à plusieurs valeurs du retard.

Enfin, les expériences pompe-sonde résolues spectralement ont été étendues à d'autres milieux non linéaires. Le premier de ceux-ci est un gaz à pression atmosphérique faiblement ionisé (air ou argon). La variation du centre de gravité des spectres de la sonde donne une caractérisation partielle du profil temporel de l'impulsion puisqu'on obtient une corrélation d'ordre élevé de celle-ci [8]. Cette technique permet également d'avoir accès à la fonction de réponse de milieux où l'effet Kerr présente une composante retardée. En particulier, l'air est un de ces milieux [9].

Tous ces points sont développés dans la suite de ce mémoire. Le chapitre 1 présente les éléments d'optique non linéaire de base qui sont nécessaires à la compréhension des phénomènes physiques qui peuvent avoir lieu au cours de la propagation d'une impulsion ultracourte ou au cours de l'interaction de deux ondes dans un milieu présentant une réponse non linéaire du troisième ordre instantanée. Nous verrons ainsi qu'une onde se propageant dans un tel milieu peut voir son profil temporel ou spectral modifié. De plus, nous déterminerons les conditions dans lesquelles il est possible pour un faisceau intense d'induire au cours de l'interaction dans le milieu non linéaire une modulation de phase pure sur un faisceau de faible intensité.

Nous consacrerons le chapitre 2 à la description de la méthode qui permet de caractériser en amplitude et en phase des impulsions femtosecondes intenses. Nous commencerons par exposer le principe de la méthode qui repose sur l'analyse spectrale d'un faisceau de faible intensité (la sonde) qu'une réplique intense (la pompe) a modulé en phase. Ceci est suivi d'une étude numérique de l'algorithme simple, rapide et robuste dont l'utilisation est nécessaire pour extraire l'information recherchée des données expérimentales. Enfin, de nombreux exemples de mesures sont présentés. Ces exemples couvrent à la fois un large spectre de durées d'impulsion et différentes longueurs d'ondes (proche infrarouge et proche ultraviolet). Nous montrons de plus que l'acquisition des données peut être réalisée en un seul tir laser sans dégrader la qualité des résultats.

Dans le dernier chapitre, nous étendons l'utilisation d'expériences pompe-sonde résolues spectralement aux gaz ionisés et aux milieux Kerr présentant une réponse retardée en plus de la réponse instantanée. La modulation de phase induite dans un plasma permet de caractériser des impulsions ultracourtes ou bien de comparer la dynamique de l'ionisation dans différents gaz. Nous montrons en effet qu'un traitement simple (qui ne fait pas appel à un algorithme itératif) des données expérimentales fournit la corrélation d'ordre N d'une impulsion où N est le nombre de quanta requis pour ioniser le gaz. Ce même traitement utilisé lorsque le milieu d'interaction est un milieu Kerr avec une réponse retardée (ici l'air) permet de séparer et de déterminer l'importance relative des contributions instantanées et retardées.

Chapitre 1

Interaction de deux ondes dans un milieu non linéaire

La méthode de recherche de la phase d'impulsions ultracourtes repose sur un effet non linéaire intervenant lors de l'interaction de deux ondes dans un milieu Kerr à réponse instantanée, la modulation de phase induite. Ce chapitre présente les éléments théoriques de l'optique non linéaire qui permettent d'établir les équations qui régissent l'interaction de deux impulsions dans un milieu non linéaire de ce type.

Nous commencerons par rappeler l'équation de propagation non linéaire dans un milieu homogène. Nous nous intéressons à des impulsions courtes ce qui nous amène à étudier l'influence de la dispersion de vitesse de groupe qui intervient même en régime linéaire.

Nous étudions ensuite le cas d'un milieu isotrope pour lequel le terme de perturbation non linéaire d'ordre le plus bas est celui du troisième ordre en champ électrique. Nous verrons alors comment les caractéristiques spectrales, temporelles et spatiales d'une impulsion intense ultracourte peuvent être modifiées au cours de la propagation dans un tel milieu.

Nous terminerons par l'étude de l'interaction de deux ondes dans différentes configurations de polarisation, mettant ainsi en évidence la possibilité qu'a une impulsion intense d'induire une modulation de phase pure sur une impulsion de faible intensité se propageant dans le même milieu non linéaire. L'importance de l'autodiffraction qui accompagne la modulation de phase induite est aussi discutée.

1.1 Équation de propagation non linéaire

Nous allons tout d'abord établir l'équation régissant la propagation d'un champ électromagnétique dans un milieu donné. Pour cela, on part des équations de Maxwell dans l'approximation dipolaire qui s'écrivent:

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \times \mathbf{E} &= -\dfrac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\ \vec{\nabla} \times \mathbf{H} &= \dfrac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{I} \\ \vec{\nabla}.\mathbf{D} &= \rho \\ \vec{\nabla}.\mathbf{B} &= 0 \end{cases} \tag{1.1.1}$$

où $\mathbf{E}$ et $\mathbf{B}$ sont les champs électrique et magnétique, $\mathbf{I}$ la densité de courant et ρ la densité de charge macroscopique. A cela, il faut ajouter les relations constitutives suivantes:

$$\begin{cases} \mathbf{D} &= \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \\ \mathbf{B} &= \mu(\mathbf{H} + \mathbf{M}) \end{cases} \tag{1.1.2}$$

Dans un milieu globalement neutre ($\rho = 0$ et $\mathbf{I} = 0$) et non magnétique ($\mu = \mu_0$ et $\mathbf{M} = 0$), les jeux d'équations précédents permettent d'obtenir l'équation de propagation du champ électrique de l'onde électromagnétique:

$$\vec{\nabla} \times \left[\vec{\nabla} \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)\right] + \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = -\frac{1}{\varepsilon_0 c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} \tag{1.1.3}$$

car $\varepsilon_0 \mu_0 c^2 = 1$. $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ est la polarisation du milieu qu'on peut décomposer en la somme d'un terme dépendant linéairement du champ électrique et d'un terme dépendant du champ électrique de façon non linéaire. Elle s'écrit alors:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t) &= \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \chi^{(1)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t').\mathbf{E}(\mathbf{r}', t') d\mathbf{r}' dt' \\ &\quad + \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \chi^{(2)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t'; \mathbf{r} - \mathbf{r}", t - t") : \mathbf{E}(\mathbf{r}', t')\mathbf{E}(\mathbf{r}", t") d\mathbf{r}' dt' d\mathbf{r}" dt" + \ldots \end{aligned} \tag{1.1.4}$$

Si $\mathbf{E}$ peut être décomposé en une somme d'ondes planes monochromatiques, on peut écrire

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_i \mathbf{E}(\mathbf{k}_i, \omega_i)$$

et la polarisation peut elle aussi être décomposée en ondes planes. On a alors

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \sum_i \mathbf{P}(\mathbf{k_i},\omega_i)$$

Là aussi, la polarisation s'écrit comme une somme de termes linéaires et non linéaires en champ. On obtient alors pour une composante donnée

$$\begin{aligned}\mathbf{P}(\mathbf{k},\omega) &= \varepsilon_0 \left[\chi^{(1)}(\mathbf{k},\omega)\mathbf{E}(\mathbf{k},\omega) + \chi^{(2)}(\mathbf{k}=\mathbf{k_i}+\mathbf{k_j},\omega=\omega_i+\omega_j) : \mathbf{E}(\mathbf{k_i},\omega_i)\mathbf{E}(\mathbf{k_j},\omega_j)\right.\\ &\quad \left. +\chi^{(3)}(\mathbf{k}=\mathbf{k_i}+\mathbf{k_j}+\mathbf{k_l},\omega=\omega_i+\omega_j+\omega_l) : \mathbf{E}(\mathbf{k_i},\omega_i)\mathbf{E}(\mathbf{k_j},\omega_j)\mathbf{E}(\mathbf{k_l},\omega_l) + \ldots\right]\end{aligned} \tag{1.1.5}$$

$\chi^{(1)}$ est un scalaire, $\chi^{(2)}$ une matrice complexe et $\chi^{(3)}$ un tenseur complexe de rang 3. La polarisation linéaire est:

$$\mathbf{P_L}(\mathbf{k},\omega) = \varepsilon_0\chi^{(1)}(\mathbf{k},\omega)\mathbf{E}(\mathbf{k},\omega)$$

et en regroupant tous les termes linéaires en $\mathbf{E}$ dans l'équation de propagation, on obtient:

$$\vec{\nabla}\times\left[\vec{\nabla}\times\mathbf{E}(\mathbf{k},\omega)\right] - \frac{\omega^2\left(1+\chi^{(1)}\right)}{c^2}\mathbf{E}(\mathbf{k},\omega) = \frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2}\mathbf{P_{NL}}(\mathbf{k_{NL}},\omega) \tag{1.1.6}$$

où $\mathbf{P_{NL}}$ est la polarisation non linéaire. $\mathbf{k_{NL}}$ n'est pas forcément égal à $\mathbf{k}$. De plus, la polarisation non linéaire contient des termes à des fréquences qui peuvent être différentes de ω. Dans l'équation précédente, on ne s'intéresse qu'aux termes oscillant à la même fréquence ω que le champ. L'équation 1.1.6 est une équation des ondes dans laquelle $\mathbf{P_{NL}}$ apparaît comme un terme source. En l'absence de celui-ci, elle admet des solutions qui se propagent à la vitesse c/n où $n = \sqrt{1+\chi^{(1)}}$ est l'indice de réfraction linéaire du milieu.

Approximations

Il est courant de faire certaines approximations dans l'équation de propagation non linéaire 1.1.6. Prenons le cas où toutes les ondes sont planes et se propagent suivant l'axe Oz, les effets de diffraction sont alors négligés. Le champ électrique s'écrit:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{e}(z)e^{i(kz-\omega t)} + c.c. \tag{1.1.7}$$

La première approximation est celle dite de l'enveloppe lentement variable. C'est une conséquence du fait que les transferts d'énergie entre différentes ondes n'est significatif que pour

des distances d'interaction largement supérieures à la longueur d'onde. Dans le cadre de cette hypothèse

$$\left|\frac{\partial^2 \mathbf{e}(z)}{\partial z^2}\right| \ll \left|k\frac{\partial \mathbf{e}(z)}{\partial z}\right|$$

On montre alors [10] que cela conduit à une nouvelle équation de propagation

$$i2k\frac{\partial \mathbf{e}(z)}{\partial z} = -\frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2}\mathbf{P}_{\mathbf{NL}}(z,\omega) \tag{1.1.8}$$

Cette équation différentielle est du premier ordre alors que l'équation 1.1.6 est du deuxième ordre. Si l'amplitude dépend en plus du temps ($\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{e}(z,t)e^{i(kz-\omega t)} + c.c.$), alors l'approximation de l'enveloppe lentement variable est encore valable mais il faut écrire l'équation en fonction du temps retardé $t_r = t - z/v_g$ où v_g est la vitesse de groupe définie par $v_g = \left(\frac{dk}{d\omega}\right)^{-1}$. On obtient

$$i2k\frac{\partial \mathbf{e}(z,t_r)}{\partial z} + \frac{k}{{v_g}^2}\frac{dv_g}{d\omega}\frac{\partial^2 \mathbf{e}(z,t_r)}{\partial {t_r}^2} = -\frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2}\mathbf{P}_{\mathbf{NL}}(z,t_r) \tag{1.1.9}$$

On note qu'on a la relation

$$k" = -\frac{1}{{v_g}^2}\frac{dv_g}{d\omega} = \frac{d^2k}{d\omega^2}$$

et l'équation de propagation s'écrit alors

$$i2\frac{\partial \mathbf{e}(z,t_r)}{\partial z} - k"\frac{\partial^2 \mathbf{e}(z,t_r)}{\partial {t_r}^2} = -\frac{\omega^2}{\varepsilon_0 k c^2}\mathbf{P}_{\mathbf{NL}}(z,t_r) \tag{1.1.10}$$

Il est en général possible de négliger le terme qui correspond à la dispersion de vitesse de groupe. Cependant ce n'est pas tout le temps le cas, en particulier lorsque l'on considère des impulsions dont la durée est inférieure à 50 femtosecondes. L'étude qui suit permet de cerner les conditions pour lesquelles cette approximation est justifiée.

Propagation d'impulsions femtosecondes: influence de la dispersion de vitesse de groupe

Considérons le cas d'un champ électrique polarisé linéairement, on a alors:

$$\mathbf{e}(z,t_r) = e(z,t_r)\hat{\mathbf{x}}$$

Si la polarisation non linéaire est négligeable, on obtient l'équation de propagation suivante:

$$\frac{\partial e(z,t_r)}{\partial z} + \frac{i}{2}k" \frac{\partial^2 e(z,t_r)}{\partial {t_r}^2} = 0$$

Cette équation se résout facilement en en prenant la transformée de Fourier pour passer dans le domaine des fréquences puis en intégrant suivant z, on obtient alors

$$\tilde{e}(z,\omega) = \tilde{e}(0,\omega)\exp\left[\frac{i}{2}k"\omega^2 z\right] \tag{1.1.11}$$

où $\tilde{e}(z,\omega) = \mathbf{TF}\left[e(z,t_r)\right]$. Si en $z = 0$ on prend une impulsion gaussienne de largeur à mi-hauteur en intensité T et de phase constante, l'enveloppe est

$$e(z=0,t_r) = A_0 \exp\left[-a^2\frac{t_r^2}{2T^2}\right] \tag{1.1.12}$$

où A_0 est une constante et $a^2 = 4\ln 2$. Après propagation (en $z \neq 0$), on a toujours une gaussienne mais qui s'est élargie et dont la largeur T_z est donnée par [11]:

$$T_z = T\sqrt{1 + \left(\frac{a^2 k" z}{T^2}\right)^2}$$

On définit la longueur de dispersion L_D comme la distance de propagation pour laquelle $T_z = \sqrt{2}T$ d'où

$$L_D = \frac{T^2}{a^2\,|k"|}$$

Le calcul de L_D donne une idée de l'épaisseur de matériau qu'une impulsion de durée donnée peut traverser sans subir de changements importants. Cependant, la longueur de dispersion correspond à la propagation d'une impulsion en absence d'effets non linéaires. En général, l'action concertée de ceux-ci et de la dispersion conduit à un élargissement notable de l'impulsion sur des distances de propagation inférieures à L_D. Les formules de Sellmeier donnent la dépendance de l'indice de réfraction n en fonction de la longueur d'onde ce qui nous amène à exprimer $k"$ en fonction des dérivées de n par rapport à λ. On obtient

$$k"(\lambda) = \frac{\lambda^3}{2\pi c}\frac{d^2 n(\lambda)}{d\lambda^2}$$

dont on peut calculer la valeur pour quelques matériaux usuels (tableau 1.1). Il est également possible de mesurer $k"(\lambda)$ sans utiliser les dérivées de l'indice grâce à l'interférométrie

Milieu	k'' en fs^2 (λ=800nm)	L_D (T=100 fs)	L_D (T=30 fs)
Silice	36112	10 cm	0.9 cm
BK7 (verre)	44486	8 cm	0.7 cm
Eau	23319	15 cm	1.4 cm
Argon (P=1 atm) [12]	20	182 m	16 m
Air (P=1 atm) [13]	21	169 m	15 m

TAB. 1.1 – *Dispersion de vitesse de groupe et longueur de dispersion dans différents milieux pour des impulsions gaussiennes de durée égale à 100 et à 30 femtosecondes*

en lumière blanche [14]. En réalité, la durée de l'impulsion dépend de la phase initiale de l'impulsion et les valeurs du tableau 1.1 ne donnent que des indications sur l'effet de la dispersion de vitesse de groupe. On peut le constater en prenant une impulsion toujours gaussienne mais avec une phase temporelle parabolique, soit

$$e(0,t_r) = A_0 \exp\left[-\frac{a^2}{2}(1+iC)\frac{t_r^2}{T^2}\right]$$

où C représente la quantité de phase quadratique ou chirp en anglais. On passe ensuite dans l'espace des fréquences pour obtenir

$$\tilde{e}(z,\omega) \propto \exp\left[-\frac{T^2}{2a^2}\frac{\omega^2}{1+iC}\right]\exp\left[\frac{i}{2}k''\omega^2 z\right]$$

Le retour à la dépendance en temps donne alors

$$e(z,t_r) \propto \exp\left[\frac{a^2(1+iC)t_r^2}{2\left[T^2 - ik''(1+iC)a^2 z\right]}\right] \tag{1.1.13}$$

L'impulsion est encore de forme gaussienne et sa largeur à mi-hauteur en intensité vaut

$$T_z = T_0\sqrt{\left(1+\frac{k''Ca^2z}{T^2}\right)^2 + \left(\frac{k''a^2z}{T^2}\right)^2}$$

$k''C$ peut être négatif ou positif ce qui induit des évolutions différentes. Dans le cas $k''C < 0$, la durée diminue d'abord pour augmenter ensuite. Sa valeur minimum T_{min} est obtenue pour

$z = z_{min}$ tel que

$$\begin{aligned} z_{min} &= \frac{|C|}{1+C^2} L_D \\ T_{min} &= \frac{T}{\sqrt{1+C^2}} \end{aligned} \tag{1.1.14}$$

Dans le cas contraire. elle ne fait qu'augmenter. Pour une phase initiale quelconque, il faut avoir recours à un calcul numérique des transformées de Fourier pour connaître l'évolution des impulsions.

1.2 Polarisation non linéaire du troisième ordre

1.2.1 Calcul de la polarisation

Dans ce qui suit, on considère la polarisation non linéaire du troisième ordre $\mathbf{P}^{(3)}$ induite dans un milieu transparent, isotrope et centrosymétrique. Le tenseur $\chi^{(2)}$ est nul pour les milieux centrosymétriques. Par raison de symétrie, les seuls coefficients non nuls de la susceptibilité non linéaire d'ordre 3 sont $\chi^{(3)}_{iiii}$, $\chi^{(3)}_{iijj}$, $\chi^{(3)}_{ijji}$ et $\chi^{(3)}_{ijij}$ où i et j représentent chacun une coordonnée d'espace (x, y ou z) différente. On a de plus les relations suivantes [15]:

$$\begin{cases} \chi^{(3)}_{xxxx} = \chi^{(3)}_{yyyy} = \chi^{(3)}_{zzzz} \\ \chi^{(3)}_{xxyy} = \chi^{(3)}_{yyxx} = \chi^{(3)}_{xxzz} = \chi^{(3)}_{zzxx} = \chi^{(3)}_{yyzz} = \chi^{(3)}_{zzyy} \\ \chi^{(3)}_{xyyx} = \chi^{(3)}_{yxxy} = \chi^{(3)}_{xzzx} = \chi^{(3)}_{zxxz} = \chi^{(3)}_{yzzy} = \chi^{(3)}_{zyyz} \\ \chi^{(3)}_{xyxy} = \chi^{(3)}_{yxyx} = \chi^{(3)}_{xzxz} = \chi^{(3)}_{zxzx} = \chi^{(3)}_{yzyz} = \chi^{(3)}_{zyzy} \end{cases}$$

et

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

On rappelle que les projections de $\mathbf{P}^{(3)}$ sur les axes sont définies par

$$P_i^{(3)} = \varepsilon_0 \sum_{jkl} \chi^{(3)}_{ijkl} E_j E_k E_l$$

où $\mathbf{E}$ est le champ électrique total tel que

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = [\mathbf{e}(\mathbf{r}.t)\exp[i(\mathbf{k}.\mathbf{r} - \omega t)] + c.c.]$$

On obtient alors à l'aide des relations ci-dessus

$$P_i^{(3)} = \varepsilon_0 \chi_{iiii}^{(3)} \left[{E_i}^2 + {E_j}^2 + {E_k}^2\right] E_i \tag{1.2.15}$$

avec $i \neq j \neq k$.

1.2.2 Automodulation de phase et autofocalisation

Dans ce qui suit, nous allons étudier les modifications spectrales et spatiales que peut induire la présence d'une polarisation non linéaire. Voyons ce que devient l'équation de propagation non linéaire en utilisant la polarisation calculée dans l'équation 1.2.15. On considère un champ électrique polarisé linéairement suivant y se propageant suivant l'axe Oz et possédant une extension spatiale infinie

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \left[e(z,t)e^{i(kz-\omega t)} + c.c.\right]\hat{\mathbf{y}}$$

alors on a

$$\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_0 \chi_{yyyy}^{(3)} \left[e(z,t)e^{i(kz-\omega t)} + c.c.\right]^3 \hat{\mathbf{y}}$$

On ne garde que les termes à la fréquence ω et de même vecteur d'onde que le champ excitateur, ce qui donne

$$\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},t) = 3\varepsilon_0 \chi_{yyyy}^{(3)} |e(z,t)|^2 \mathbf{E}(\mathbf{r},t) \tag{1.2.16}$$

Dans tout ce qui suit, on note t le temps retardé. On reporte le résultat précédent dans l'équation de propagation pour obtenir

$$\frac{de(z,t)}{dz} = i\frac{3k\chi_{yyyy}^{(3)}}{2{n_0}^2}|e(z,t)|^2 e(z,t)$$

où $k = 2\pi n_0/\lambda$ et λ est la longueur d'onde dans le vide. On peut aussi écrire que la polarisation totale est la somme des polarisations linéaires et non linéaires:

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \mathbf{P_L}(\mathbf{r},t) + \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},t) = \varepsilon_0 \left[\chi^{(1)} + 3\chi_{yyyy}^{(3)}|e(z,t)|^2\right] \mathbf{E}(\mathbf{r},t)$$

Par extension, nous pouvons alors définir un indice de réfraction effectif donné par

$$n^2 = 1 + \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)}_{yyyy}|e(z,t)|^2$$

La correction d'indice due à la polarisation d'ordre 3 est petite devant l'indice de réfraction du milieu $n_0 = \sqrt{1+\chi^{(1)}}$ d'où

$$n = n_0 + \frac{3\chi^{(3)}_{yyyy}}{2n_0}|e(z,t)|^2$$

ce qui s'écrit encore

$$n = n_0 + \overline{n}_2|e(z,t)|^2$$

avec $\overline{n}_2 = \dfrac{3\chi^{(3)}_{yyyy}}{2n_0}$. L'indice de réfraction effectif dépend de l'intensité de l'onde ce qui conduit à plusieurs effets que nous allons évoquer dans ce qui suit. L'équation de propagation dans un tel milieu s'écrit alors

$$\frac{de(z,t)}{dz} = i\frac{k}{n_0}\overline{n}_2|e(z,t)|^2 e(z,t) \tag{1.2.17}$$

ou encore

$$\frac{de(z,t)}{dz} = i\frac{2\pi}{\lambda}\overline{n}_2|e(z,t)|^2 e(z,t)$$

où λ est la longueur d'onde dans le vide. Le module de e(z,t) est conservé au cours de la propagation comme on peut le voir en calculant $\dfrac{d|e(z,t)|^2}{dz}$:

$$\frac{d|e(z,t)|^2}{dz} = e^*(z,t)\frac{de(z,t)}{dz} + e(z,t)\frac{de^*(z,t)}{dz}$$

où e^* dénote le complexe conjugué de e. Il suffit d'insérer l'équation 1.2.17 dans l'expression précédente pour obtenir $\dfrac{d|e(z,t)|^2}{dz} = 0$. L'intégration de l'équation de propagation est alors évidente et donne:

$$e(z,t) = e(0,t)\exp\left[i\frac{2\pi}{\lambda}\overline{n}_2 z|e(0,t)|^2\right]$$

L'impulsion acquiert une phase non linéaire au cours de la propagation, tout en gardant une intensité constante. Cela se traduit par une modulation du spectre, ce phénomène est appelé ***automodulation de phase***. De nouvelles fréquences sont créées, pour le constater on peut introduire la notion de fréquence instantanée

$$\omega_i = -\frac{d\phi}{dt}$$

où ϕ est la phase totale du champ complexe. Dans le cas de l'automodulation de phase, on obtient en négligeant la phase propre de l'impulsion

$$\omega_i = \omega - \frac{2\pi}{\lambda}\overline{n}_2 z \frac{d|e(0,t)|^2}{dt}$$

Quand $|e(0,t)|^2$ augmente (diminue), ω_i est inférieur (supérieur) à ω. De plus, la même fréquence instantanée peut correspondre à deux (ou plus) instants dans l'impulsion. Selon la phase relative de ces deux points, on obtient alors une interférence constructive ou bien destructive. D'après ce qui précède, les spectres après automodulation de phase sont donc de largeur différente de celle des spectres initiaux et sont modulés et cannelés[1]. Un exemple de spectre avant et après propagation dans une lame de verre (BK7) est donné sur la figure 1.1 pour une impulsion dont la durée est de 150 femtosecondes et dont l'intensité crête vaut 60 GW/cm^2. Le spectre s'est élargi, des bosses ont apparu aux longueurs plus courtes et plus élevées et un creux s'est formé au centre. Comme pour les changements induits dans le profil temporel d'une impulsion par la dispersion de vitesse de groupe, la modification exacte du spectre dépend de la phase initiale de l'impulsion, cependant on peut donner quelques traits généraux de l'action de l'automodulation de phase. Par exemple, lorsque l'impulsion présente une phase quadratique négative, la largeur du spectre diminue. Elle augmente pour une phase quadratique positive. On peut aussi utiliser l'automodulation de phase pour la caractérisation d'impulsions ultracourtes [3, 4]

Automodulation de phase et dispersion de vitesse de groupe

Dans un cas plus général, il faut tenir compte à la fois de l'automodulation de phase et de la dispersion de vitesse de groupe dans l'équation de propagation non linéaire. L'équation 1.1.9 donne

$$\frac{\partial e(z,t)}{\partial z} + \frac{i}{2}k'' \frac{\partial^2 e(z,t)}{\partial t^2} = i\frac{2\pi}{\lambda}\overline{n}_2 |e(z,t)|^2 e(z,t) \tag{1.2.18}$$

Cette équation est encore appelée équation de Schrödinger non linéaire. Elle régit aussi la propagation d'impulsions dans les fibres optiques. Il n'y a pas en général de solution exacte à l'équation 1.2.18 et il faut donc la résoudre numériquement. L'algorithme le plus simple est un algorithme à pas séparés pour lequel on sépare les effets dus à la dispersion de vitesse de groupe et ceux dus à la variation non linéaire de l'indice de réfraction [11]. Cependant il existe

1. La largeur σ d'un spectre est définie par: $\sigma = \int_{-\infty}^{+\infty} \omega^2 |e(\omega)|^2 d\omega / \int_{-\infty}^{+\infty} |e(\omega)|^2 d\omega$

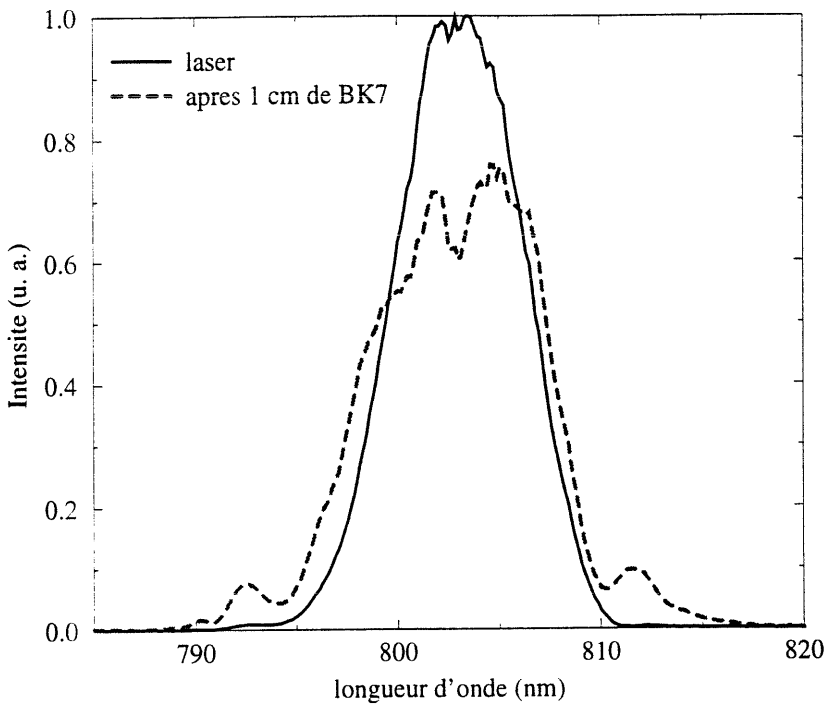
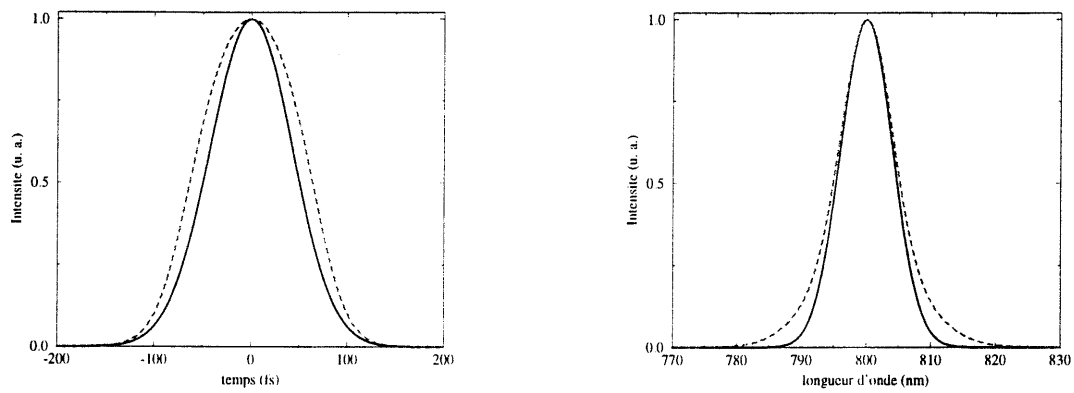


FIG. 1.1 – *Spectres d'automodulation de phase après propagation non linéaire dans un centimètre de verre (BK7). La durée de l'impulsion est de 150 fs et son intensité crête vaut 60 GW/cm^2. Le spectre ayant subi de l'automodulation de phase (pointillés) est plus large que celui avant la lame de verre (trait plein). De plus, des modulations (creux et bosses) sont apparues.*

une solution analytique particulière qui correspond à des impulsions qui ne se déforment pas au cours de la propagation, les solitons. On peut noter que la plupart des matériaux que nous utilisons possèdent une dispersion de vitesse de groupe positive ($k" > 0$) pour les longueurs d'onde considérées. Pour la silice, elle devient négative pour $\lambda > 1{,}3$ μm. De même, $\overline{n}_2$ est une quantité positive dans la majorité des cas. Alors, dans la configuration $k" > 0$ et $\overline{n}_2 > 0$, l'automodulation de phase et la dispersion de vitesse de groupe ont la même influence sur l'impulsion. En effet, l'automodulation de phase tend à créer de nouvelles fréquences et donc à élargir le spectre. La dispersion de vitesse de groupe positive étale encore plus ces nouvelles fréquences dans le temps, ce qui allonge encore plus la durée de l'impulsion que dans le cas où l'indice non linéaire $\overline{n}_2$ est négligeable. Les valeurs des longueurs de dispersion données dans le tableau 1.1 donnent donc une limite supérieure à la distance de propagation pour laquelle l'effet de la dispersion de vitesse de groupe est notable. La figure 1.2 permet la comparaison



a) b)

FIG. 1.2 – *Influence de la dispersion de vitesse de groupe en présence (pointillés) ou non (trait plein) d'automodulation de phase: a) impulsions et b) spectres. La dispersion seule ne modifie ni le spectre, ni le profil temporel de l'impulsion. Les courbes en trait plein représentent donc à la fois les profils initiaux et ceux obtenus en ne tenant compte que de la dispersion de vitesse de groupe. Par contre, en présence d'automodulation de phase à la fois le spectre et l'impulsion sont élargis.*

de l'effet de la dispersion en présence ou en absence d'effets non linéaires dans la silice. Sans automodulation de phase c'est-à-dire à faible intensité, la propagation dans deux centimètres de silice ne change ni le profil temporel, ni le spectre d'une impulsion de 100 femtosecondes de largeur à mi-hauteur en intensité dont le spectre est centré autour de 800 nanomètres.

Par contre, lorsque l'intensité est assez élevée pour que le maximum de l'intégrale B définie par $B(t) = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 \int_0^L I(z,t)dz$ où L est la longueur de l'échantillon, soit de l'ordre de l'unité, le spectre et le profil temporel sont modifiés. Pour la figure 1.2, B=1,18 au maximum et la durée de l'impulsion passe de 100 à 127 femtosecondes.

Autofocalisation

Nous avons vu dans ce qui précède l'influence de la dépendance temporelle de l'intensité à travers la variation non linéaire de l'indice de réfraction sur la propagation d'impulsions femtosecondes. Pour cela, nous avons considéré des ondes planes laissant ainsi de côté la question des effets spatiaux. Cependant, l'indice de réfraction varie également avec la répartition spatiale de l'intensité. Pour un milieu où le n_2 est positif et pour un laser dont la répartition en intensité est gaussienne, l'indice effectif est plus fort au centre du faisceau et le milieu se comporte alors comme une lentille convergente. Lorsque on étudie un phénomène complexe tel que l'autoguidage d'impulsions femtosecondes intenses [16, 17, 18], c'est la dépendance spatio-temporelle de la variation non linéaire de l'indice qu'il faut prendre en compte [19]. L'étude de ce type de phénomènes nécessite la résolution de l'équation de propagation non linéaire en tenant compte des trois dimensions d'espace et de la dimension temporelle. C'est bien évidemment un problème complexe qui ne peut être résolu que de façon numérique. Un calcul analytique peut toutefois être conduit si on considère un profil spatial à symétrie cylindrique c'est-à-dire si

$$e(x,y,z,t) = e(r,z,t)$$

où $r = \sqrt{x^2+y^2}$. Il faut de plus partir d'un faisceau laser gaussien en temps et en espace.

Dans ce qui suit, nous allons utiliser les résultats de ce calcul pour déterminer l'intervalle d'intensité et donc d'intégrale B pour lesquels on peut négliger l'autofocalisation tout en accumulant de la phase non linéaire non négligeable correspondant à l'automodulation de phase. Dans cet intervalle, le modèle à une dimension d'espace où on néglige les effets transverses est valide et c'est celui-ci que l'on utilise par la suite.

L'enveloppe du champ électrique après propagation sur une distance z est donnée par [20, 21]

$$e(r,z,u) = \frac{e_0(u)}{w} exp\left[-\frac{r^2}{a^2w^2} - i\frac{k}{2}\rho r^2 + ik\alpha\right] \tag{1.2.19}$$

où $e_0(u) = A_0 \exp(-u^2/T^2)$, u est l'opposé du temps retardé. a est le rayon initial du faisceau et

$$\begin{aligned} w &= \sqrt{1 + \frac{z^2}{z_R^2}(1-p')} \\ \rho &= \frac{z}{{z_R}^2}\frac{1-p'}{w^2} \\ k\alpha &= \frac{1-p'/2}{\sqrt{1-p'}} \arctan\left[y\sqrt{1-p'}\right] \text{ pour } p' < 1 \end{aligned}$$

De plus, z_R est la longueur de Rayleigh et p' est défini par

$$p' = \frac{2\pi \overline{n}_2 z_R}{\lambda n_0}|e_0(u)|^2$$

On peut remarquer que les expressions de w, ρ et α dépendent à la fois des variables d'espace et du temps. On est en présence d'un couplage spatio-temporel qui oblige à utiliser la simulation numérique pour prédire la propagation d'une impulsion quelconque [19]. En l'absence d'effet non linéaire, n_2=0 et le module du champ en z vaut pour $r = 0$

$$|e_1(0, z, u)| = \frac{|e_0(u)|}{1 + \frac{z^2}{z_R^2}}$$

En présence d'effet non linéaire, on a

$$|e_2(0, z, u)| = \frac{|e_0(u)|}{1 + (1-p')\frac{z^2}{z_R^2}}$$

On peut négliger les effets de contraction spatiale du faisceau (autofocalisation) si l'intensité en z n'est pas modifiée par la présence de la non linéarité ce qui correspond à

$$\frac{I_1}{I_2} \simeq 1$$

On a

$$\frac{I_1}{I_2} = \frac{1 + (1-p')\frac{z^2}{z_R^2}}{1 + \frac{z^2}{z_R^2}} = 1 - p'\frac{\frac{z^2}{z_R^2}}{1 + \frac{z^2}{z_R^2}}$$

et donc $\frac{I_1}{I_2} \simeq 1$ si

$$p' \frac{\frac{z^2}{z_R^2}}{1+\frac{z^2}{z_R^2}} \ll 1 \tag{1.2.20}$$

Quels que soient z et z_R.

$$f(\frac{z}{z_R}) = \frac{\frac{z^2}{z_R^2}}{1+\frac{z^2}{z_R^2}}$$

une fonction strictement croissante de $\frac{z}{z_R}$ comprise entre 0 et 1. De plus, p' vaut au maximum p tel que

$$p = \frac{2\pi \overline{n}_2 z_R A_0^2}{\lambda n_0}$$

L'inégalité 1.2.20 n'est donc vérifiée que si

$$pf(\frac{z}{z_R}) \ll 1$$

Dans le cas où le champ est approché par une onde plane, l'intégrale B maximum B_{max} vaut $B_{max} = \frac{2\pi \overline{n}_2 z A_0^2}{\lambda n_0}$. La condition précédente s'écrit donc

$$B_{max} \frac{z_R}{z} f(\frac{z}{z_R}) \ll 1$$

ou encore

$$B_{max} \frac{\frac{z}{z_R}}{1+\frac{z^2}{z_R^2}} \ll 1$$

C'est par exemple le cas lorsque $z/z_R \ll 1$, ce qui est normal puisque l'approximation par une onde plane est alors correcte. En effet z_R est grand lorsque le rayon a du faisceau est grand devant la longueur d'onde du rayonnement. Pour un faisceau parallèle dont le rayon est 5 millimètres, la longueur de Rayleigh à λ=800 nanomètres vaut z_R = 98 mètres. Des distances de propagation de l'ordre du centimètre permettent alors de respecter la condition précédente dès lors que B_{max} reste de l'ordre de 1. Si on utilise un faisceau focalisé, la

longueur de Rayleigh est donnée par

$$z_{Rf} = z_R \frac{\frac{z^2}{z_R^2}}{1 + \frac{z^2}{z_R^2}}$$

où z_R correspond au cas sans lentille. z_{Rf} n'est que de 1 centimètre pour un faisceau de 1 millimètre de rayon focalisé par une lentille de focale f=200 mm.

Nous disposons maintenant de tous les outils nécessaires pour passer à l'étude de l'interaction de deux ondes dans un milieu non linéaire possédant une réponse de type Kerr instantané.

1.3 Interaction de deux ondes

On se place dans le cas où deux ondes de même fréquence polarisées linéairement, se propageant dans des directions différentes $\mathbf{k_1}$ et $\mathbf{k_2}$, interagissent dans un milieu Kerr transparent tel que celui décrit au paragraphe précédent. On néglige également la dispersion de vitesse de groupe. Le champ total s'écrit

$$\mathbf{E}(\omega) = \left[\mathbf{E_p}(\omega)e^{i(\mathbf{k_1}.\mathbf{r}-\omega t)} + \mathbf{E_t}(\omega)e^{i(\mathbf{k_2}.\mathbf{r}-\omega t)} + c.c.\right]$$

et nous allons étudier dans ce qui suit différentes configurations: polarisations parallèles et polarisations croisées.

1.3.1 Ondes en polarisation y

Dans cette géométrie, les composantes du champ suivant x et z sont nulles et par conséquent seule la composante suivant y de la polarisation du troisième ordre est non nulle. L'équation 1.2.15 devient alors:

$$P_y^{(3)}(\omega) = \varepsilon_0 \chi_{yyyy}^{(3)} E_y(\omega)^3 \tag{1.3.21}$$

avec $E_y(\omega) = \left[E_p(\omega)e^{i(\mathbf{k_1}.\mathbf{r}-\omega t)} + E_t(\omega)e^{i(\mathbf{k_2}.\mathbf{r}-\omega t)} + c.c.\right]$. Dans le développement du champ au cube, on ne garde que les termes à la fréquence ω et on néglige donc les termes sources

à la fréquence 3ω. On obtient alors quatre termes correspondant à quatre directions de propagation $\mathbf{k_1}$, $\mathbf{k_2}$, $2\mathrm{k}_1$-$\mathbf{k_2}$ et $2\mathbf{k_2}$-k_1. On a donc:

$$P_y^{(3)}(\omega) = P_{k1}e^{i(\mathbf{k_1}.\mathbf{r}-\omega t)} + P_{k2}e^{i(\mathbf{k_2}.\mathbf{r}-\omega t)} + P_{2k1-k2}e^{i[(2\mathbf{k_1}-\mathbf{k_2}).\mathbf{r}-\omega t]} + P_{2k2-k1}e^{i[(2\mathbf{k_2}-\mathbf{k_1}).\mathbf{r}-\omega t]}$$

où

$$\begin{cases} P_{k1} &= 3\varepsilon_0\chi^{(3)}_{yyyy}\left(|E_p(\omega)|^2 + 2|E_t(\omega)|^2\right)E_p(\omega) \\ P_{k2} &= 3\varepsilon_0\chi^{(3)}_{yyyy}\left(2|E_p(\omega)|^2 + |E_t(\omega)|^2\right)E_t(\omega) \\ P_{2k1-k2} &= 3\varepsilon_0\chi^{(3)}_{yyyy}E_p(\omega)^2E_t^*(\omega) \\ P_{2k2-k1} &= 3\varepsilon_0\chi^{(3)}_{yyyy}E_p^*(\omega)E_t(\omega)^2 \end{cases} \tag{1.3.22}$$

Nous avons maintenant tous les outils pour écrire les équations de propagation des quatre ondes possibles. Les polarisations suivant $\mathbf{k_1}$ et $\mathbf{k_2}$ comprennent deux termes. Le premier est proportionnel à $|E_i|^2E_i$ et représente l'automodulation de phase comme dans le cas d'une onde se propageant seule dans le même milieu. Le deuxième est proportionnel à $|E_i|^2E_j$ avec i$\neq$j et représente la *modulation de phase induite.* Le deuxième faisceau induit une modulation de phase supplémentaire sur l'autre faisceau. On peut remarquer que l'amplitude de la modulation de phase induite est deux fois plus grande que celle obtenue dans le cas de l'automodulation de phase. De plus, il existe des termes sources à la fois dans la direction $2\mathbf{k_1} - \mathbf{k_2}$ et dans la direction $2\mathbf{k_2} - \mathbf{k_1}$ qui correspondent à ce qui est appelé *l'autodiffraction.* Si E_t est le faisceau test et E_p le faisceau pompe, l'intensité de la pompe est très grande devant celle du test et on a la condition supplémentaire $|E_t| \ll |E_p|$ qui se traduit par

$$\begin{cases} P_{k1} &= 3\varepsilon_0\chi^{(3)}_{yyyy}|E_p(\omega)|^2E_p(\omega) \\ P_{k2} &= 6\varepsilon_0\chi^{(3)}_{yyyy}|E_p(\omega)|^2E_t(\omega) \\ P_{2k1-k2} &= 3\varepsilon_0\chi^{(3)}_{yyyy}E_p(\omega)^2E_t^*(\omega) \\ P_{2k2-k1} &= 0 \end{cases} \tag{1.3.23}$$

On constate que dans ce cas et dans cette configuration de polarisation, le faisceau test est seulement modulé en phase (son amplitude reste constante au cours de la propagation).

En effet, on obtient des équations de propagation pour les faisceaux pompe et test qui sont similaires à celles que l'on a établi précédemment dans le cadre de l'automodulation de phase (équation 1.2.17). Enfin, l'amplitude de la modulation est indépendante de l'angle entre les faisceaux.

1.3.2 Ondes en polarisation x-z

Dans cette configuration, les deux champs ont des composantes suivant x et z comme on peut le voir sur la figure 1.3. On a

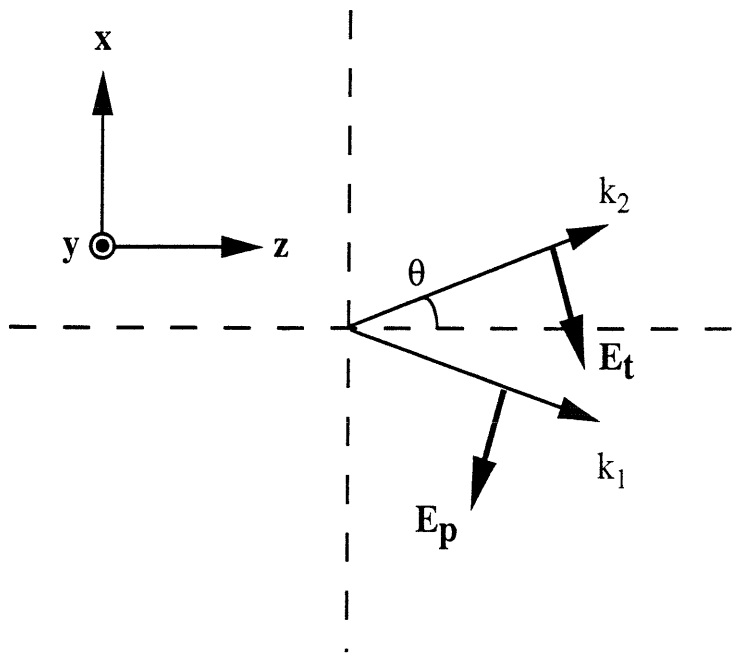


FIG. 1.3 - *Interaction à deux ondes en polarisation x-z: les deux ondes sont polarisées dans un même plan contenant les directions de propagation*

$$\begin{aligned} \mathbf{E_p} &= -E_p(\omega)\left[\sin(\theta)\hat{\mathbf{z}} + \cos(\theta)\hat{\mathbf{x}}\right] \\ \mathbf{E_t} &= E_t(\omega)\left[\sin(\theta)\hat{\mathbf{z}} - \cos(\theta)\hat{\mathbf{x}}\right] \end{aligned} \tag{1.3.24}$$

où 2θ est l'angle entre les deux faisceaux. On peut calculer de la même manière qu'au paragraphe précédent, les polarisations correspondant aux vecteurs d'onde possibles. Par

exemple, on obtient suivant $\mathbf{k_2}$:

$$\begin{cases} P_x^{(3)} &= \varepsilon_0 \chi_{yyyy}^{(3)} \left[3|E_t(\omega)|^2 + |E_p(\omega)|^2(6\cos^2\theta - 2\sin^2\theta)\right] E_{tx} \\ P_z^{(3)} &= \varepsilon_0 \chi_{yyyy}^{(3)} \left[3|E_t(\omega)|^2 + |E_p(\omega)|^2(6\sin^2\theta - 2\cos^2\theta)\right] E_{tz} \end{cases} \tag{1.3.25}$$

En reprenant l'approximation du test très faible devant la pompe, ces équations deviennent

$$\begin{cases} P_x^{(3)} &= \varepsilon_0 \chi_{yyyy}^{(3)} \left[|E_p(\omega)|^2(6\cos^2\theta - 2\sin^2\theta)\right] E_{tx} \\ P_z^{(3)} &= \varepsilon_0 \chi_{yyyy}^{(3)} \left[|E_p(\omega)|^2(6\sin^2\theta - 2\cos^2\theta)\right] E_{tz} \end{cases}$$

L'angle θ est petit donc on a $\cos\theta \gg \sin\theta$ et $\mathbf{E_t} \simeq E_t(\omega)\hat{\mathbf{x}}$ ce qui donne pour la polarisation non linéaire qui concerne le faisceau test

$$\mathbf{P^{(3)}} \simeq 6\varepsilon_0 \cos^2\theta \; \chi_{yyyy}^{(3)} |E_p(\omega)|^2 \mathbf{E_t}$$

On retrouve la modulation de phase induite par le faisceau de pompe mais la polarisation dépend de l'angle entre les faisceaux et on cherchera donc à éviter ce cas au cours des expériences bien que cet effet soit du second ordre en θ.

1.3.3 Polarisation croisées

Cette configuration est souvent utilisée expérimentalement car elle permet par exemple de séparer la pompe et la sonde à l'aide de polariseurs. Prenons le cas où la pompe est polarisée suivant xz et le test suivant y, on a alors

$$\begin{aligned} \mathbf{E_p} &= -E_p(\omega)\left[\sin(\theta)\hat{\mathbf{z}} + \cos(\theta)\hat{\mathbf{x}}\right] \\ \mathbf{E_t} &= E_t(\omega)\hat{\mathbf{y}} \end{aligned} \tag{1.3.26}$$

Le calcul de la polarisation d'ordre 3 conduit à:

$$\mathbf{P^{(3)}} = \mathbf{P_{k1}^{(3)}} + \mathbf{P_{k2}^{(3)}} + \mathbf{P_{2k1-k2}^{(3)}} + \mathbf{P_{2k2-k1}^{(3)}}$$

avec

$$\begin{cases} \mathbf{P}^{(3)}_{\mathbf{k1}} &= 3\varepsilon_0\chi^{(3)}_{yyyy}\left[|E_p(\omega)|^2 + \frac{2}{3}|E_t(\omega)|^2\right]\mathbf{E_p}e^{i(\mathbf{k_1}.\mathbf{r}-\omega t)} \\ \mathbf{P}^{(3)}_{\mathbf{k2}} &= 3\varepsilon_0\chi^{(3)}_{yyyy}\left[\frac{2}{3}|E_p(\omega)|^2 + |E_t(\omega)|^2\right]\mathbf{E_t}e^{i(\mathbf{k_2}.\mathbf{r}-\omega t)} \\ \mathbf{P}^{(3)}_{\mathbf{2k1-k2}} &= \varepsilon_0\chi^{(3)}_{yyyy}E_p{}^2\mathbf{E_t}^*e^{i[(2\mathbf{k_1}-\mathbf{k_2}).\mathbf{r}-\omega t]} \\ \mathbf{P}^{(3)}_{\mathbf{2k2-k1}} &= \varepsilon_0\chi^{(3)}_{yyyy}\mathbf{E_p}^*E_t{}^2e^{i[(2\mathbf{k_2}-\mathbf{k_1}).\mathbf{r}-\omega t]} \end{cases} \tag{1.3.27}$$

Le terme de modulation de phase croisée est trois fois plus faible dans ce cas que dans le cas où les deux faisceaux sont polarisés suivant y. Puisque en général, on essaie d'utiliser les énergies les plus faibles possibles, la configuration en polarisations croisées n'est pas la plus favorable. En effet, la pompe et la sonde se propagent dans des directions différentes et la séparation angulaire suffit en général pour éviter de recueillir de la lumière parasite due à l'onde de pompe au cours d'une mesure sur l'onde de sonde.

1.4 Influence de l'autodiffraction

Comme on l'a vu, les phénomènes de modulation de phase s'accompagnent d'autodiffraction. Cependant, nous allons maintenant montrer que les ondes autodiffractées ne peuvent se développer car l'autodiffraction n'est pas un processus pour lequel les condition de l'adaptation de phase sont respectées. Les vecteurs d'onde des ondes incidentes $\mathbf{k_1}$ et $\mathbf{k_2}$ sont représentés sur la figure 1.4. Le terme source de l'autodiffraction dans la polarisation d'ordre 3 a pour vecteur d'onde

$$\mathbf{Q} = 2\mathbf{k_1} - \mathbf{k_2}$$

$\mathbf{k_1}$ et $\mathbf{k_2}$ ont le même module $k = \frac{n\omega}{c}$. Calculons le module de $\mathbf{Q}$

$$Q = |2\mathbf{k_1} - \mathbf{k_2}|$$

On a

$$Q = \sqrt{(2k_1^x - k_2^x)^2 + (2k_1^y - k_2^y)^2}$$

d'où

$$Q = k\sqrt{\cos^2\theta + 9\sin^2\theta} = k\sqrt{1 + 8\sin^2\theta} \tag{1.4.28}$$

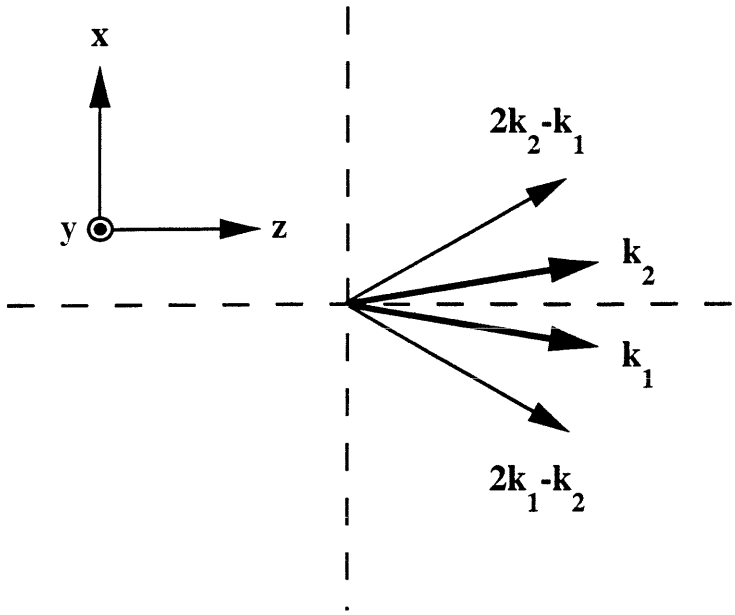


FIG. 1.4 – *Vecteurs d'onde en présence d'autodiffrraction. Les ondes incidentes se propagent selon les directions* $\mathbf{k_1}$ *et* $\mathbf{k_2}$. *L'autodiffraction produit un signal dans les directions* $2\mathbf{k_1} - \mathbf{k_2}$ *et* $2\mathbf{k_2} - \mathbf{k_1}$

Dans le cas où θ est petit devant 1, l'équation 1.4.28 devient

$$Q = k(1 + 4\sin^2\theta)$$

On voit que Q est toujours plus grand que k et ce pour tout $\theta \neq 0$ et le désaccord de phase est $\Delta k = Q - k$. Les équations d'évolution des différentes amplitudes pour une interaction pompe-sonde sont alors les suivantes:

$$\begin{cases} \dfrac{dE_p}{dz} &= i\alpha|E_p|^2 E_p \\ \dfrac{dE_t}{dz} &= i2\alpha|E_p|^2 E_t \\ \dfrac{dE_{2k1-k2}}{dz} &= i\alpha {E_p}^2 {E_t}^* e^{i\Delta kz} \\ \dfrac{dE_{2k2-k1}}{dz} &= 0 \end{cases} \tag{1.4.29}$$

avec $\alpha = \frac{2\pi}{\lambda}\overline{n}_2$ comme on l'a vu pour l'automodulation de phase. Si on pose $q = \alpha|E_p|^2 z$ où z est la distance d'interaction, les équations précédentes deviennent:

$$\begin{cases} E_p(z) & = & E_p(0)e^{iq} \\ E_t(z) & = & E_t(0)e^{i2q} \\ E_{2k1-k2}(z) & = & \frac{q\,|E_t|}{\Delta kz}\left[e^{i\Delta kz} - 1\right] \\ E_{2k2-k1}(z) & = & 0 \end{cases} \tag{1.4.30}$$

Le modèle (non déplétion de la pompe et de la sonde) est cohérent si le rapport des intensités autodiffractée et du test $\frac{|E_{2k1-k2}|^2}{|E_t|^2}$ reste petit devant 1. Les équations 1.4.30 donnent:

$$\frac{|E_{2k1-k2}|^2}{|E_t|^2} = q^2\mathrm{sinc}^2(\frac{\Delta kz}{2}) \tag{1.4.31}$$

sinc est la fonction sinus cardinal définie par $\mathrm{sinc}(x) = \frac{\sin x}{x}$. Δk diminue avec l'angle θ, cherchons la valeur minimale de θ à partir de laquelle on peut négliger le phénomène d'autodiffraction. On a

$$q\left|\mathrm{sinc}(\frac{\Delta kz}{2})\right| \leq \frac{2q}{\Delta kz}$$

θ étant petit devant 1, on peut écrire d'après l'équation 1.4.28 $\Delta k \simeq 4k\sin^2\theta$ et même $\Delta k \simeq 4k\theta^2$. L'intensité de l'onde autodiffractée est négligeable si $\frac{|E_{2k1-k2}|^2}{|E_t|^2} \ll 1$ donc si

$$\frac{q}{2k\theta^2 z} \ll 1$$

Exprimons k en fonction de la longeur d'onde du laser λ et de l'indice de réfraction du milieu n

$$k = \frac{2\pi n}{\lambda}$$

ce qui donne comme condition à satisfaire

$$\theta^2 \gg \frac{q\lambda}{4\pi nz}$$

En général, les conditions expérimentales sont telles que q est compris entre 0.3 et 2. Une condition suffisante est donc que

$$\theta > \sqrt{\frac{\lambda}{nz}} \tag{1.4.32}$$

Pour la silice n = 1.5, à λ = 800 nm et avec un échantillon de z = 500μm d'épaisseur, $\sqrt{\frac{\lambda}{nz}} = 1,9^o$. Dans la configuration expérimental habituelle, θ est de l'ordre de 3 degrés, on en conclut donc que

$$\frac{|E_{2k1-k2}|^2}{|E_t|^2} \ll 1 \tag{1.4.33}$$

Le résultat de l'équation précédente justifie l'approximation faite et il n'est donc pas nécessaire de considérer les équations à l'ordre supérieur.

En fait, il n'y a couplage entre deux ondes que dans les cas suivants: si le milieu est absorbant ou si sa réponse non linéaire n'est pas instantanée. Si le milieu est absorbant, la variation d'indice non linéaire induite par le faisceau intense s'accompagne d'une variation de l'absorption [22]. On peut alors montrer qu'il se forme un réseau qui se comporte comme un réseau de diffraction. En particulier, si les deux faisceaux incidents sur l'échantillon ne sont pas d'intensité égales, on observe un transfert d'énergie du faisceau le plus intense vers celui de moindre intensité. Le deuxième cas est traité dans le dernier chapitre.

Chapitre 2

Recherche de la phase d'une impulsion ultracourte

Nous allons consacrer ce chapitre à la méthode de caractérisation d'impulsions femtosecondes qui a été développée au cours de cette thèse [6, 7]. Cette méthode utilise la modulation de phase induite par un faisceau intense sur une réplique de faible intensité afin de retrouver la phase spectrale d'une impulsion. En effet, puisque l'on sait mesurer l'intensité spectrale (le spectre) d'une impulsion, il suffit de connaitre la phase associée à ce spectre pour connaitre entièrement l'enveloppe temporelle cherchée.

Après un rapide tour d'horizon des techniques développées par ailleurs pour caractériser les impulsions ultracourtes, nous montrons comment la modulation de phase induite résolue spectralement permet de caractériser complètement une impulsion. Cette caractérisation exige l'emploi d'un algorithme itératif mais la possibilité d'obtenir une estimation de la durée d'une impulsion en calculant la variation des centres de gravités du spectre du faisceau de faible intensité est d'abord présentée.

Nous passons ensuite à l'étude d'un algorithme qui permet de retrouver la phase d'une impulsion à partir d'un jeu de spectres de modulation de phase induite. Cet algorithme est simple à implémenter et il est rapide et robuste. Quelques exemples numériques significatifs sont présentés ainsi que le comportement de l'algorithme dans différentes circonstances, par exemple en présence de bruit aléatoire.

Enfin, la dernière partie de ce chapitre expose les mesures qui ont été réalisées sur trois

chaînes laser amplifiées du laboratoire d'optique appliquée. Ces sources produisent des impulsions dont le spectre est centré autour de 800 nanomètres et dont la durée peut varier de 30 à plusieurs centaines de femtosecondes avec un taux de répétition de 10 Hz pour les deux premières et d'1 kHz pour la dernière. Nous avons également caractérisé leur second harmonique ($\lambda = 400$ nm) produit dans un cristal non linéaire tel que le KDP ou le BBO. La présentation d'un dispositif d'acquisition des données en un seul tir laser clôt ce chapitre.

2.1 Généralités

La majorité des systèmes lasers haute-intensité repose sur le même principe d'amplification d'impulsions ultracourtes exposé par Mourou et Strickland [23] et appelé CPA pour Chirped Pulse Amplification (en français amplification à dérive de fréquences). Puisque l'on atteint rapidement le seuil de dommage des cristaux amplificateurs si on garde des impulsions courtes dans les étages d'amplifications, l'idée est de rallonger l'impulsion, puis de l'amplifier et enfin de revenir à une impulsion courte. L'étirement et la compression sont en général réalisés à l'aide de systèmes comprenant des réseaux de diffraction. Selon la disposition de ceux-ci et les composants optiques utilisés, on peut obtenir à volonté un système introduisant une dispersion de vitesse de groupe négative ou bien positive. Avec deux réseaux de diffraction parallèles, la dispersion de vitesse de groupe introduite est négative et on obtient un compresseur (figure 2.1). Bien évidemment, de nombreux problèmes se posent au cours de l'amplification. En particulier, l'étirement et la compression temporelle ne sont pas deux opérations strictement inverses l'une de l'autre car il faut tenir compte de tous les éléments optiques traversés au cours de l'amplification. En effet, ces derniers introduisent une phase supplémentaire due à la dispersion de vitesse de groupe ainsi qu'à l'automodulation de phase. De plus, le facteur d'étirement et de compression est très grand. Au cours de la phase d'étirement, on passe typiquement d'une impulsion dont la durée est inférieure à 100 femtosecondes à une impulsion d'environ 500 picosecondes soit 5000 fois plus. Après amplification et compression, on désire en général retrouver une impulsion aussi courte ou alors une impulsion dont le profil temporel est adapté aux expériences envisagées. C'est pourquoi il est nécessaire de pouvoir connaitre de façon précise les impulsions produites par ces lasers.

De nombreuses méthodes de mesure des impulsions courtes ont été proposées depuis que l'on est capable de produire des impulsions de l'ordre de la picoseconde ou plus courtes.

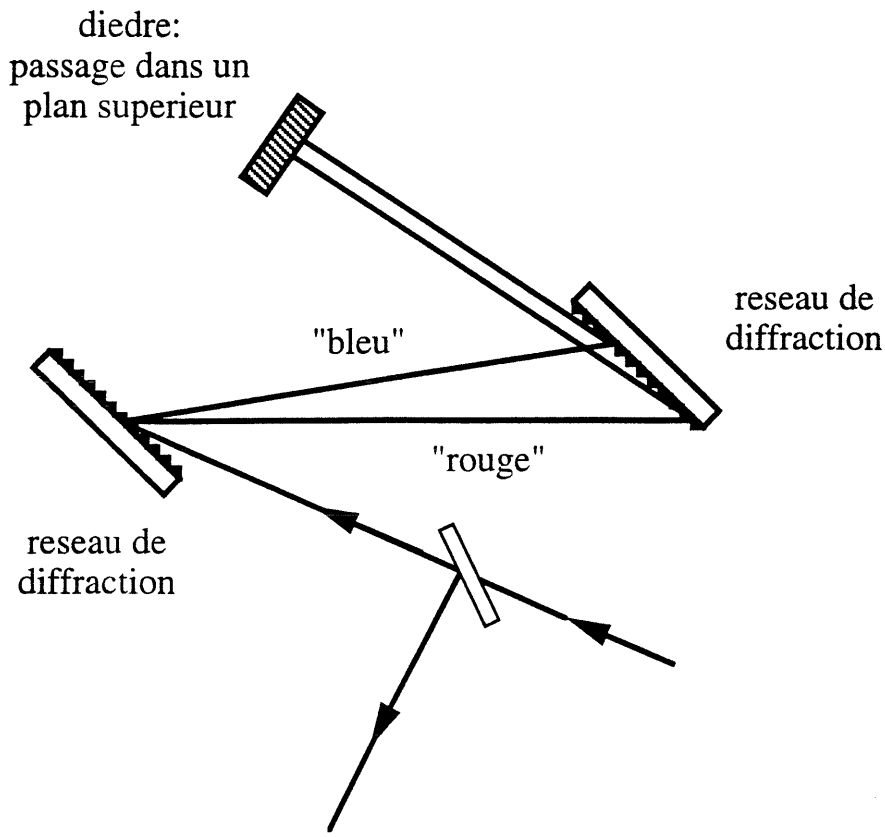


FIG. 2.1 – *Schéma de principe d'un compresseur*

C'est en effet à partir de ces durées que les impulsions deviennent plus courtes que le temps de réaction des détecteurs électroniques.

Les premières techniques mises au point permettent de mesurer l'aucorrélation en intensité de l'impulsion c'est-à-dire la fonction $\Gamma(\tau)$ définie par

$$\Gamma(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t-\tau)dt$$

où I(t) est l'intensité de l'impulsion que l'on cherche à caractériser. Il est possible d'obtenir Γ de plusieurs manières, la plus courante d'entre elles consiste à fabriquer une réplique de l'impulsion puis à faire interagir les deux impulsions obtenues dans un cristal non linéaire afin d'obtenir un signal à la fréquence double. L'écart temporel entre les deux répliques de l'impulsion est obtenu en leur faisant suivre un trajet de longueur différente. Une résolution temporelle de l'ordre de la femtoseconde correspond alors à une résolution sur le trajet de

l'ordre du dixième de micromètre ce qui est facilement obtenu. L'intensité du signal à 2ω, mesurée par exemple à l'aide d'un photomultiplicateur, est proportionnelle à l'autocorrélation. L'utilisation d'un cristal doubleur se limite aux impulsions dans le visible et nécessite de satisfaire une condition d'accord de phase entre les ondes à la fréquence ω et l'onde créée à 2ω. On peut cependant contourner ces difficultés en utilisant d'autres phénomènes non linéaires. Par exemple, il existe des dispositifs utilisant la phase non linéaire induite par un milieu Kerr [5, 24] ou bien l'ionisation à deux photons [25]. Il est aussi possible d'utiliser un détecteur dont la réponse est non linéaire. En particulier, il existe des diodes dont la réponse est proportionnelle à l'intensité incidente [26, 27]. L'inconvénient majeur de l'autocorrélation est qu'elle ne donne accès qu'à la durée de l'impulsion, moyennant de plus une hypothèse sur son profil qu'on suppose par exemple gaussien. Une approche similaire mais un peu plus riche est par exemple de mesurer l'intensité du signal d'autodiffraction dans un milieu Kerr ce qui donne la corrélation d'ordre 3 de l'impulsion

$$\Gamma_3(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I^2(t) I(t-\tau) dt$$

Contrairement à Γ qui est une fonction paire et donc ambiguë sur le sens du temps, on obtient avec Γ_3 une information partielle sur le profil temporel de l'impulsion (dissymétrie éventuelle...). Cette information demeure toutefois insuffisante pour nombre d'applications où les impulsions doivent être complètement caractérisées à la fois en amplitude et en phase. C'est pourquoi de nombreuses techniques ont été proposées pour la mesure de l'ensemble des propriétés temporelles des impulsions ultracourtes.

Parmi toutes les techniques imaginées pour mesurer la phase d'une impulsion ultracourte (voir les références [3, 27, 28, 29, 30, 31, 32] en plus de ce qui est développé dans ce qui suit), la plus populaire est le FROG (acronyme de Frequency-Resolved Optical Gating) [33, 34]. Le FROG est basé sur l'analyse spectrale de l'impulsion après que celle-ci est passée à travers une porte temporelle p(t). Le signal mesuré S_{FROG} est appelé la trace FROG et

$$S_{FROG}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) p(t-\tau) e^{i\omega t} dt \right|^2$$

où E(t) est l'enveloppe du champ électrique. Comme c'est la cas pour les détecteurs, il n'existe pas d'appareil permettant de réaliser une porte temporelle à l'échelle des impulsions femtosecondes, c'est pourquoi l'impulsion elle-même est utilisée pour générer p(t) en tirant

parti d'un effet non linéaire tel que l'autodiffraction ou bien la génération de second harmonique. p(t) ne doit pas être forcément plus courte que l'impulsion, ainsi elle peut être égale à E(t) ou à une fonction de E(t)[1]. Les configurations possibles sont énoncées dans le tableau 2.1. L'utilisation d'un large spectre de phénomènes physiques permet à cette méthode d'être

configuration	p(t)
rotation de polarisation (PG)	$\lvert E(t)\rvert^2$
autodiffraction[2] (SD)	$E^2(t)$
réseau transitoire (TG)	PG ou SD
seconde harmonique (SH)	E(t)
troisième harmonique (TH)	$E^2(t)$

TAB. 2.1 – *Configurations possibles pour le FROG*

utilisée aussi bien pour caractériser des oscillateurs que des chaînes lasers amplifiées. La résolution du problème inverse c'est-à-dire retrouver E(t) à partir de S_{FROG} requiert l'utilisation d'un algorithme de minimisation sophistiqué reposant sur la méthode dite des projections généralisées [36]. La trace FROG contient l'autocorrélation ou la corrélation d'ordre 3 de l'impulsion, il suffit en effet pour l'obtenir d'intégrer $S_{FROG}(\omega, \tau)$ selon ω. Par contre, le spectre de l'impulsion n'est pas contenu dans les données et l'impulsion retrouvée par l'algorithme n'a pas toujours un spectre correspondant très bien à celui qu'il est possible de mesurer par ailleurs.

Une autre alternative est d'utiliser une méthode interférométrique afin de retrouver la phase. Ces méthodes présentent l'avantage de ne pas exiger l'utilisation d'un algorithme ité-

1. Une variante du FROG utilise même une porte temporelle plus longue que l'impulsion, on obtient alors une approximation de l'enveloppe temporelle (amplitude et phase) sans avoir recours à un algorithme itératif [35].

2. Pour l'autodiffraction, le signal mesuré est en réalité $S_{FROG}(\omega, \tau) = \left|\int_{-\infty}^{+\infty} E^2(t)E^*(t-\tau)e^{i\omega t}dt\right|^2$

ratif mais un traitement direct des données (filtrage de Fourier...). Certaines requièrent une impulsion de référence bien caractérisée ce qui peut être un problème, d'autres sont autoréférencées ce qui est plus intéressant. Parmi les systèmes autoréférencés, on peut retenir celui proposé par Chu *et al.* où on analyse les battements temporels entre deux ou plus composantes spectrales de l'impulsion [37] et celui proposé récemment par Iaconis et Walmsley qui permet de retrouver la phase à partir de l'interférence de deux spectres identiques au spectre de l'impulsion cherchée mais chacun décalé d'une fréquence différente [38]. Ces méthodes ne sont limitées que par le rapport signal sur bruit de la mesure. Cependant la deuxième semble difficile à implémenter pour des longueurs d'ondes dans l'ultraviolet puisque pour l'instant le décalage de fréquences repose sur l'addition de fréquences dans un cristal non linéaire.

La méthode de recherche de la phase que nous avons mise au point utilise des éléments communs à certaines des méthodes présentées ci-dessus (mesures spectrales, décalage temporel d'une impulsion par rapport à une réplique d'elle-même...). Son originalité par rapport aux techniques apparentées au FROG est l'utilisation d'une modulation de phase par opposition à l'utilisation d'une porte temporelle. Nous allons maintenant détailler le principe de sa mise en œuvre.

2.2 Modulation de phase induite résolue spectralement

2.2.1 Principe et premières propriétés

La modulation de phase induite résolue spectralement permet de retrouver les caractéristiques d'une impulsion (amplitude et phase) par une procédure proche de la tomographie [39, 40]. Pour le voir, il faut considérer la fonction de Wigner définie par

$$\begin{aligned} W(\omega,t) &= \frac{1}{\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} E(t+t')E^*(t-t')e^{2i\omega t'}dt' \\ &= \frac{1}{\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} E(\omega+\omega')E^*(\omega-\omega')e^{-2i\omega' t}d\omega' \end{aligned} \tag{2.2.1}$$

où E est l'enveloppe du champ électrique. La fonction de Wigner contient toute l'information sur l'impulsion. En effet, le changement de variable u=2t' donne

$$W(\omega,t) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} E(t+\frac{u}{2})E^*(t-\frac{u}{2})e^{i\omega u}du \tag{2.2.2}$$

On voit alors que W(ω,t) est la transformée de Fourier de la fonction de corrélation C telle que

$$C(\frac{u}{2},t) = E(t+\frac{u}{2})E^*(t-\frac{u}{2})$$

On en déduit

$$E(u) = \frac{C(u/2,u/2)}{\sqrt{C(0,0)}}\exp(i\phi_0) \tag{2.2.3}$$

où ϕ_0 est une constante réelle. On peut également noter que l'intégration de la fonction de Wigner selon le temps (la fréquence) donne l'intensité spectrale (temporelle). A titre

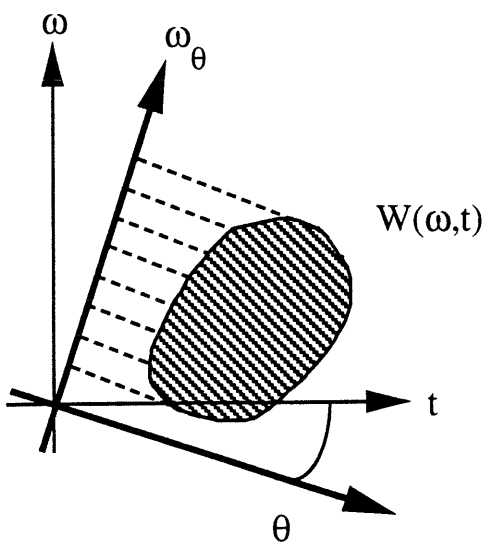


FIG. 2.2 – *Fonction de Wigner et modulation de phase temporelle: rotation dans l'espace des phases (ω,t)*

d'exemple, on montre, en suivant le cheminement de la référence [40], que le spectre d'une impulsion ayant subi une modulation de phase quadratique dans l'espace temporel est la projection de la fonction de Wigner sur un axe ω_θ (figure 2.2). L'axe ω_θ est obtenu par une rotation d'un angle θ tel que

$$\tan\theta = -2\phi_t^{(2)}$$

où $\phi_t^{(2)}$ est l'amplitude de la modulation de phase c'est-à-dire que le champ modulé est

$$E_{mod}(t) = E(t)\exp\left(i\phi_t^{(2)}t^2\right)$$

A l'aide de la transformée de Radon inverse, il est possible de retrouver la fonction de Wigner si on dispose du signal mesuré pour plusieurs valeurs de θ. Il suffit alors d'utiliser le résultat de l'équation 2.2.3 pour obtenir l'enveloppe du champ. Il a été proposé d'utiliser un modulateur de phase électro-optique afin d'obtenir la modulation de phase quadratique désirée. Cependant, pour des raisons technologiques, les impulsions les plus courtes que l'on peut mesurer avec un tel modulateur de phase ont une durée de l'ordre de 700 femtosecondes [39].

On peut contourner ce problème de la façon suivante. L'impulsion que l'on cherche à caractériser est divisée en deux répliques homothétiques l'une de l'autre, une intense (la pompe) et une faible (la sonde). Nous avons montré dans le chapitre précédent que la pompe peut induire une modulation de phase sur la sonde. La quantité de modulation apportée dépend du retard entre les deux ondes. En faisant varier le retard, on obtient assez d'information pour caractériser complètement l'impulsion. Cependant, la fonction de modulation est inconnue et un algorithme itératif de recherche de la phase est nécessaire pour passer des spectres enregistrés à l'amplitude et à la phase de l'impulsion.

Nous allons exposer dans ce qui suit les différentes propriétés de la modulation de phase induite dans un milieu présentant une non linéarité instantanée de type Kerr.

Estimation de la durée de l'impulsion sans algorithme: premier moment des spectres

Nous avons vu au chapitre 1 dans le cas de l'automodulation de phase qu'une modulation de phase modifie le spectre de l'impulsion qui la subit. Dans le cas de la modulation de phase induite la fréquence centrale peut de plus être modifiée. Le centre de gravité ou premier moment d'un spectre est alors une notion utile pour étudier les variations de la fréquence centrale de celui-ci. En effet, il est parfois difficile de déterminer la fréquence centrale d'un spectre fortement modulé. De plus, dans le cadre d'une expérience pompe-sonde, nous allons montrer que la variation du centre de gravité du spectre de l'onde de sonde en fonction du retard entre la pompe et la sonde possède des propriétés intéressantes.

On définit le centre de gravité g_ν sur le spectre en fréquence:

$$g_\nu = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \nu |F(\nu)|^2 d\nu}{\int_{-\infty}^{+\infty} |F(\nu)|^2 d\nu} \tag{2.2.4}$$

où $|F(\nu)|^2$ est l'intensité spectrale ($F(\nu)$ est la transformée de Fourier du champ électrique de la sonde $E(t)$). Dans le cadre d'une expérience pompe-sonde, l'intensité spectrale dépend du retard τ entre les deux faisceaux et on a donc:

$$g_\nu(\tau) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \nu |F(\nu,\tau)|^2 d\nu}{\int_{-\infty}^{+\infty} |F(\nu,\tau)|^2 d\nu}$$

Le dénominateur de l'expression précédente est considéré comme constant dans nos expériences et est proportionnel à la densité d'énergie contenue dans le faisceau sonde. C'est donc l'évolution du numérateur en fonction de τ qui nous intéresse. En utilisant la définition de la transformée de Fourier, on obtient:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \nu |F(\nu)|^2 d\nu = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) E^*(t') \nu e^{2i\pi\nu(t-t')} d\nu dt dt' \tag{2.2.5}$$

En notant que la dérivée de la fonction δ est $\delta'(t) = 2i\pi \int_{-\infty}^{+\infty} \nu e^{2i\pi\nu t} d\nu$, l'équation 2.2.5 devient:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \nu |F(\nu)|^2 d\nu = \frac{1}{2i\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) E^*(t') \delta'(t-t') dt dt'$$

Il ne reste plus qu'à intégrer par parties avec toutes les fonctions nulles à l'infini pour obtenir

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \nu |F(\nu)|^2 d\nu = -\frac{1}{2i\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dE(t)}{dt} E^*(t) dt \tag{2.2.6}$$

Le champ électrique de l'onde de faible intensité est donné par:

$$E(t) = E_0(t) e^{i\phi_{nl}(t-\tau)} \tag{2.2.7}$$

où E_0 est le champ avant l'échantillon et ϕ_{nl} est la phase non linéaire induite par le faisceau pompe. En remplaçant E(t) par sa valeur dans l'équation 2.2.6 et en posant

$$W = \int_{-\infty}^{+\infty} |F(\nu,\tau)|^2 d\nu$$

on trouve:

$$g_\nu(\tau) = -\frac{1}{2i\pi W}\int_{-\infty}^{+\infty}\left[\frac{dE_0}{dt}(t) + iE_0\frac{d\phi_{nl}(t-\tau)}{dt}\right]E_0{}^*(t)dt \tag{2.2.8}$$

Le premier terme est indépendant du retard entre les deux ondes d'où

$$g_\nu(\tau) = g_0 - \frac{1}{2\pi W}\int_{-\infty}^{+\infty}|E_0(t)|^2\frac{d\phi_{nl}(t-\tau)}{dt}dt \tag{2.2.9}$$

et g_0 est une constante. Appliquons maintenant le résultat précédent au cas de la modulation de phase induite dans un milieu Kerr instantané. Le faisceau pompe intense induit dans l'échantillon une variation d'indice proportionnelle à son intensité. La phase non linéaire accumulée par le test vaut alors:

$$\phi_{nl}(t-\tau) = \frac{4\pi}{\lambda}\overline{n}_2|E_0(t-\tau)|^2 z \tag{2.2.10}$$

où λ est la longueur d'onde, $\overline{n}_2$ l'indice non linéaire du milieu considéré et z la longueur d'interaction entre les deux faisceaux. L'équation 2.2.9 donne:

$$g_\nu(\tau) = g_0 - \frac{2\overline{n}_2 z}{\lambda W}\int_{-\infty}^{+\infty}|E_0(t)|^2\frac{d|E_0(t-\tau)|^2}{dt}dt \tag{2.2.11}$$

ce qui peut encore s'écrire

$$g_\nu(\tau) = g_0 + \frac{2\overline{n}_2 z}{\lambda W}\frac{d}{d\tau}\left[\int_{-\infty}^{+\infty}|E_0(t)|^2|E_0(t-\tau)|^2dt\right] \tag{2.2.12}$$

$A(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty}|E_0(t)|^2|E_0(t-\tau)|^2dt$ est l'autocorrélation de l'impulsion à caractériser et on a donc

$$g_\nu(\tau) - g_0 = \frac{2\overline{n}_2 z}{\lambda W}\frac{dA(\tau)}{d\tau} \tag{2.2.13}$$

La variation du centre de gravité du spectre de l'onde de sonde en fonction du retard τ est proportionnelle à la dérivée de l'autocorrélation [5]. Comme nous l'avons dit précédemment, l'autocorrélation ne donne qu'une information partielle sur l'impulsion et ne permet pas de remonter à la forme de l'impulsion. Par exemple, les deux impulsions de la figure 2.3 possèdent des autocorrélations très semblables et qui donnent la même largeur à mi-hauteur. On voit cependant bien que ces impulsions sont très différentes. De plus, on constate facilement que l'autocorrélation est un fonction qui est toujours paire, sa dérivée sera donc toujours impaire

$$\frac{dA(-\tau)}{d\tau} = -\frac{dA(\tau)}{d\tau}$$

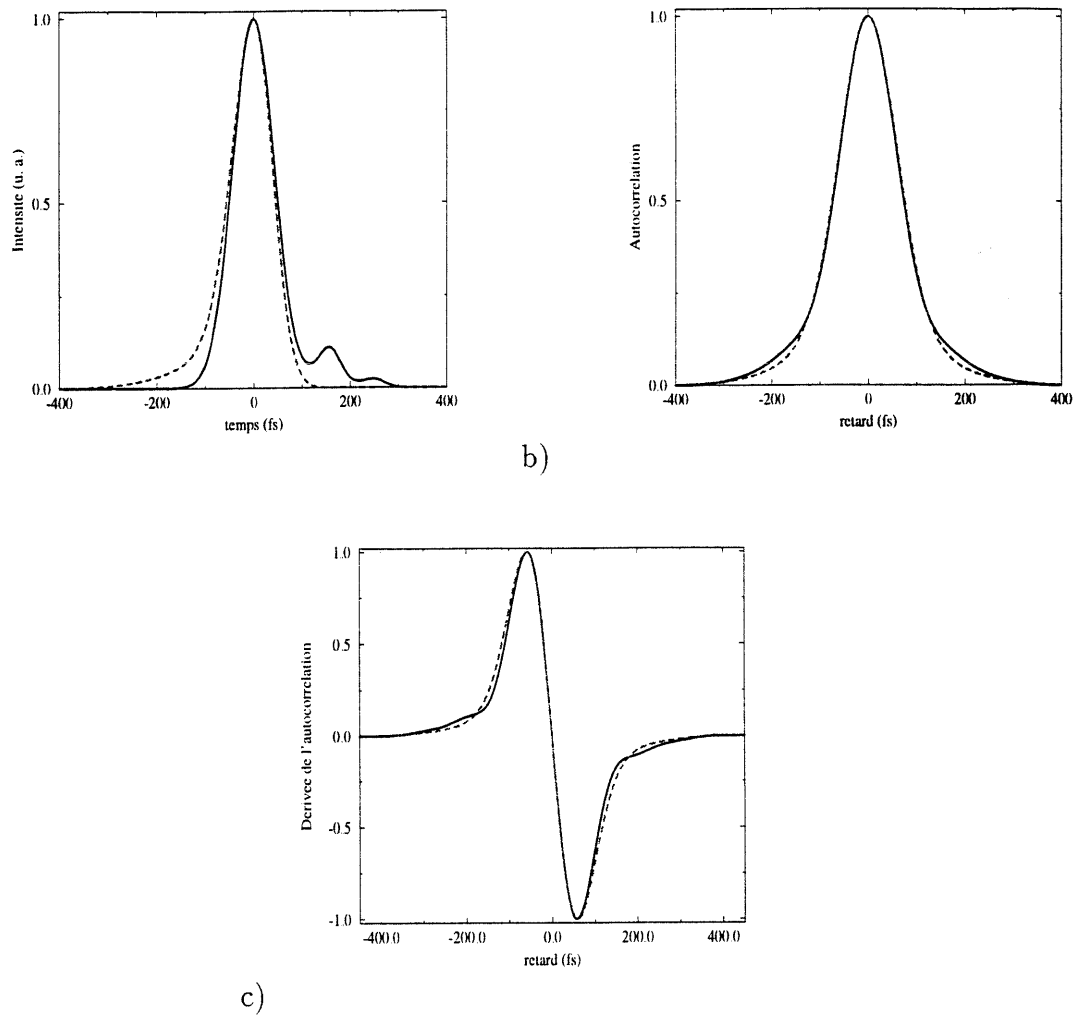


FIG. 2.3 – *Ambiguïté de l'autocorrélation (exemple numérique). a) impulsions avec une traîne à l'avant (pointillés) et avec des rebonds à l'arrière (trait plein), b) autocorrélations correspondantes et c) dérivées des autocorrélations. Les impulsions sont très dissemblables alors que leurs autocorrélations (et leurs dérivées) sont proches. On est de plus incapable de distinguer une structure à l'avant de l'impulsion d'une structure à l'arrière de celle-ci*

Il en résulte donc une ambiguïté dans le sens du temps. Une impulsion précédée d'un satellite donnera la même autocorrélation qu'une impulsion suivie du même satellite. La seule information que l'on peut extraire de la mesure d'une fonction d'autocorrélation est une estimation de la durée de l'impulsion en supposant la forme de cette dernière connue. Pour cela, on utilise souvent des formes gaussiennes ou sécantes hyperboliques car certains modèles d'oscillateurs femtosecondes aboutissent à ce type d'impulsions. On pratique ensuite un ajustement selon la méthode des moindres carrés pour trouver la meilleure gaussienne (ou sécante hyperbolique) qui correspond à l'autocorrélation dont on dispose.

Il est donc possible d'obtenir de façon simple une estimation de la durée de l'impulsion qu'on cherche à caractériser. Nous allons maintenant voir comment une inspection des spectres de modulation de phase induite peut fournir une information qualitative sur la phase de cette impulsion.

Interprétation qualitative des spectrogrammes

Les données expérimentales peuvent être présentées sous forme de spectrogrammes c'est-à-dire sous forme de carte à deux dimensions de l'intensité en fonction de la fréquence et du retard entre les deux ondes comme on peut le voir sur la figure 2.4. Un code de couleur est utilisé pour obtenir la valeur de l'intensité correspondant à un point de l'image. Une information qualitative sur la phase de l'impulsion est facilement extraite du spectrogramme après un traitement simple. Il suffit de soustraire le spectre de référence à tout le spectrogramme. Cela a pour effet de mettre en évidence les variations enregistrées dans les spectres. Les fréquences nouvelles apparaissent alors en clair alors que les points pour lesquels l'intensité spectrale diminue apparaissent en foncé. Le fond gris correspond aux valeurs nulles c'est-à-dire aux points qui n'ont pas été modifiés. On obtient alors une figure telle que la figure 2.5. Celle-ci est caractéristique d'une phase quadratique négative. En effet, on observe trois structures quasi linéaires de pente négative. Dans le cas d'une phase quadratique positive, la pente est inversée (voir figure 2.6). On veut bien sûr connaître aussi l'image qu'on doit obtenir lorsque les phases temporelles et spectrales sont constantes. L'image en forme de "trèfle à quatre feuilles" est caractéristique de ce cas de figure.

On retrouve ceci dans des cas expérimentaux. Ainsi nous avons volontairement écarté les réseaux du compresseur d'une chaine laser amplifiée afin d'imposer une phase principalement quadratique. La figure 2.8-a montre le spectrogramme obtenu lorsque l'on soustrait le spectre

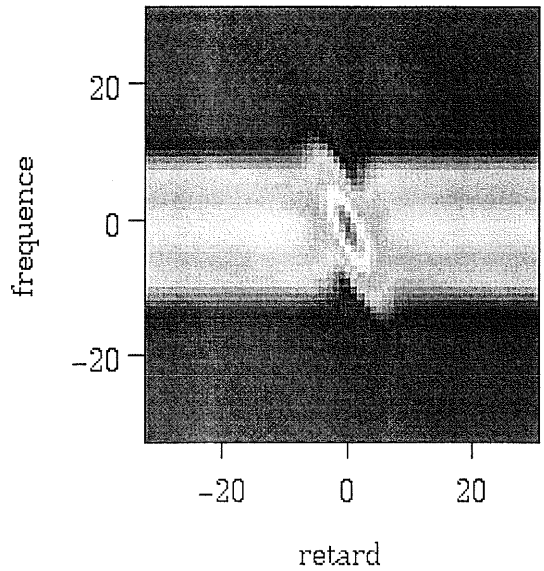


FIG. 2.4 – *Exemple numérique de spectrogramme contenant tous les spectres de modulation de phase induite*

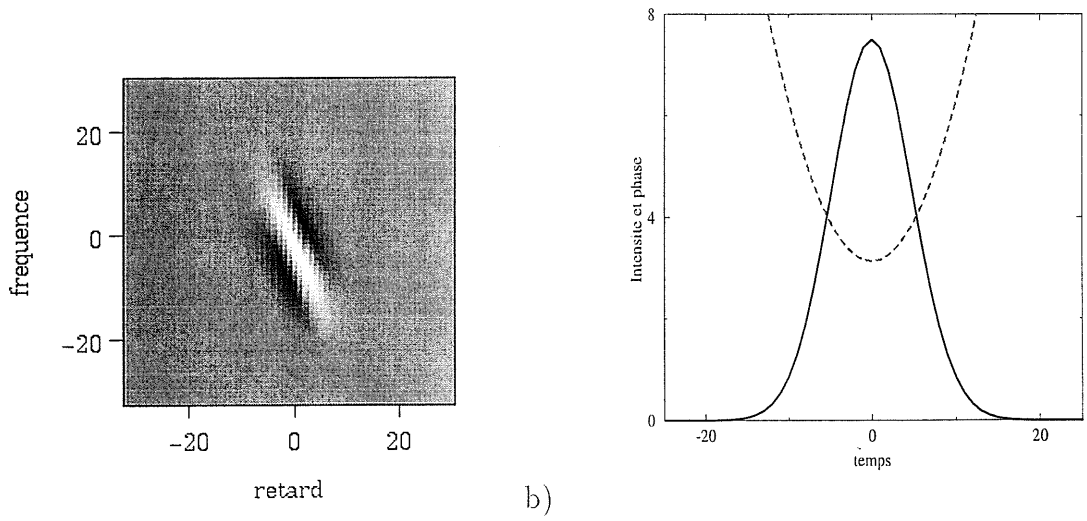


FIG. 2.5 – *a) Spectrogramme obtenu en soustrayant le spectre de référence: phase quadratique négative. b) Impulsion et phase correspondantes*

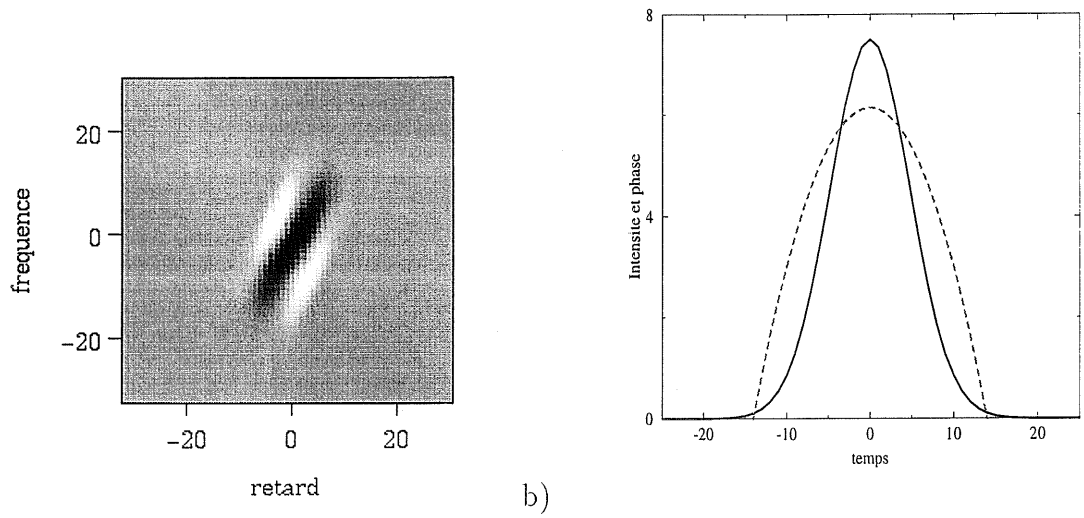


FIG. 2.6 – *a) Spectrogramme obtenu en soustrayant le spectre de référence: phase quadratique positive. b) Impulsion et phase correspondantes*

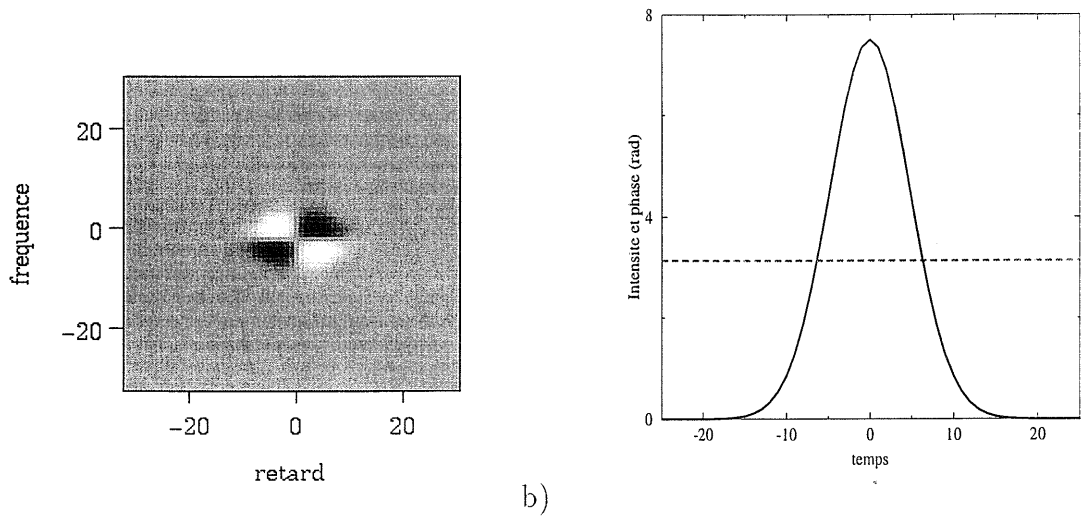


FIG. 2.7 – *a) Spectrogramme obtenu en soustrayant le spectre de référence: phase constante. b) Impulsion et phase correspondantes*

de l'impulsion avant interaction à l'ensemble des spectres enregistrés. La pente est moins prononcée que dans les cas numériques car ceux-ci sont représentés à l'aide d'unités de temps et de fréquences normalisées. L'impulsion (intensité et phase) retrouvée à l'aide de

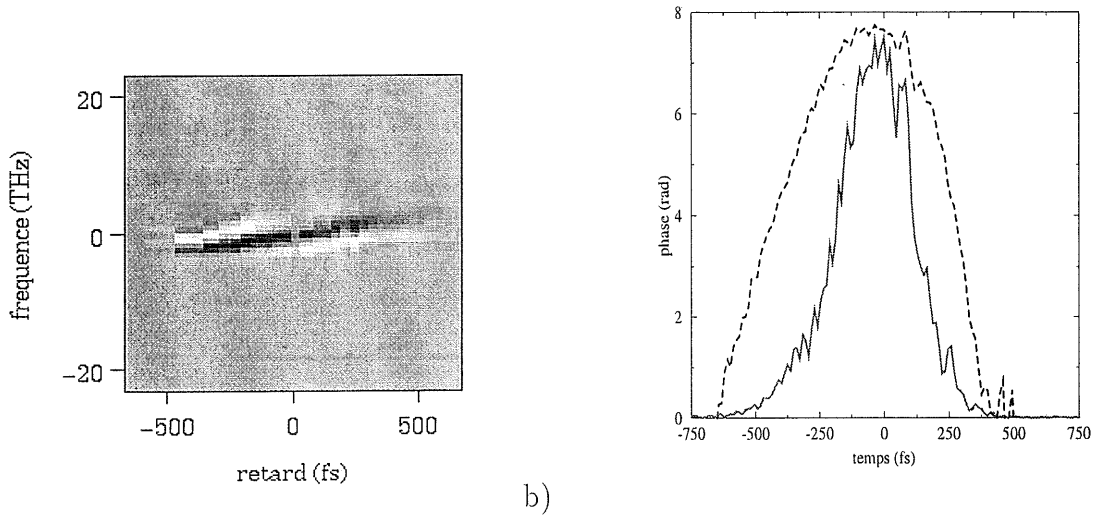


FIG. 2.8 – *a) Spectrogramme obtenu en soustrayant le spectre de référence: phase quadratique positive (exemple expérimental) b) Impulsion et phase correspondantes*

l'algorithme que nous allons présenter dans la suite est montrée à coté de l'image.

2.2.2 Spectres typiques de modulation de phase induite

D'après l'équation 2.2.13, la fréquence centrale du spectre de l'onde de sonde varie en fonction du retard τ entre la pompe et la sonde. La figure 2.9-a montre la position de la sonde par rapport à la pompe selon le signe de τ ainsi que le décalage en fréquence correspondant du spectre de la sonde. La variation du centre de gravité du spectre de la sonde est d'abord positive quand τ est négatif puis négative quand τ est positif (voir figure 2.9-b). On observe un décalage vers le bleu (vers les longueurs d'onde les plus courtes) lorsque le test explore le front descendant de la pompe c'est-à-dire lorsque le retard τ entre les deux ondes est négatif (voir figure 2.10-a pour un exemple expérimental de spectre décalé vers le bleu obtenu avec une impulsion d'une durée de 30 femtosecondes après interaction dans une lame de silice de 500 μm d'épaisseur). Au retard nul, on se trouve dans un cas équivalent à l'automodulation de phase. On voit sur la figure 2.10-b que le spectre est modulé et élargi et on peut alors

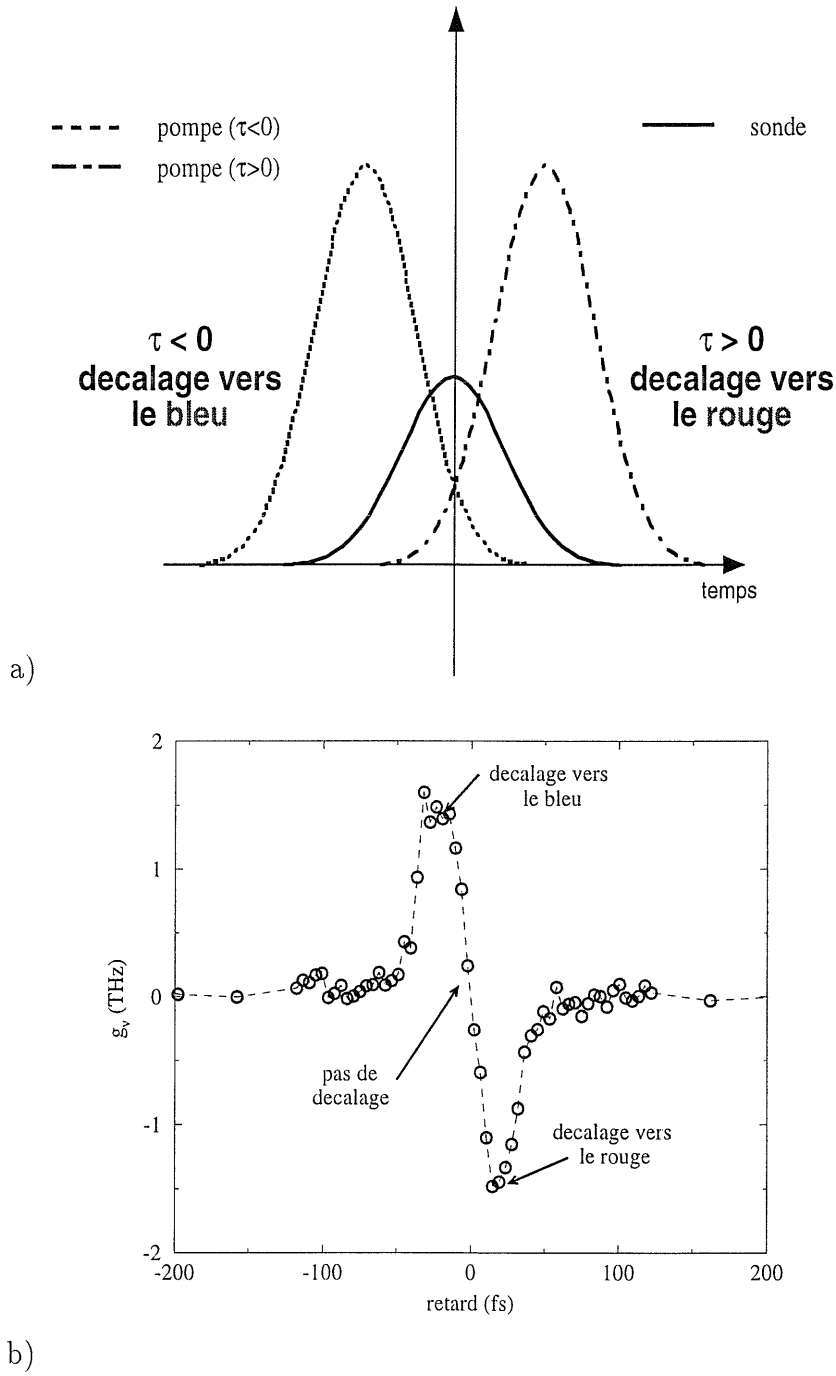


FIG. 2.9 – *a) Positions relatives de la pompe et de la sonde en fonction du signe du retard τ entre la pompe et la sonde. b) Variation du centre de gravité du spectre de la sonde en fonction de τ (exemple expérimental obtenu avec une impulsion d'une durée de 30 femtosecondes après interaction dans une lame de silice de 500 μm d'épaisseur)*

montrer que le centre de gravité du spectre ne doit pas être modifié. Il suffit de prendre

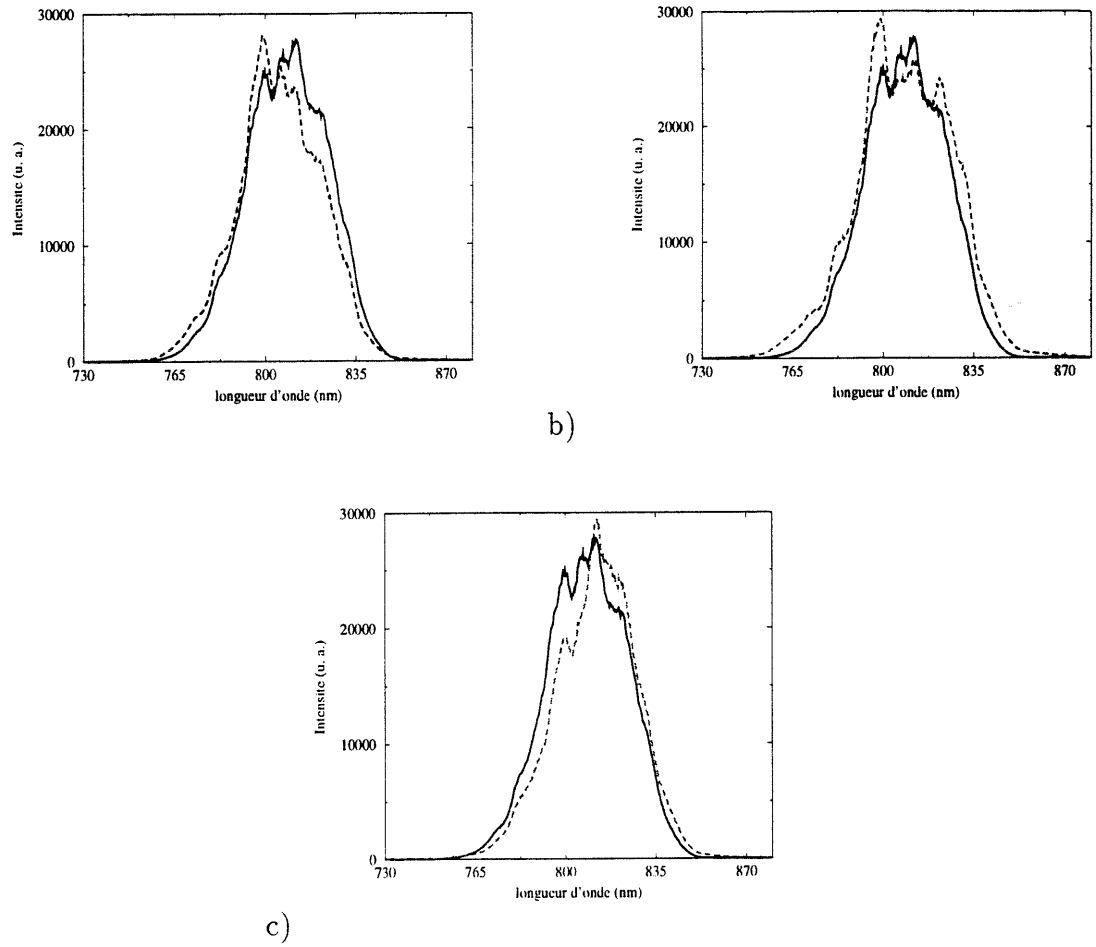


FIG. 2.10 – *Spectres typiques de modulation de phase induite: a) décalage vers le bleu ($\tau < 0$), b) élargissement spectral seul ($\tau = 0$) et c) décalage vers le rouge ($\tau > 0$). Le spectre de référence est en trait plein et les spectres après interaction avec la pompe sont en pointillés. Ces spectres correspondent aux trois points pointés par une flèche sur la courbe de variation du centre de gravité de la figure 2.9-b*

l'équation 2.2.11 avec $\tau = 0$ ce qui donne

$$g_\nu(0) = g_0 - \frac{2\overline{n}_2 z}{\lambda W} \int_{-\infty}^{+\infty} |E_0(t)|^2 \, \frac{d|E_0(t)|^2}{dt} dt$$

ou bien

$$g_\nu(0) = g_0 - \frac{\overline{n}_2 z}{\lambda W} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d|E_0(t)|^4}{dt} dt \tag{2.2.14}$$

Il n'y a pas d'énergie aux temps infinis, donc on en conclut que

$$g_\nu(0) = g_0$$

Malgré la modulation du spectre, son centre de gravité n'a pas bougé. Enfin, un décalage vers le rouge (vers les plus grandes longueurs d'onde) est présent quand l'onde sonde interagit avec le front montant de l'impulsion intense comme on peut le voir sur les spectres de la figure 2.10-c.

Nous avons montré qu'il est possible d'obtenir une information qualitative sur la phase d'une impulsion grâce à l'inspection des spectrogrammes et que le calcul des centres de gravité des spectres de la sonde permet d'obtenir la dérivée de l'autocorrélation. Nous allons maintenant décrire l'algorithme qui permet de retrouver l'amplitude et la phase de l'impulsion.

2.3 Étude numériques

2.3.1 Algorithme

L'algorithme utilisé pour traiter les spectres enregistrés est très simple. C'est une adaptation de celui proposé par Gerchberg et Saxton [41] pour le traitement d'images. Le principe en est le suivant: à partir du spectre de référence mesuré $F_0(\omega)$, on construit une estimation du champ de l'impulsion $E_{cal}(t)$. Il est alors possible de calculer le champ après interaction $E^z_{cal}(t,\tau)$ correspondant à un retard donné entre la pompe et la sonde. Par transformée de Fourier, on obtient $\tilde{E}^z_{cal}(\omega,\tau)$ dont le module devrait être égal au spectre mesuré $F^z_{mes}(\omega,\tau)$. Pour s'en assurer, on substitue le module de $\tilde{E}^z_{cal}(\omega,\tau)$ par la mesure et on garde la phase du champ inchangée. Une nouvelle estimation du champ est calculée et on répète l'opération de substitution avec le spectre de référence. On passe ensuite à une autre valeur de τ. Le principe de l'algorithme est représenté par la figure 2.11. Lors de la première itération, l'estimation du champ est construite à partir d'une phase spectrale nulle, soit

$$E_{cal}(t) = \mathbf{TF}^{-1}\left[\sqrt{F_0}\right]$$

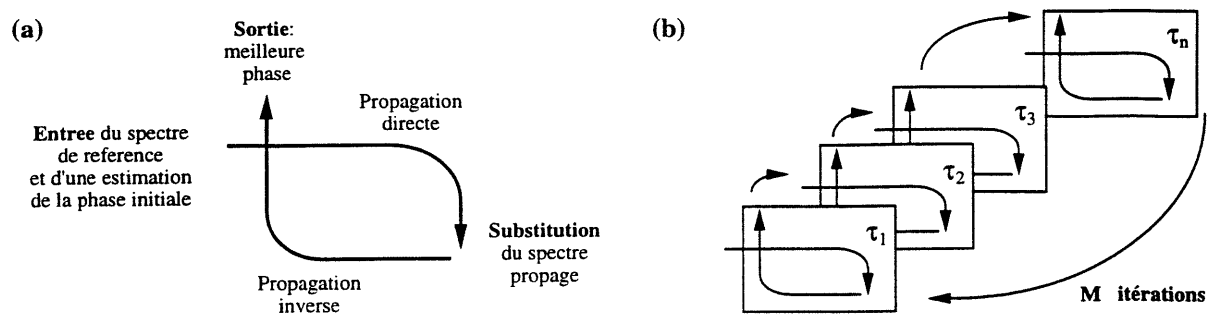


FIG. 2.11 – *Schéma de l'algorithme de recherche de la phase*

On démarre donc à partir de l'impulsion la plus courte possible (limitée par transformée de Fourier, voir annexe B).

2.3.2 Impulsion généralisée

Afin de tester l'algorithme de recherche de phase, on utilise une impulsion généralisée qui permet de générer de nombreuses impulsions différentes à partir de quelques paramètres. On part d'une enveloppe temporelle composée d'une gaussienne ou d'un train de n_p gaussiennes

$$e(t) = \sum_{i=1}^{n_p} \sqrt{s_i} \exp\left[-4\ln 2\left(\frac{t-t_i}{T}\right)^2\right]$$

T est la largeur à mi-hauteur en intensité de chacune des gaussiennes et s_i leur intensité. Une phase temporelle $\psi(t)$ est ensuite ajoutée, elle comprend les termes d'ordre 2 à 4 ainsi que l'automodulation de phase

$$\psi(t) = a\left(\frac{t}{T}\right)^2 + b\left(\frac{t}{T}\right)^3 + c\left(\frac{t}{T}\right)^4 + q|e(t)|^2$$

Par transformée de Fourier, on obtient

$$G(\nu) = \int_{-\infty}^{+\infty} e(t)e^{i\psi(t)}e^{2i\pi\nu t}dt$$

auquel on associe une phase spectrale pour obtenir le champ de l'impulsion dans le domaine des fréquences $\tilde{E}(\nu)$

$$\tilde{E}(\nu) = G(\nu)e^{i\xi(\nu)}$$

avec $\xi(\nu) = u(\nu T)^3 + v(\nu T)^4 + x(\nu T)^5$. Dans le domaine temporel, l'impulsion à retrouver est donnée par

$$E(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(\nu)e^{-2i\pi\nu t}d\nu$$

Chaque impulsion est donc définie par huit coefficients de phase et par un coefficient d'intensité. La quantité de phase non linéaire acquise est donnée par le coefficient q_{med}, de sorte que pour un retard τ entre la pompe et la sonde, le champ après interaction vaut

$$E^z(t,\tau) = E(t)\exp\left(iq_{med}|E(t-\tau)|^2\right)$$

On peut donc construire les spectres simulant l'expérience en calculant pour chaque valeur de τ le carré du module de la transformée de Fourier de $E^z(t,\tau)$

$$F^z(\nu,\tau) = \left|\int_{-\infty}^{+\infty} E^z(t,\tau)e^{2i\pi\nu t}dt\right|^2$$

Il ne reste plus alors qu'à utiliser ces données dans l'algorithme de recherche de la phase. On peut alors vérifier la convergence de la procédure et identifier éventuellement les cas qui posent problème.

2.3.3 Cas tests et performances

Le nombre d'impulsions généralisées que l'on peut générer est infini et il faut donc définir quelques cas caractéristiques pour tester les capacités et les limites du programme de recherche de phase. Il est par exemple intéressant de connaître l'amplitude maximum acceptable d'une phase purement parabolique (tous les coefficients nuls sauf a). On peut également considérer le cas d'une impulsion ayant déjà subi de l'automodulation de phase avant la mesure ou encore celui d'une double impulsion. Tous ces cas sont résumés dans le tableau 2.2. La qualité de la convergence de l'algorithme est jugée à partir de l'erreur E entre le spectrogramme calculé et celui qu'on doit retrouver. E est définie sur tout le spectrogramme soit sur DIM×N pixels où DIM est la dimension des tableaux pour la transformée de Fourier et N le nombre de spectres pris en compte. On a alors

$$E = \frac{\sqrt{\sum_{j=1}^{DIM}\sum_{k=1}^{N}\left[|F_{cal}(\nu_j,\tau_k)|^2 - |F_{sol}(\nu_j,\tau_k)|^2\right]^2}}{\sum_{j=1}^{DIM}\sum_{k=1}^{N}|F_{sol}(\nu_j,\tau_k)|^2}$$

Le temps nécessaire pour faire 300 itérations en traitant 64 spectres échantillonnés sur 64 points est de l'ordre 2 minutes sur une station de travail Hewlett-Packard (de type HP735/99)

	T, t_i, s_i	coefficients $\neq 0$	q_{med}	DIM	N	itérations	erreur
chirp	8, 0, 1	a=10	1	64	64	300	2.0×10^{-15}
seul		a=-8					1.0×10^{-16}
automodulation	16, 0, 1	b=0.3, c=1, q=2	1	128	128	300	1.7×10^{-13}
de phase		b=0.3, c=1, q=4					6.2×10^{-12}
double	8, 24-16i,	a=1, c=-1	2	64	64	300	2.9×10^{-13}
impulsion	1						
phase	8, 0, 0		1	64	64	10	9.0×10^{-17}
constante							

TAB. 2.2 – *Cas tests: paramètres et performance de l'algorithme*

en temps partagé. Nous n'avons pas rencontré de cas où l'algorithme ne parvenait pas à retrouver l'impulsion c'est-à dire que le taux de convergence est toujours très bon (erreur inférieure à 10^{-10}) et qu'on ne rencontre pas de cas ambigus.

La question de l'unicité de la solution pour ce type de problème (trouver une fonction dont on ne connaît que le module de la transformée de Fourier) a été très étudiée. En effet, c'est un problème courant en traitement d'images. On peut tout d'abord écarter certains cas d'ambiguïtés sans importance. En effet, si E(t) est solution du problème alors:

- E(t) exp(iφ_0) où φ_0 est une constante
- E(t-t_0) où t_0 est une constante

sont aussi des solutions. Ensuite, ce problème revient à étudier la factorisation d'un polynôme complexe lorsque l'on considère la transformée de Fourier d'une fonction échantillonnée de manière discrète [42]. Les auteurs montrent que l'unicité de la solution dépend de l'existence et/ou des propriétés des racines de ce polynôme. Si la fonction que l'on cherche à retrouver ne dépend que d'une seule variable, c'est aussi le cas pour le polynôme que l'on étudie. Les polynômes d'une seule variable complexe sont toujours factorisables en un produit de polynômes du premier degré et il n'y a unicité de la solution que si toutes les racines sont

de module égal à un, ce qui n'est généralement pas la cas. Si la fonction dépend de deux variables comme c'est le cas ici (on cherche à retrouver $f(t,\tau) = e(t)\exp(iq_{med}|e(t-\tau)|^2)$), on obtient un polynôme de la forme

$$p(z,w) = \sum_{j=1}^{DIM}\sum_{k=1}^{N} f_{jk} z^j w^k$$

où f_{jk} est la valeur de la fonction f au point (t_j,τ_k). z et w sont donnés par

$$\begin{aligned} z &= \exp(2i\pi d_t u) \\ w &= \exp(2i\pi d_t v) \end{aligned}$$

avec u et v les variables conjuguées de t et τ et d_t le pas d'échantillonnage en t et τ. Du fait du degré élevé du polynôme et puisque les termes en z et en w ne sont pas séparés, il est improbable que p puisse être factorisé ce qui entraîne l'unicité de la solution.

Représentation des solutions

On voit d'après ce qui précède que l'on peut représenter une même impulsion d'une infinité de façons, il faut donc choisir une représentation univoque des solutions obtenues. Celles-ci sont définies à une constante de phase près et on peut choisir arbitrairement l'origine des temps. C'est pourquoi, de toutes les solutions possibles, on ne garde que celle pour laquelle le maximum de $|E(t)|^2$ est situé en t=0 et dont la phase en t=0 est nulle (E(t) est l'enveloppe temporelle lentement variable du champ électrique de l'impulsion) comme on le voit figure 2.12-a. L'enveloppe spectrale (figure 2.12-b) est centrée sur une fréquence dont la valeur est fixée par la mesure. On choisit de plus d'annuler la dérivée de la phase temporelle en t=0. Ces deux conditions fixent la valeur de la fréquence porteuse de l'onde électromagnétique. On peut alors obtenir le champ électrique (figure 2.12-c) exact en temps.

Enfin dans les cas expérimentaux, il est aussi intéressant de comparer les courbes de variations du centre de gravité mesurées et retrouvées par l'algorithme ainsi que les spectrogrammes mesurés et calculés. En effet, cela permet de vérifier a posteriori que l'impulsion possède la bonne durée et que les spectres sont bien retrouvés.

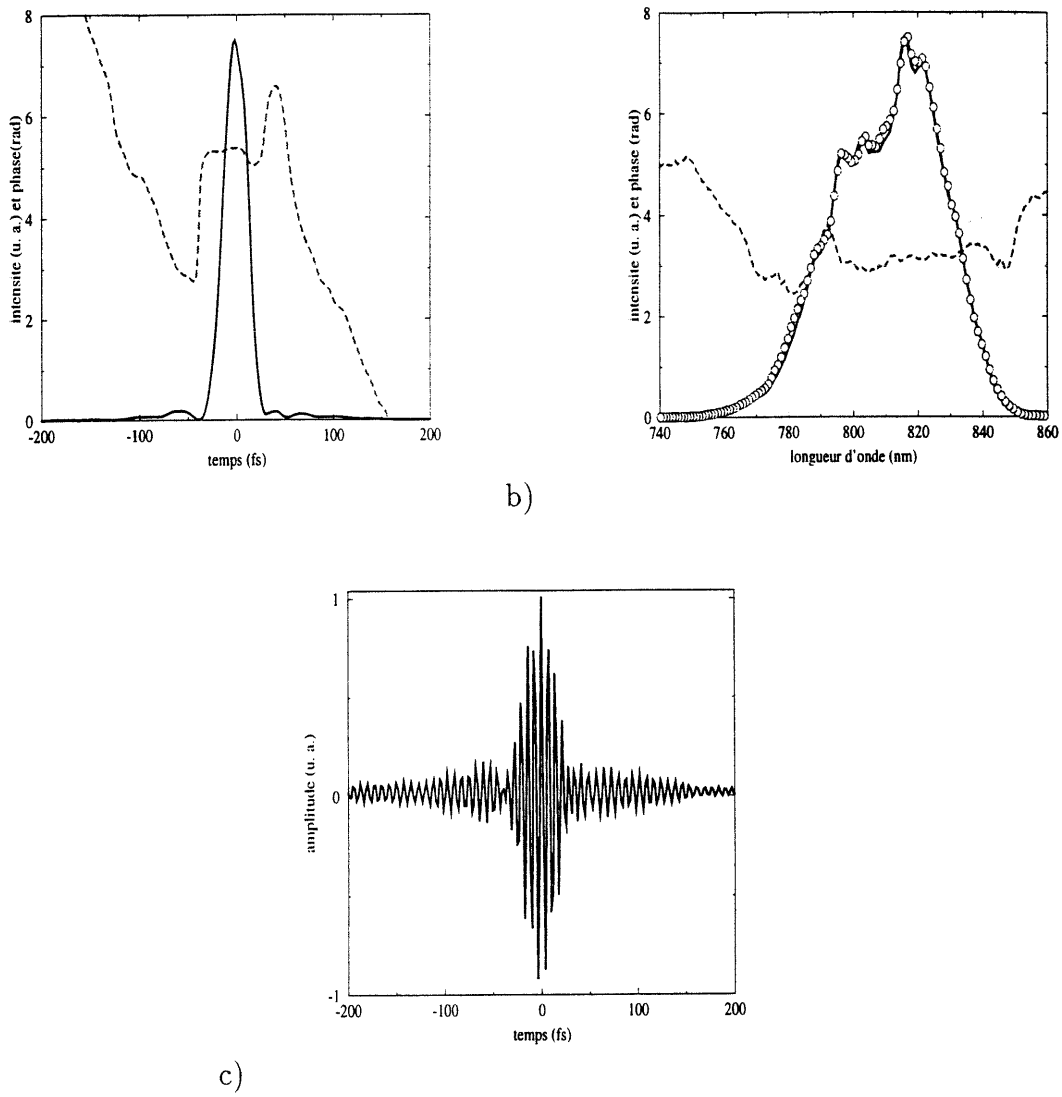


FIG. 2.12 – *Représentations possibles des solutions (exemple expérimental): a) enveloppe temporelle, b) enveloppe spectrale, c) champ électrique*

2.3.4 Rôle du paramètre q_{med}

Un paramètre important de l'algorithme est le paramètre q_{med} qui représente la quantité de phase non linéaire maximale que peut accumuler le faisceau sonde au cours de l'interaction avec le faisceau pompe dans l'échantillon non linéaire. Les valeurs que peut prendre q_{med} sont

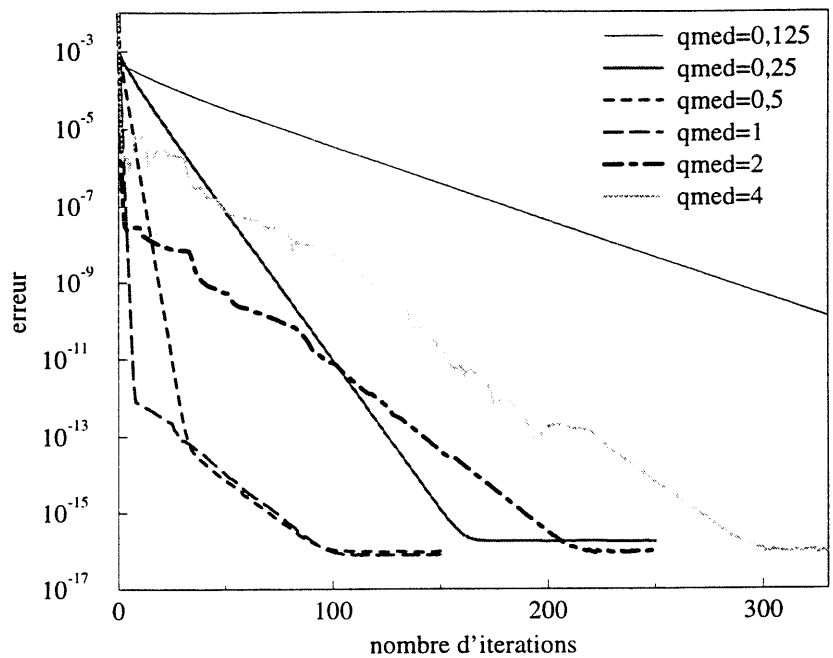


FIG. 2.13 – *Influence de la valeur de q_{med} sur la convergence de l'algorithme (impulsion simple avec T=8, a=3, DIM=64, N=64)*

typiquement comprises entre zéro et quelques unités. En effet, q_{med} doit être strictement positif sinon il n'y a pas d'effet non linéaire. D'autre part, q_{med} ne doit pas dépasser la valeur pour laquelle le faisceau de pompe subit les effets de l'autofocalisation. On voit sur la figure 2.13 que la convergence de l'algorithme est la plus rapide lorsque q_{med} est compris entre 0,5 et 1. Le taux de convergence est encore acceptable pour q_{med}=0,25 mais il faut beaucoup d'itérations pour atteindre l'erreur minimale dès que l'on passe en dessous du seuil de 0,125. 650 itérations sont nécessaires lorsque q_{med}=0,125 et il en faut un peu plus de 1000 quand q_{med}=0,1. De plus, travailler avec un effet non linéaire très faible rendra la méthode très

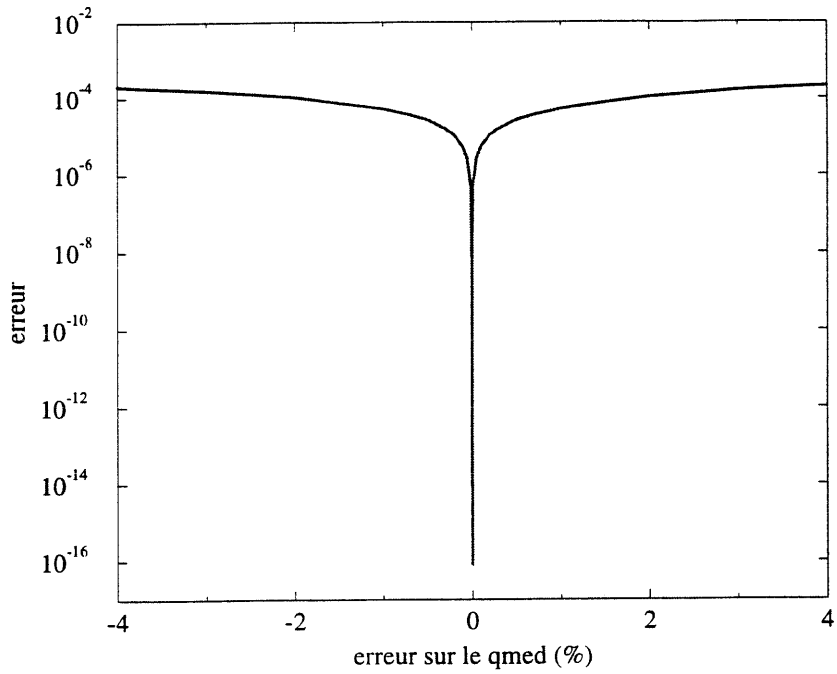


FIG. 2.14 – *Influence de l'erreur sur q_{med} sur la convergence de l'algorithme*

sensible au bruit de mesure.

Lorsque l'on traite des données expérimentales, on ne connaît pas la valeur exacte de q_{med} et il faut donc procéder par essais successifs. Cependant, si on trouve une valeur qui convient, on peut être raisonnablement certain que c'est la seule valeur possible. En effet, on peut voir sur la figure 2.14 que l'erreur n'est minimisée que pour la bonne valeur de q_{med}. Une variation de 1% sur la véritable valeur de ce paramètre fait passer l'erreur sur l'ensemble des spectres de la précision machine à environ 10^{-4}. De plus, la courbe de la figure 2.14 ne présente pas de minimum local, il semblerait donc qu'il y a unicité de la valeur de q_{med} qui permet de retrouver l'impulsion. Enfin, on dispose d'une indication sur celle-ci grâce à la courbe des variations des centres de gravité des spectres après interaction. En effet, en utilisant l'équation 2.2.13, on montre que l'amplitude de cette courbe est proportionnelle à q_{med}.

Déterminons les paramètres qui permettent d'estimer a priori la valeur de la phase non

linéaire maximum accumulée par la sonde. Dans le modèle mono-dimensionnel, q_{med} est donné par

$$q_{med} = \frac{4\pi}{\lambda} n_2 I_p z$$

où I_p est l'intensité crête de l'impulsion de pompe et z la distance d'interaction entre les faisceaux. Si on considère une répartition gaussienne de l'intensité à la fois en temps et en espace, I_p est reliée à l'énergie E de l'impulsion par

$$I_p = \frac{4 \ln 2}{\pi^{\frac{3}{2}}} \frac{E}{T w^2} \tag{2.3.15}$$

avec T la largeur temporelle à mi-hauteur en intensité et w le col du faisceau. On a donc

$$E = \frac{\sqrt{\pi}}{16 \ln 2} \frac{\lambda T w^2}{n_2 z} q_{med} \tag{2.3.16}$$

Le tableau 2.3 donne la valeur de l'énergie par impulsion nécessaire pour avoir $q_{med} = 1$

taille du faisceau (w en millimètres)	énergie par impulsion
5	21 mJ
1	0,85 mJ
0,1	8,5 μJ

TAB. 2.3 – *Énergie par impulsion nécessaire pour obtenir q_{med}=1 pour une impulsion de 100 femtosecondes à 800 nanomètres après interaction dans 500 μm de silice (n_2=3 10^{-16}cm^2/W)*

pour une impulsion de 100 femtosecondes à 800 nanomètres après interaction dans 500 μm de silice (n_2=3 10^{-16}cm^2/W).

Nous avons constaté plus haut que lorsque l'algorithme converge on obtient la valeur de q_{med}. D'après l'équation 2.3.15, on peut exprimer l'intensité crête I_p de l'impulsion en fonction de ce paramètre dès lors que l'on connaît l'indice non linéaire du milieu et la distance d'interaction. On a alors

$$I_p = \frac{\lambda q_{med}}{4\pi n_2 z}$$

La difficulté peut résider dans l'estimation de la longueur d'interaction car les deux faisceaux pompe et sonde font généralement un angle entre eux. En tout cas, l'ajustement du paramètre q_{med} pour obtenir la meilleure convergence possible de l'algorithme permet d'estimer l'intensité crête de l'impulsion.

Simulation des différentes sources de bruit

Il existe toujours un bruit de mesure sur les spectres mesurés lors des expériences. Pour un détecteur dont la dynamique est de 16 bits, ce bruit est de quelques coups au maximum (typiquement moins de 10) ce qui correspond à une amplitude de bruit d'au moins 0,015%. On

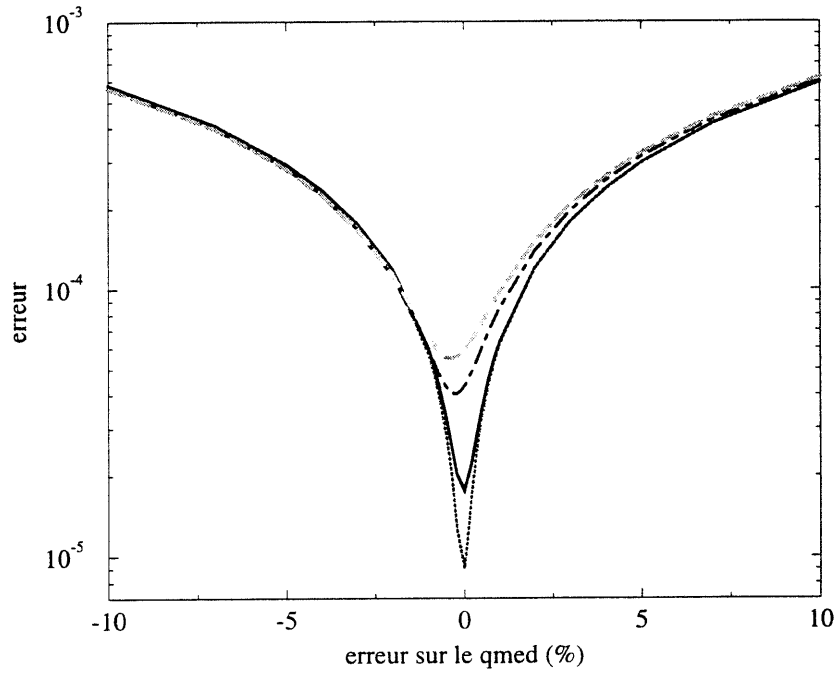


FIG. 2.15 – *Influence des fluctuations en intensité (alternance traits-points), de l'incertitude sur la mesure du retard (points) et du bruit de mesure de l'intensité spectrale (trait plein). Les trois sources de bruit cumulées donnent la courbe en trait discontinu clair*

voit l'influence d'un bruit de 0,1% dans l'intensité spectrale sur la convergence de l'algorithme sur la figure 2.15. L'erreur la plus basse obtenue (de l'ordre de 10^{-5} est assez nettement

supérieure à la limite imposée par l'erreur d'arrondi de l'ordinateur (de l'ordre de 10^{-15} en double précision). De plus, la courbe de l'erreur en fonction de l'écart au q_{med} vrai est beaucoup moins piquée que celle que l'on obtient en absence de bruit (figure 2.14). Nous avons également étudié l'influence de l'incertitude sur la valeur du retard entre l'onde de pompe et l'onde de sonde ainsi que l'influence des variations tir à tir de l'intensité crête de l'impulsion de pompe. En effet, le retard est modifié en déplaçant un élément optique à l'aide d'un moteur pas à pas et le pas de ce moteur n'est pas exactement le même sur toute la longueur de déplacement. Il en résulte une incertitude sur la valeur de τ qui est fixée à 2% dans l'étude numérique. Enfin, nous avons considéré que l'intensité crête du laser peut varier de 10% d'un tir laser à un autre. Comme on peut le voir sur la figure 2.15, chacune des sources de bruit prise séparément empêche l'erreur d'atteindre la limite théorique. Enfin, les trois sources de bruit sont ajoutées ce qui dégrade encore un peu plus les performances de l'algorithme de recherche de la phase mais l'erreur est encore inférieure à 10^{-4}.

L'algorithme mis au point pour la recherche de la phase est simple, rapide et résistant au bruit, nous pouvons donc passer à l'application expérimentale de la technique de caractérisation d'impulsions.

2.4 Résultats expérimentaux

Nous allons commencer par présenter le dispositif utilisé pour les expériences. Ce dispositif est assez compact ce qui permet de fixer les éléments optiques qui le composent sur une plaque de métal et de le déplacer afin de caractériser différentes sources laser amplifiées du laboratoire d'optique appliquée. Les mesures effectuées sur trois des chaînes laser disponibles sont ensuite présentées.

2.4.1 Dispositif pour la mesure de phase

Le faisceau du laser est divisé en deux parties, une intense (la pompe) et une peu intense (la sonde). Cette séparation peut être réalisée de plusieurs façons. Par exemple, on peut envoyer le faisceau sur une lame dont les coefficients de réflexion et de transmission sont connus. En général, pour une lame de verre nue et lorsque l'angle d'incidence sur celle-ci est faible, environ 4% de la lumière est réfléchie et le reste est transmis ce qui produit

naturellement deux faisceaux d'intensités différentes. La séparation peut aussi être spatiale puisque la répartition d'intensité dans le faisceau est proche d'une gaussienne. Dans ce cas, le centre est pris comme pompe et une partie de la périphérie sert de sonde.

Il faut ensuite pouvoir décaler dans le temps une voie par rapport à l'autre. La technique la plus courante est de faire parcourir aux faisceaux deux trajets de longueurs différentes. En effet, dans le vide ou l'air, la lumière met 100 femtosecondes pour couvrir une distance de 30 μm. On voit alors qu'une mécanique dont la précision est inférieure au μm permet d'obtenir une résolution temporelle de l'ordre de la femtoseconde au moins. Le dispositif retenu est un interféromètre soit de type Michelson, soit de type Mach-Zender, dont un des bras est de longueur variable. Un moteur pas à pas permet de changer la différence de chemin entre les deux bras.

Deux configurations d'interaction ont été utilisées, l'une avec un système de focalisation et l'autre sans. Dans le premier cas, les deux faisceaux sont parallèles et l'interaction a lieu au foyer d'une lentille sphérique ou d'un miroir sphérique légèrement hors d'axe. Dans le deuxième, la pompe est assez intense pour qu'il n'y ait pas besoin de la focaliser. Il suffit alors que les faisceaux se croisent dans l'échantillon non linéaire. Le montage expérimental avec miroir de focalisation est représenté sur la figure 2.16. Si on travaille avec des faisceaux parallèles, il suffit que les faisceaux se croisent dans l'échantillon. Les focales sont typiquement comprises entre 100 et 200 millimètres. Dans les deux cas, on fait en sorte que la taille du faisceau sonde soit plus petite que celle du faisceau pompe. Ainsi la sonde traverse une zone homogène de la pompe.

Comme on peut le voir sur la figure 2.16, deux spectres sont enregistrés, le spectre de contrôle et le spectre de modulation de phase induite noté spectre XPM. Le spectre de contrôle sert à sélectionner différents tirs laser ayant certaines caractéristiques en commun. En effet, chaque tir laser produit une impulsion un peu différente des autres. Par exemple, les fluctuations d'énergie tir à tir typiques d'une chaîne laser Ti:Al_2O_3 amplifiée sont de l'ordre de 10 %. Au cours des expériences, on ne garde que les tirs pour lesquels l'énergie et le centre de gravité du spectre de contrôle tombent dans un intervalle prédéfini. Le spectre de modulation de phase induite est collecté à l'aide d'une fibre optique de 200 μm de diamètre. Une lentille est utilisée pour focaliser la lumière dans la fibre sinon la déviation induite par la pompe [43] pourrait modifier l'efficacité du couplage dans la fibre.

Le choix du matériau dans lequel est fabriqué les miroirs que l'on utilise dans le dis-

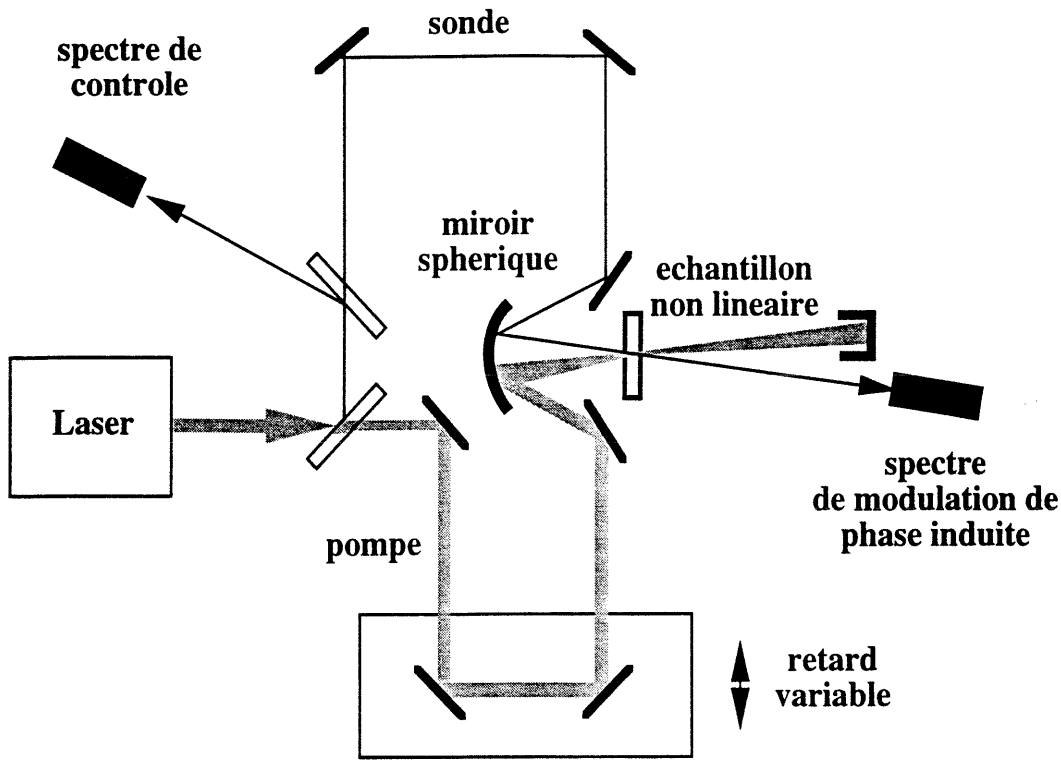


FIG. 2.16 – *Montage expérimental pour l'acquisition en multi-coups*

positif de mesure est très important. En général, on choisit soit des miroirs diélectriques multicouches, soit des miroirs en silice recouverts de métal. La bande passante des miroirs diélectriques doit être plus large que l'ensemble des spectres sinon les spectres enregistrés seront différents de ceux qu'on devrait avoir. La figure 2.17 montre l'influence d'une bande passante limitée c'est-à-dire lorsque le spectre passe brutalement à zéro à partir d'un certain niveau en intensité. On voit que le contraste de l'impulsion se dégrade nettement. D'autre part, la réflectance des miroirs métalliques varie avec la longueur d'onde (voir figure 2.18). L'argent est mieux adapté pour le rouge et le proche infrarouge alors que l'aluminium s'impose pour le bleu et le proche ultraviolet.

La question du choix du matériau à l'intérieur duquel se produit l'interaction non linéaire se pose également. L'absorption linéaire et non linéaire doit être négligeable et la réponse non linéaire du milieu doit pouvoir être considérée comme instantanée. La silice a un écart de bandes important et l'absorption à deux photons est négligeable pour les longueurs d'onde

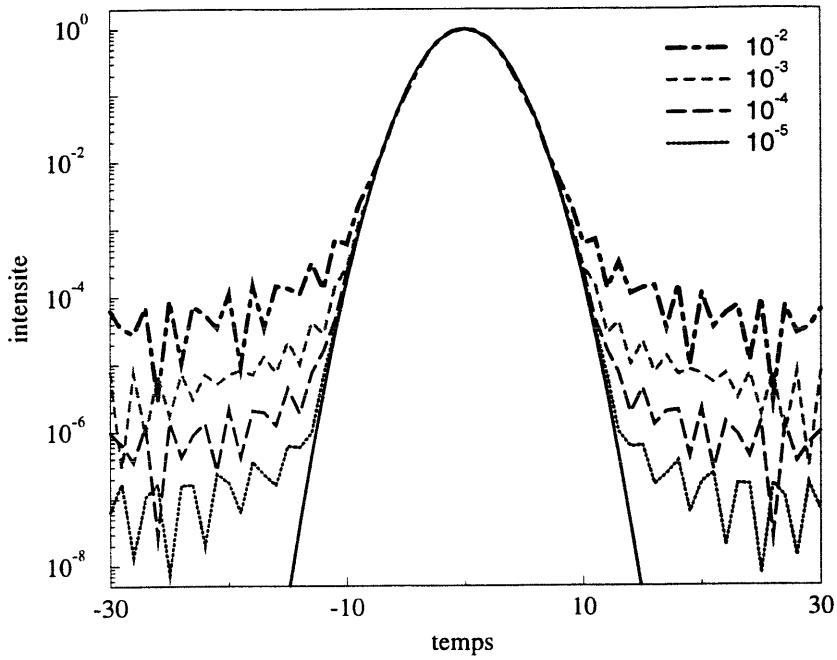


FIG. 2.17 – *Influence de la bande passante des éléments optiques sur la dynamique d'une impulsion courte. Le contraste se dégrade de plus en plus lorsque l'on coupe l'intensité spectrale de 10^{-5} jusqu'à 10^{-2} du maximum*

qui nous concernent [44, 45]. Cependant, le taux d'absorption à deux photons de la silice augmente lorsque la longueur d'onde décroit. Ainsi elle vaut 0,05 cm/GW à 266 nanomètres [45] ce qui correspond à une absorption d'environ 40 % après un centimètre de propagation pour une impulsion incidente d'intensité crête égale à $1{,}4\times10^{11}$ W/cm^2. Son influence sur la propagation des différentes ondes interagissant dans le milieu est alors loin d'être négligeable. Il faut donc certainement utiliser d'autres matériaux tels LiF ou MgF_2 pour ces longueurs d'onde. Le temps de réponse de la polarisation du troisième ordre doit aussi être très petit devant la durée des impulsions que l'on veut caractériser. Pour la silice, il est estimé à 0,2 femtoseconde [46, 47] et c'est donc bien le cas. Il faut enfin pouvoir négliger l'influence de la dispersion de vitesse de groupe, c'est pourquoi une lame de seulement 500 μm d'épaisseur est utilisée dans la plupart des expériences présentées.

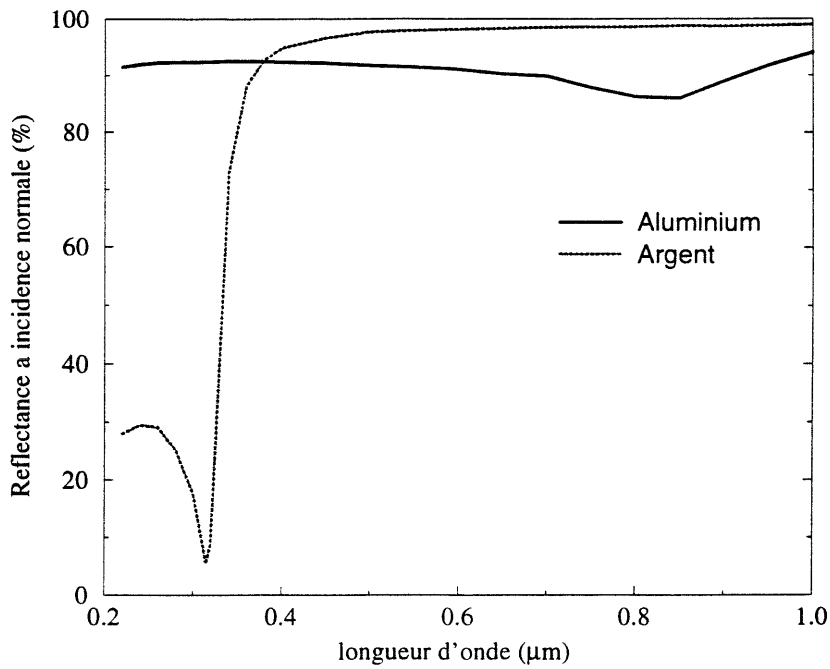


FIG. 2.18 – *Réflectance en incidence normale de miroirs aluminium et argent en fonction de la longueur d'onde*

2.4.2 Validation de la méthode

Un moyen simple de tester une méthode de caractérisation d'impulsions ultracourtes est d'ajouter une phase connue entre 2 expériences. Une façon de le faire est de mesurer la phase et l'amplitude d'une impulsion avant et après propagation dans un échantillon dont les propriétés (dispersion de vitesse de groupe, indice non linéaire ...) sont connues.

Il est aussi possible de changer la phase introduite par le compresseur d'une chaîne amplifiée. En effet, si on développe cette phase en série de Taylor, on obtient [48, 49]

$$\varphi(\omega) = \frac{1}{2}\,\varphi^{(2)}(\omega_0) \times (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}\,\varphi^{(3)}(\omega_0) \times (\omega - \omega_0)^3 \tag{2.4.17}$$

avec

$$\varphi^{(2)}(\omega_0) = \frac{L{\lambda_0}^3}{\pi c^2 d^2 \cos^3\theta}$$

et

$$\varphi^{(3)}(\omega_0) = -\frac{3}{\omega_0}\left[1 + \frac{\lambda_0}{d}\frac{\sin\theta}{\cos^2\theta}\right]\varphi^{(2)}(\omega_0)$$

où d est la période des réseaux de diffraction, L la distance entre les réseaux et θ l'angle de diffraction. On a mesuré l'impulsion produite par la chaîne laser pour deux écartements des réseaux différant de 1,5 millimètre. Les impulsions retrouvées sont montrées sur la figure 2.19. La figure 2.19-ab montre les intensités et les phases temporelles et spectrales lorsque que le compresseur est proche de l'optimum (phase spectrale constante). On retrouve les mêmes grandeurs sur la figure 2.19-cd mais après avoir écarté les deux réseaux du compresseur de 1,5 mm. La méthode de caractérisation des impulsions donne des résultats satisfaisants si la différence de phase mesurée entre les deux expériences est proche de celle prédite par l'équation 2.4.17. C'est le cas comme on peut le constater sur la figure 2.20. La phase introduite par le compresseur est calculée avec les paramètres suivants: L = 51,6 cm, d = 500 nm et $\theta = 46{,}87^o$ pour une longueur d'onde centrale située à 803 nm.

2.4.3 Caractérisation de chaînes laser amplifiées du LOA

Au cours de ma thèse, l'occasion m'a été donnée de travailler sur plusieurs chaînes laser amplifiées utilisant le saphir dopé au titane ($Ti:Al_2O_3$) comme milieu amplificateur. Les deux premières fonctionnent à un taux de répétition de 10 Hertz et la dernière au kiloHertz. Pour les trois installations, l'amplification est réalisée sur des impulsions temporellement étirées. Elles sont ensuite recomprimées avant d'être utilisées par les expérimentateurs. Les expériences réalisées à l'aide de ces lasers couvrent de nombreux domaines tels que par exemple la physique des plasmas ou la génération d'harmonique d'ordre élevé.

Salle verte

La première source laser sur laquelle il m'a été donné de travailler est un exemple typique de ce qui est bien maîtrisé dans la technologie des sources femtosecondes amplifiées. Le système comporte un oscillateur produisant des impulsions d'une durée d'environ 90 femtosecondes, un étireur à doublet, un amplificateur à dérive de fréquences (CPA) à deux étages (8 passages et 4 passages) et un compresseur. On obtient alors des impulsions d'environ 120 femtosecondes de durée pour une énergie maximale de 60 millijoules avec un spectre centré autour de 800 nanomètres. Le taux de répétition du système est de 10 Hz [50].

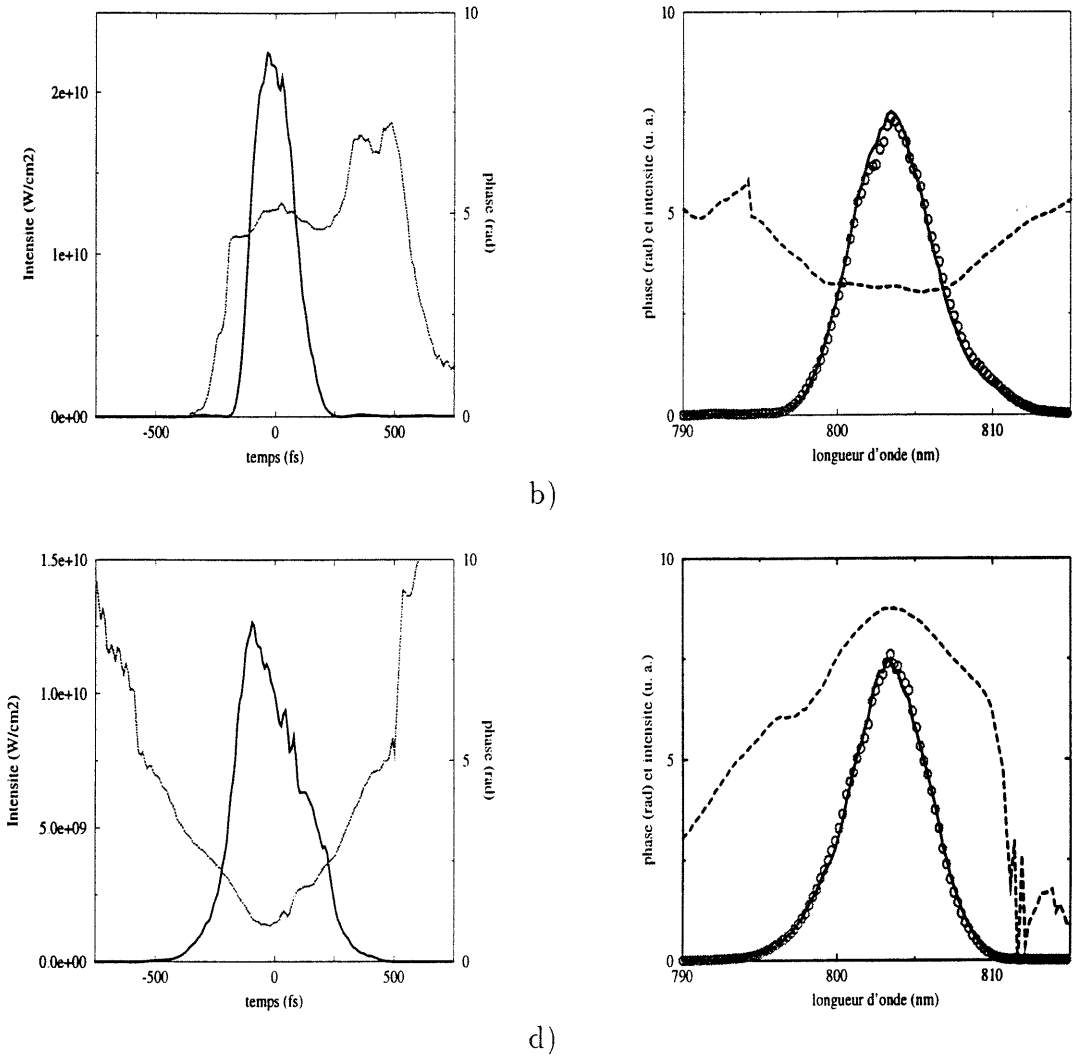


FIG. 2.19 – *a) Impulsion et b) spectre d'une chaîne laser saphir dopé au titane lorsque la distance entre les réseaux du compresseur proche de l'optimum ($L=L_0$). c) Impulsion et d) spectre pour $L=L_0+1,5$ mm*

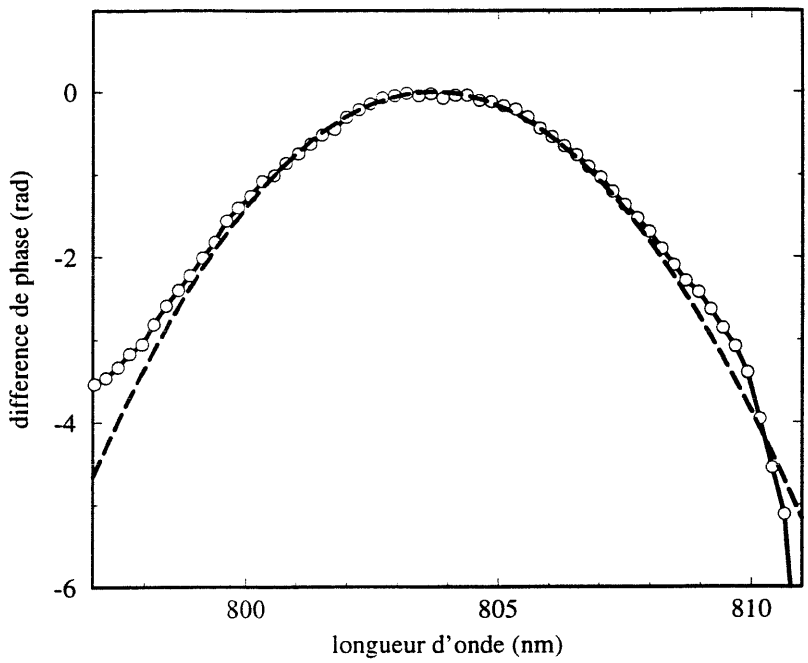
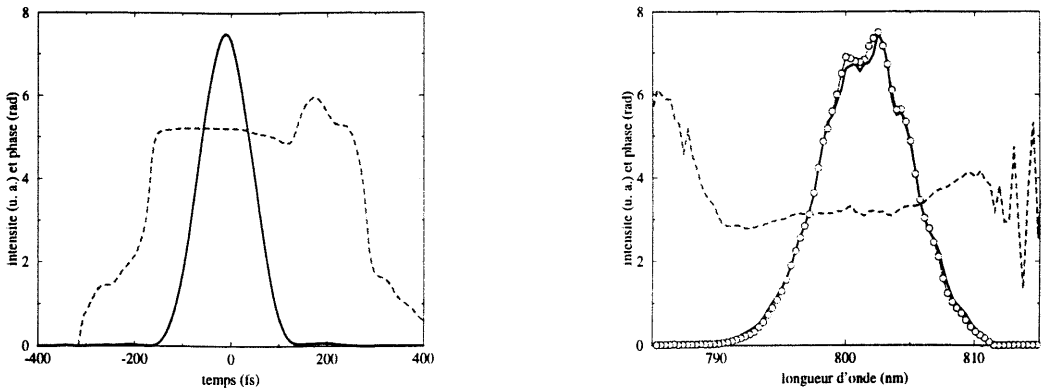


FIG. 2.20 – *Différence de phase induite par l'écartement des réseaux du compresseur: théorie (trait pointillé) et mesure (cercles)*

Nous avons mesuré le profil temporel des impulsions produites par ce laser (figure 2.21). L'interaction pompe-sonde a été réalisée dans une lame de silice (suprasil) de 500 μm d'épaisseur et l'énergie par impulsion dans le faisceau pompe utilisée est de 16 microjoules. Les fluctuations tir à tir de l'intensité sont de l'ordre de 10% mais la sélection des tirs lasers selon leur énergie et selon le centre de gravité du spectre de contrôle permet d'obtenir une mesure assez homogène comme on peut le voir sur la courbe de variation du centre de gravité du spectre de la sonde 2.22. La phase spectrale retrouvée est presque constante, les impulsions sont donc presque limitées par transformée de Fourier. Leur largeur à mi-hauteur en intensité est de 125 femtosecondes. De plus, les spectrogrammes de la figure 2.23 sont proches de la forme "en trèfle à quatre feuilles" qui correspond à ce type d'impulsion.

Nous avons également caractérisé les impulsions que l'on obtient dans le proche ultraviolet (λ=400 nanomètres) par doublage de fréquences dans un cristal non linéaire. Le cristal



a) b)

FIG. 2.21 – *Salle verte: enveloppe retrouvée a) dans le domaine temporel (intensité en trait plein et phase en pointillés), b) dans le domaine spectral (intensité mesurée en trait plein, retrouvée par l'algorithme (cercles) et phase en pointillés). L'expérience de modulation de phase induite a été réalisée dans une lame de silice de 500 μm d'épaisseur et une 'energie par impulsion de 16 microjoules pour le faisceau de pompe. L'impulsion retrouvée a une durée de 125 fs*

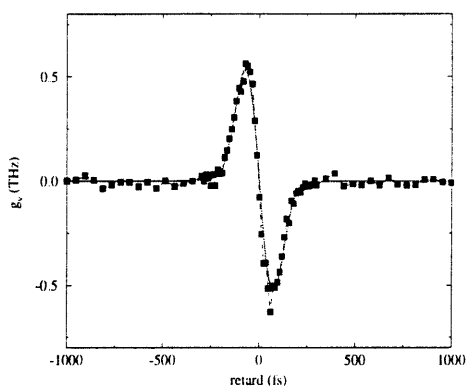


FIG. 2.22 – *Courbe de variation du centre de gravité pour une impulsion à 800 nanomètres: mesurée (carrés) et calculée en utilisant l'impulsion retrouvée par l'algorithme de recherche de la phase (trait plein)*

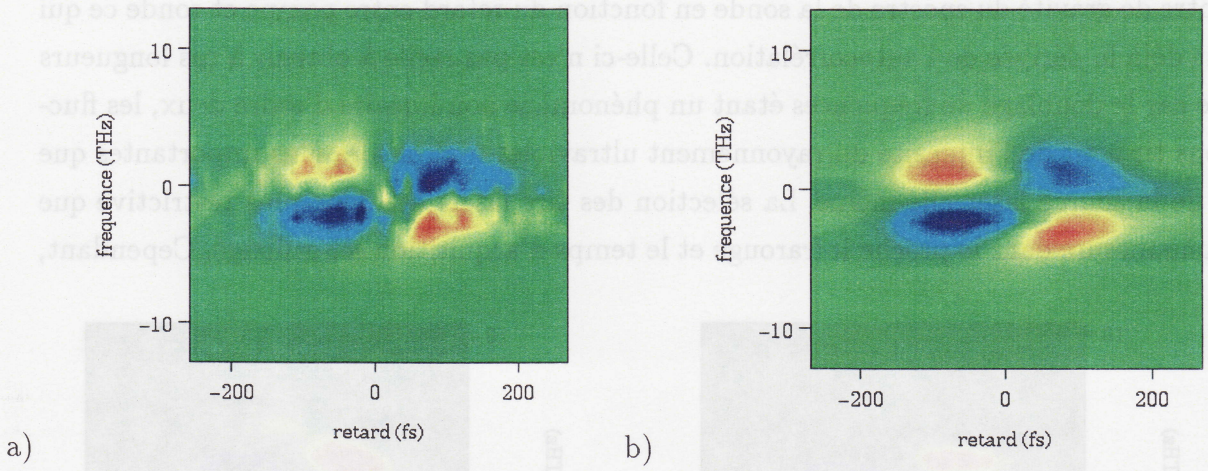


FIG. 2.23 – *Spectrogrammes obtenus avec le laser 0.5 TW (salle verte): a) mesuré, b) calculé en utilisant l'impulsion retrouvée par l'algorithme de recherche de la phase*

utilisé est du borate de β-Barium (BBO) et fait 500 μm d'épaisseur. Le doublage a été réalisé en configuration de type I en géométrie colinéaire. Un filtre passe-bande permet de séparer le rayonnement ultraviolet de l'infrarouge. Par ailleurs, les conditions de l'expérience sont les mêmes que pour la mesure du fondamental. La figure 2.24 montre la courbe des variations

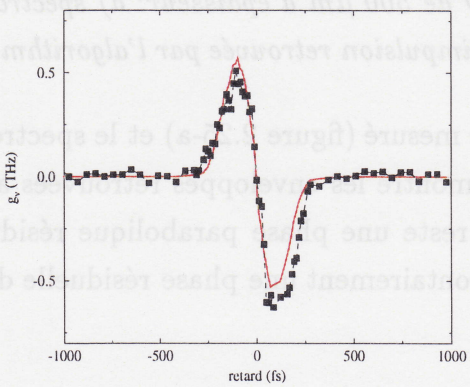


FIG. 2.24 – *Courbe de variation du centre de gravité pour une impulsion à 400 nanomètres générée par doublage de fréquences du laser 0,5 TW dans un cristal de BBO de 500 μm d'épaisseur: mesurée (carrés) et calculée en utilisant l'impulsion retrouvée par l'algorithme de recherche de la phase (trait plein)*

du centre de gravité du spectre de la sonde en fonction du retard entre pompe et sonde ce qui fournit déjà la dérivée de l'autocorrélation. Celle-ci n'est pas facile à obtenir à ces longueurs d'onde car le doublage de fréquences étant un phénomène non linéaire d'ordre deux, les fluctuations tir à tir de l'intensité du rayonnement ultraviolet sont encore plus importantes que celles de la source laser elle-même. La sélection des tirs lasers est donc plus restrictive que pour une mesure dans le proche infrarouge et le temps d'acquisition est rallongé. Cependant,

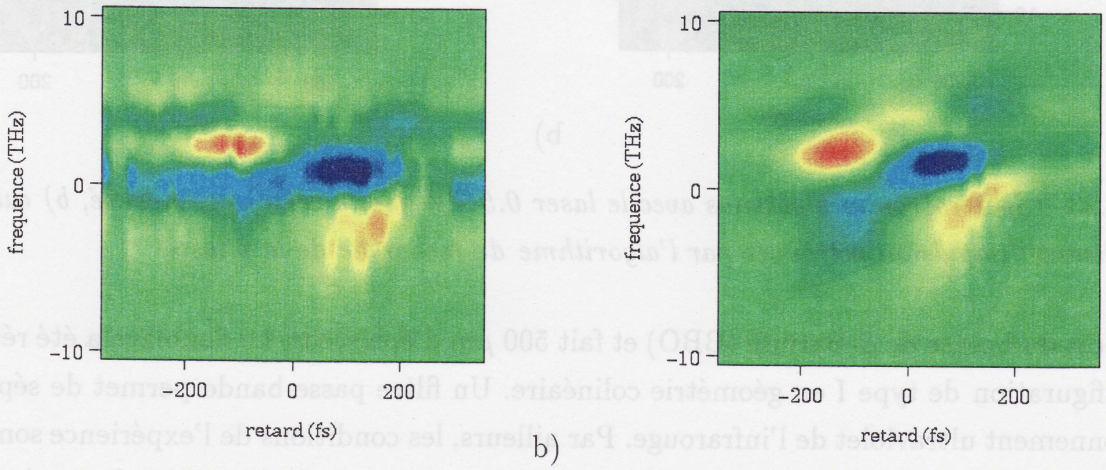
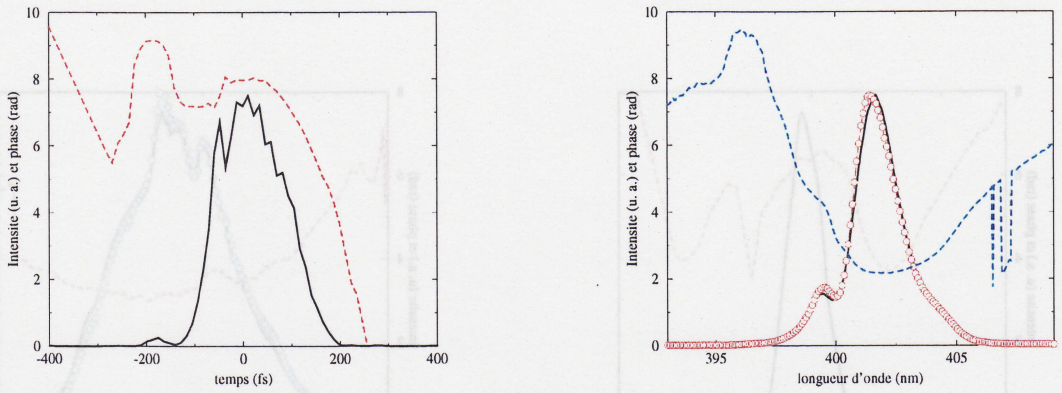


FIG. 2.25 – *Second harmonique du laser 0,5 TW (salle verte) obtenue par doublage de fréquences dans un cristal de BBO de 500 μm d'épaisseur: a) spectrogramme mesuré, b) spectrogramme calculé en utilisant l'impulsion retrouvée par l'algorithme de recherche de la phase*

l'accord entre le spectrogramme mesuré (figure 2.25-a) et le spectrogramme retrouvé (figure 2.25-b) est bon. La figure 2.26 montre les enveloppes retrouvées après traitement des données. On peut remarquer qu'il reste une phase parabolique résiduelle qu'il serait possible de précompenser en laissant volontairement une phase résiduelle de signe opposé sur l'onde fondamentale.

Salle jaune

Le Laboratoire d'Optique Appliquée possède un des lasers les plus intenses et les plus puissants au monde. En effet, le laser de la salle jaune peut produire toutes les dixièmes de seconde (à 10 Hz) des impulsions dont la durée est de 26 femtosecondes et l'énergie de 780 millijoules ce qui représente une puissance de 30 térawatts et permet d'atteindre un intensité



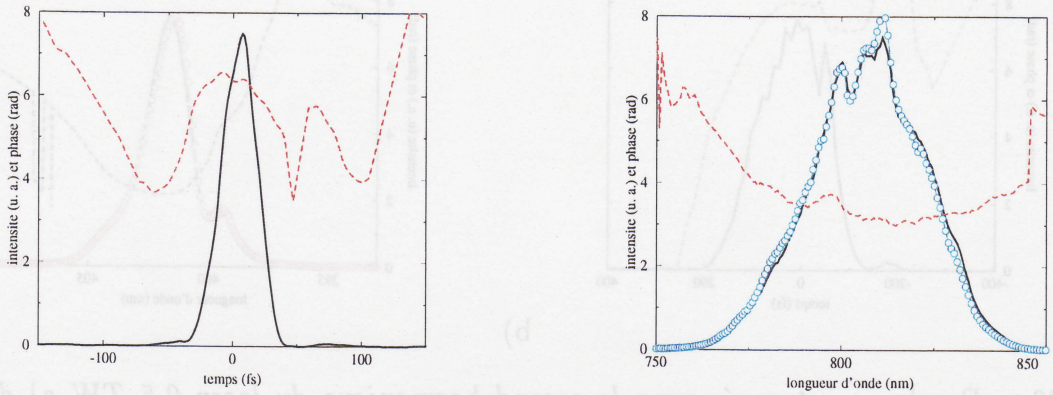
a) b)

FIG. 2.26 – *Enveloppe retrouvée pour le second harmonique du laser 0,5 TW a) dans le domaine temporel (intensité en trait plein et phase en pointillés), b) dans le domaine spectral (intensité mesurée en trait plein, retrouvée par l'algorithme (cercles) et phase en pointillés). Ces résultats correspondent aux spectrogrammes de la figure 2.25*

supérieure à 10^{19} W/cm^2 en focalisant [51]. A ces intensités, il est nécessaire de travailler sous vide à partir de la recompression des impulsions amplifiées. Cette chaîne laser possède trois étages d'amplification, 10 % de l'énergie est prélevée après le deuxième étage d'amplification et recomprimée à l'écart du faisceau principal. L'énergie par impulsion est alors d'environ 10 millijoules ce qui permet de travailler à pression normale.

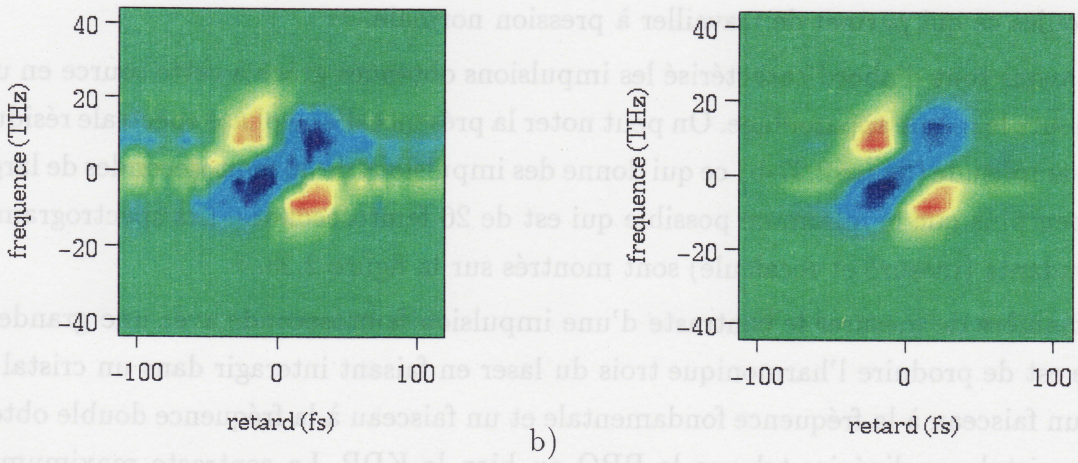
Nous avons tout d'abord caractérisé les impulsions obtenues grâce à cette source en utilisant toujours le même appareillage. On peut noter la présence d'une phase spectrale résiduelle de faible amplitude (figure 2.27-b) ce qui donne des impulsions de 30 femtosecondes de largeur soit un peu plus que le minimum possible qui est de 26 femtosecondes. Les spectrogrammes correspondants (mesuré et recalculé) sont montrés sur la figure 2.28.

Une manière de mesurer le contraste d'une impulsion femtoseconde avec une grande dynamique est de produire l'harmonique trois du laser en faisant interagir dans un cristal non linéaire un faisceau à la fréquence fondamentale et un faisceau à la fréquence double obtenue dans un cristal non linéaire tel que le BBO ou bien le KDP. Le contraste maximum que l'on peut obtenir dépend des durées relatives des impulsions à ω et à 2ω [52]. La durée des impulsions à 400 nanomètres dépend principalement de l'épaisseur du cristal. En effet, la différence entre les vitesses de groupe pour le fondamental et l'harmonique fait que les deux



a) b)

FIG. 2.27 – *Salle jaune: enveloppe retrouvée a) dans le domaine temporel (intensité en trait plein et phase en pointillés), b) dans le domaine spectral (intensité mesurée en trait plein, retrouvée par l'algorithme (cercles) et phase en pointillés).*



a) b)

FIG. 2.28 – *Spectrogrammes obtenus avec le laser 25 TW (salle jaune): a) mesuré, b) calculé en utilisant l'impulsion retrouvée par l'algorithme de recherche de la phase*

se décalent et la durée de l'impulsion harmonique est proportionnelle à l'épaisseur du cristal L. D'autre part, le rendement de conversion est lui aussi proportionnel à L, il faut donc trouver un compromis entre durée et rendement. Nous avons tout d'abord mesuré la dérivée de

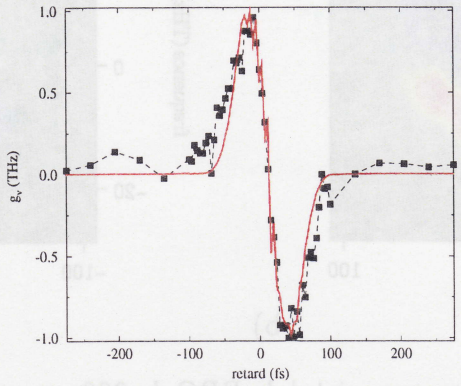


FIG. 2.29 – *Courbe de variation du centre de gravité pour une impulsion à 400 nanomètres générée par doublage de fréquences du laser 25 TW dans un cristal de BBO de 200 μm d'épaisseur: mesurée (carrés) et calculée en utilisant l'impulsion retrouvée par l'algorithme de recherche de la phase (trait plein)*

l'autocorrélation. La figure 2.29 montre ce que l'on obtient avec un cristal de BBO épais de 200 μm. Afin d'éviter l'élargissement de l'impulsion à travers un filtre en verre coloré, nous avons utilisé une suite de quatre réflexions sur des miroirs dichroïques (90 % de réflexion autour de 400 nm et 10 % autour de 800 nm). Les fluctuations tir à tir de la source secondaire étaient assez importantes et les courbes de variations du centre de gravité du spectre de la sonde ainsi que le spectrogramme mesuré (figure 2.30-a) sont assez bruités. Comme le montrent les spectrogrammes (mesuré et calculé), le spectre (figure 2.31-a) et l'impulsion (figure 2.31-b) retrouvés présentent une phase quadratique et l'impulsion dont la durée est de 42 femtosecondes pourrait être comprimée par pré- ou post-compensation de cette phase.

Chaine au kiloHertz

Le taux de répétition des chaînes laser amplifiées varie grandement en fonction de l'énergie par impulsion. En effet, plus celle-ci est grande, plus les effets thermiques dans les composants

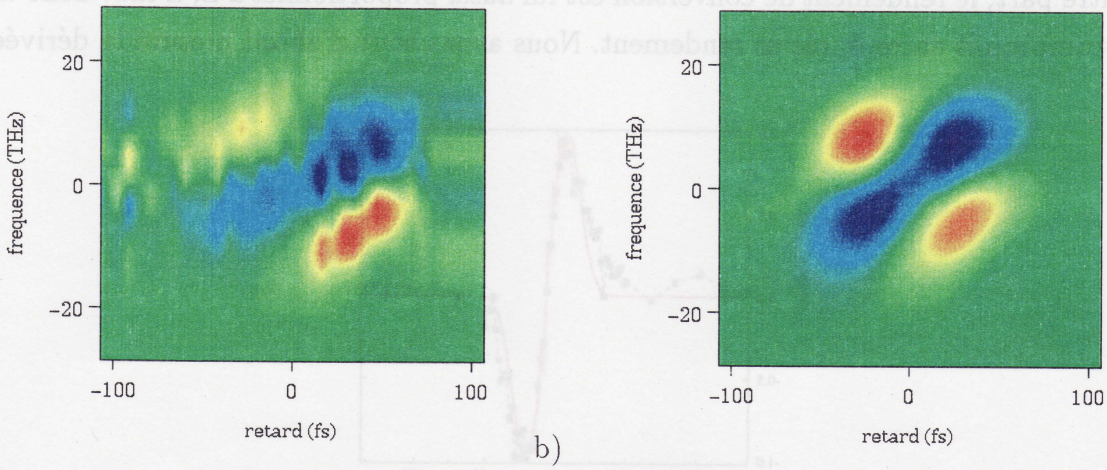


FIG. 2.30 – *Second harmonique dans un cristal de BBO de 200 μm: a) spectrogramme mesuré, b) spectrogramme calculé en utilisant l'impulsion retrouvée par l'algorithme de recherche de la phase*

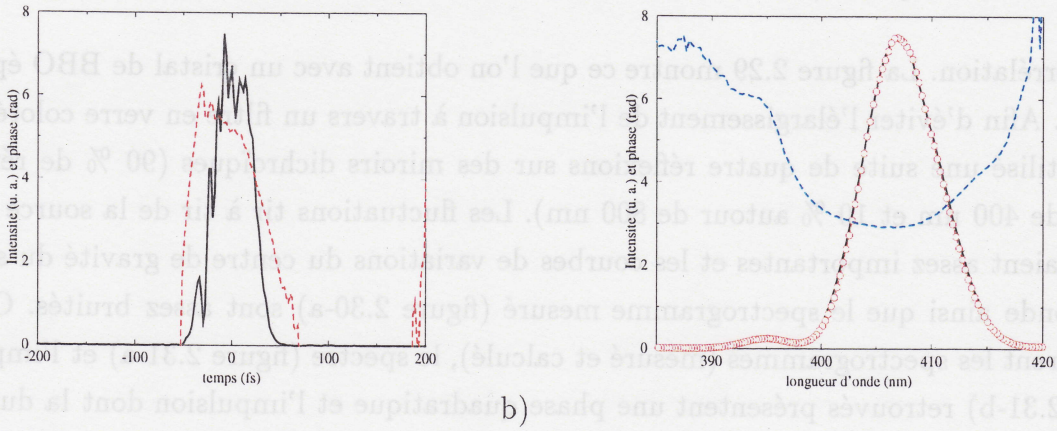
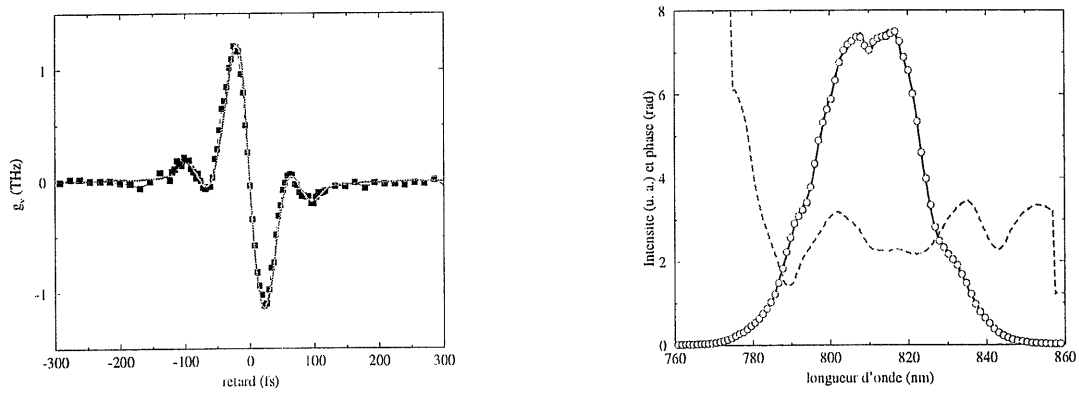


FIG. 2.31 – *Enveloppe retrouvée pour le second harmonique du laser 25 TW a) dans le domaine temporel (intensité en trait plein et phase en pointillés), b) dans le domaine spectral (intensité mesurée en trait plein, retrouvée par l'algorithme (cercles) et phase en pointillés). Ces résultats correspondent aux spectrogrammes de la figure 2.30*

des étages d'amplification sont importants. Pour éviter que ceux-ci ne dégradent le profil spatial et/ou temporel des impulsions, il faut limiter la récurrence du laser. Elle varie donc typiquement entre 1 tir toutes les vingt minutes (chaîne de puissance multijoules utilisant le verre dopé au néodyme) et quelques kiloHertz. Le Laboratoire d'Optique Appliquée dispose d'un laser fonctionnant à 1 kiloHertz avec un énergie par impulsion de l'ordre de 2 millijoules. Les chaînes amplifiées à taux de répétition élevé sont très stables et on peut le constater sur



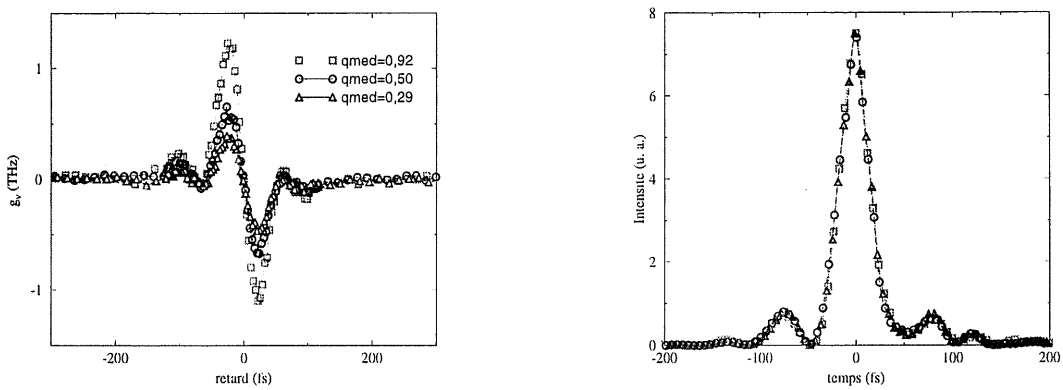
a) b)

FIG. 2.32 – *Chaine au kiloHertz: a) variation des centres de gravité mesurée (carrés) et calculée en utilisant l'impulsion retrouvée par l'algorithme de recherche de la phase (trait plein), b) spectre mesuré (trait plein) et retrouvé (cercles), phase calculée (pointillés)*

.

la courbe expérimentale de variation des centre de gravités (figure 2.32-a) qui est très "lisse". Cette stabilité permet d'obtenir un bon taux de convergence de l'algorithme de recherche de phase. On trouve des impulsions d'une durée d'environ 40 femtosecondes. La méthode permet de mettre en évidence des rebonds situé à l'avant et à l'arrière de l'impulsion. Ces rebonds sont dus à la qualité de surface insuffisante d'un miroir utilisé dans l'étireur.

Nous avons également étudié l'influence sur les mesures et sur l'impulsion retrouvée de l'amplitude de la phase non linéaire maximum accumulée par l'onde de sonde. Pour cela, il suffit de faire varier l'énergie par impulsion du faisceau intense. Trois valeurs de l'énergie par impulsion (3,5 μJ, 4,5 μJ et 5,5 μJ) ont été utilisées et la figure 2.33-a permet de vérifier que les dérivées de l'autocorrélation mesurées sont homothétiques les unes des autres. Les impulsions retrouvées (figure 2.33-b) ne diffèrent que très peu les unes des autres.



a) b)

FIG. 2.33 – *a) courbes de variation des centres de gravité et b) impulsions retrouvées pour différentes valeurs de la phase non linéaire maximum. Les dérivées de l'autocorrélation sont bien homothétiques et les impulsions retrouvées sont identiques*

2.4.4 Mesure et amélioration du contraste d'une impulsion

De nombreuses expériences nécessitent un bon contraste sur les impulsions utilisées. En effet, plus l'intensité crête I_0 est élevée, plus la dynamique de l'impulsion devient importante. Si $I_0 = 10^{18}$ W/cm^2, alors une préimpulsion d'intensité dix mille fois plus faible suffit à ioniser une cible solide avant l'arrivée de l'impulsion principale. L'expansion du plasma créé avant l'arrivée de l'impulsion principale modifie les conditions d'interaction. En particulier, la densité du plasma avec lequel la lumière interagit est plus faible que celle qui était désirée. Ainsi les résultats d'une expérience peuvent dramatiquement changer entre une impulsion "propre" c'est-à-dire sans satellites et une impulsion avec des satellites. Plusieurs solutions ont été proposées pour obtenir des impulsions propres ou tout du moins améliorer le contraste jusqu'à un niveau acceptable. Parmi celles-ci, on peut retenir le miroir à plasma, un système avec un absorbant saturable et le doublage de fréquences. Le principe du miroir à plasma est le suivant [53]: une impulsion est focalisée sur une cible solide (verre, cristal de silicium...) et les éventuelles préimpulsions sont assez intenses pour ioniser la matière, créant ainsi un plasma. Néanmoins, la densité de ce plasma est inférieure à la densité critique et les préimpulsions sont transmises à travers la cible. Au fur et à mesure que l'intensité augmente, la densité du plasma fait de même jusqu'à atteindre la densité critique. Le reste de l'impulsion est alors réfléchi et l'impulsion obtenue est nettoyée des structures indésirables à l'avant du

pic central (l'arrière de l'impulsion est inchangé). Les coefficients de réflexion sont de l'ordre 50 à 60 % et la cible doit être déplacée entre chaque tir laser. Un autre système possible repose sur l'utilisation d'un absorbant saturable entre deux étapes d'amplification [54]. On amplifie d'abord l'impulsion courte produite par l'oscillateur jusqu'à la limite du seuil de dommage du milieu amplificateur. Le faisceau traverse ensuite un absorbant saturable qui ne laisse passer que la partie la plus intense de l'impulsion, celle-ci peut alors être amplifiée par les techniques classiques. Cette méthode évite l'amplification dans les derniers étages de l'émission spontanée générée dans les premiers étages.

Le doublage de fréquences est un moyen simple à mettre en œuvre pour améliorer le contraste d'une impulsion et convient bien pour des lasers déjà existants dont le taux de répétition est supérieur à 10 Hz. De plus, les rendements de conversion peuvent être assez bons (supérieurs à 10 %).

Calculons le champ à la fréquence double lorsque l'on fait du doublage de façon colinéaire avec une onde fondamentale polarisée linéairement. L'équation de propagation pour l'onde harmonique s'écrit

$$\frac{dE_{2\omega}}{dz} = \frac{i\omega}{n_{2\omega}c}\chi^{(2)}E_{\omega}^{2}e^{i\Delta kz} \tag{2.4.18}$$

où $\Delta k = 2k_{\omega} - k_{2\omega}$. Dans le cas où l'accord de phase est réalisé et où l'onde à la fréquence fondamentale n'est pas dépeuplée (approximation paramétrique), on obtient

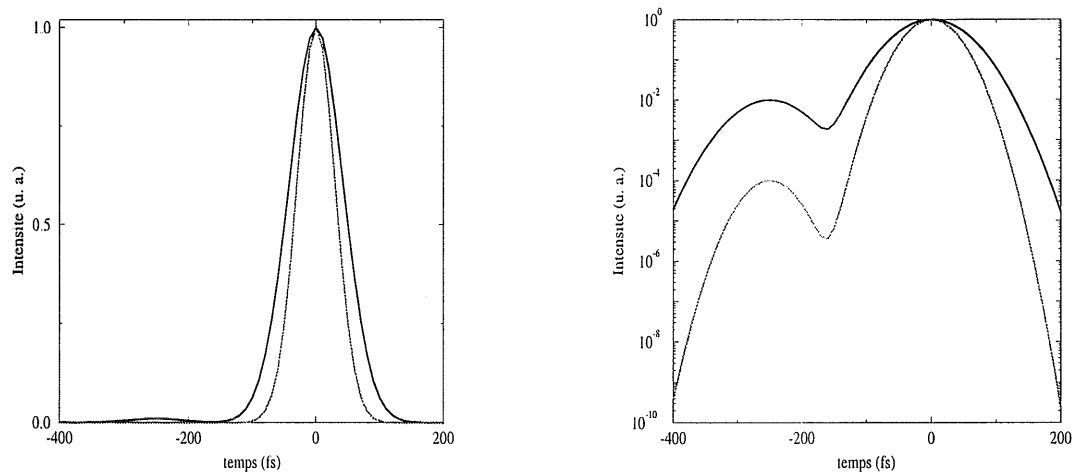
$$E_{2\omega} = \frac{i\omega\chi^{(2)}z}{n_{2\omega}c}E_{\omega}^{2}$$

Le champ obtenu à 2ω par doublage de fréquences dans un cristal non linéaire tel que le KDP ou le BBO est donc proportionnel au carré du champ fondamental (en régime paramétrique). Soit $E_{\omega}(t) = \sqrt{I(t)}e^{i\phi(t)}$ l'enveloppe du fondamental, alors on a pour le champ harmonique:

$$E_{2\omega}(t) = \alpha I(t)e^{i2\phi(t)}$$

où α est une constante. Comparons les intensités harmoniques et fondamentales lorsque I(t) est une gaussienne de 100 fs accompagnée d'une préimpulsion de même durée mais d'intensité cent fois moindre et située 250 fs avant le pic principal. On voit bien sur la figure 2.34 comment le contraste est amélioré de façon significative. De plus, on peut remarquer que l'impulsion à la fréquence double est plus courte que celle à la fréquence fondamentale.

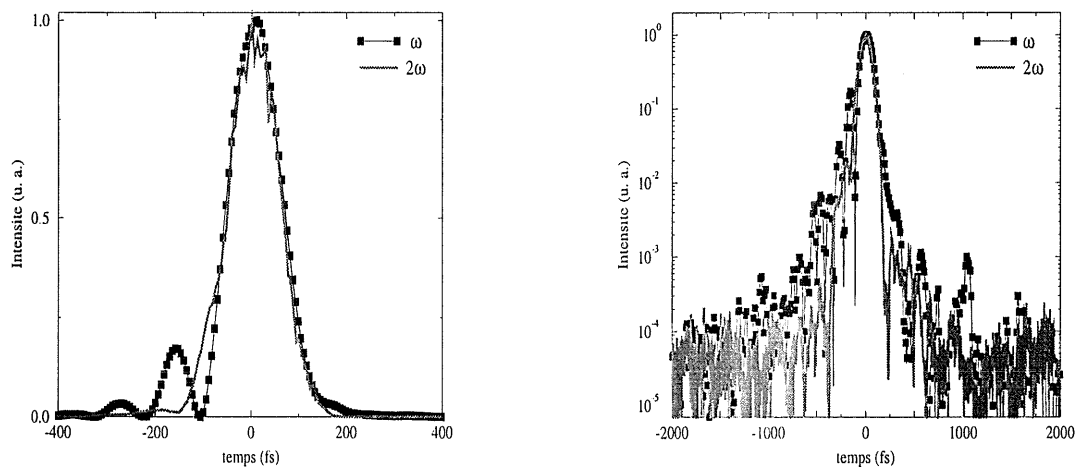
Un exemple expérimental est montré figure 2.35, le doublage est réalisé dans un cristal de BBO épais de 500 μm sans focaliser le faisceau incident. Nous avons ensuite caractérisé



a) b)

FIG. 2.34 – *Impulsion gaussienne avec une préimpulsion (trait plein), impulsion obtenue par doublage en régime paramétrique: a) échelle linéaire et b) échelle semi-logarithmique*

les impulsions dans l'infrarouge et dans l'ultraviolet à l'aide de la méthode de recherche de phase qui repose sur la modulation de phase induite. Comme on le voit sur la figure 2.35,



a) b)

FIG. 2.35 – *Comparaison des impulsions fondamentale (carrés) et harmonique (pointillés) mesurées: a) échelle linéaire et b) échelle semi-logarithmique*

cette méthode permet de retrouver les impulsions avec un dynamique d'environ 1 pour 10^4.

Cette figure montre aussi que le contraste est bien amélioré mais l'impulsion harmonique est plus longue que ce que prévoit la théorie du doublage de fréquences. Ceci est probablement dû au mode de séparation des deux fréquences à l'aide d'un filtre en verre coloré (BG 39 fabriqué par Schott) qui ne laisse passer que les longueurs d'onde comprises entre 325 et 725 nanomètres, ce type de verre est très dispersif. De plus, les faisceaux pompe et sonde étaient focalisés sur l'échantillon à l'aide d'une lentille en verre de plusieurs millimètres d'épaisseur ce qui rajoute de la dispersion de vitesse de groupe. Comme on peut le voir sur la figure 2.36, la simulation de la dispersion de vitesse de groupe dans le filtre coloré et dans la lentille permet de retrouver l'impulsion mesurée à 400 nm à partir du carré de celle mesurée à 800 nm. De plus, il est facile de s'écarter du régime paramétrique lorsque l'on considère des impulsions d'une durée de l'ordre de ou inférieure à 150 femtosecondes. Il faut alors résoudre numériquement les équations couplées qui régissent la propagation de l'onde fondamentale et de l'harmonique en tenant compte de la différence (et éventuellement de la dispersion) de vitesse de groupe, de la polarisation du troisième ordre...

Enfin, on peut retenir de cette expérience que la méthode de recherche de phase avec acquisition des données sur plusieurs tirs lasers permet de mesurer le profil temporel d'une impulsion ultracourte avec une dynamique de quatre ordres de grandeurs. Cela a permis de confirmer de manière expérimentale que le doublage de fréquences améliore le contraste d'une impulsion.

2.4.5 Acquisition mono-coup

Il est possible d'acquérir les données en un seul tir laser afin de s'affranchir des fluctuations d'intensité tir à tir des chaînes lasers à haute énergie. Pour l'acquisition multi-coups, les différents retards entre les deux faisceaux sont obtenus en changeant la longueur d'un des bras de l'interféromètre utilisé. Dans la configuration monocoup, on exploite les différences de chemin optique relatives entre différentes parties du faisceau. Les faisceaux se croisent avec un angle θ au foyer d'une lentille cylindrique. Ils sont représentés vus de dessus figure 2.37. Deux points séparés d'une distance d dans le faisceau test interagissent avec deux parties différentes de la pompe espacées temporellement de τ tel que

$$\tau = \frac{d \sin \theta}{c}$$

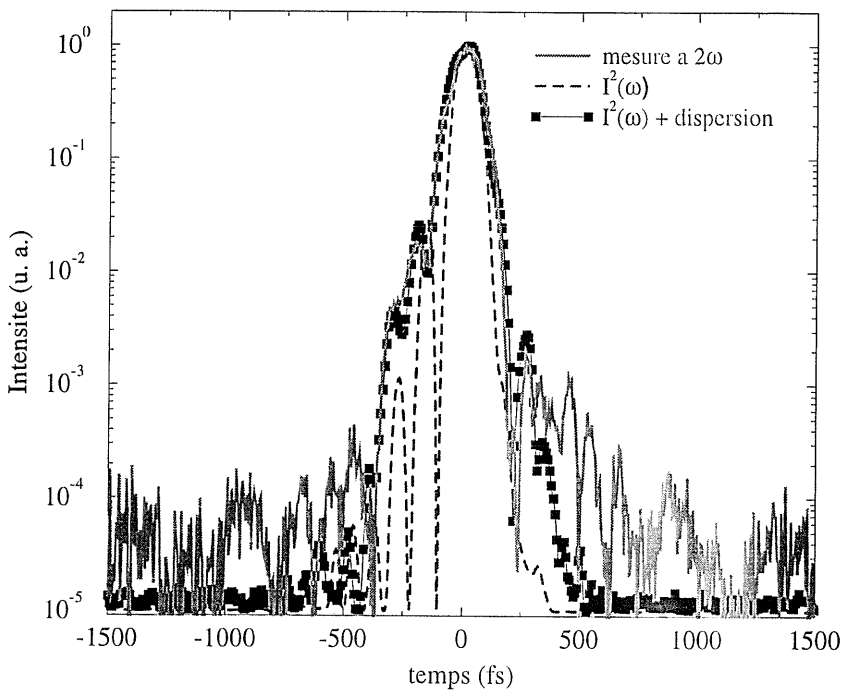


FIG. 2.36 – *Influence de la dispersion de vitesse de groupe subie par l'impulsion à 400 nm: intensité à 800 nm mesurée puis élevée au carré (pointillés), intensité à 800 nm mesurée puis élevée au carré en tenant compte de la dispersion de vitesse de groupe subie à la traversée d'un filtre coloré et d'une lentille (carrés) et impulsion à 400 nm retrouvée par l'algorithme de recherche de phase*

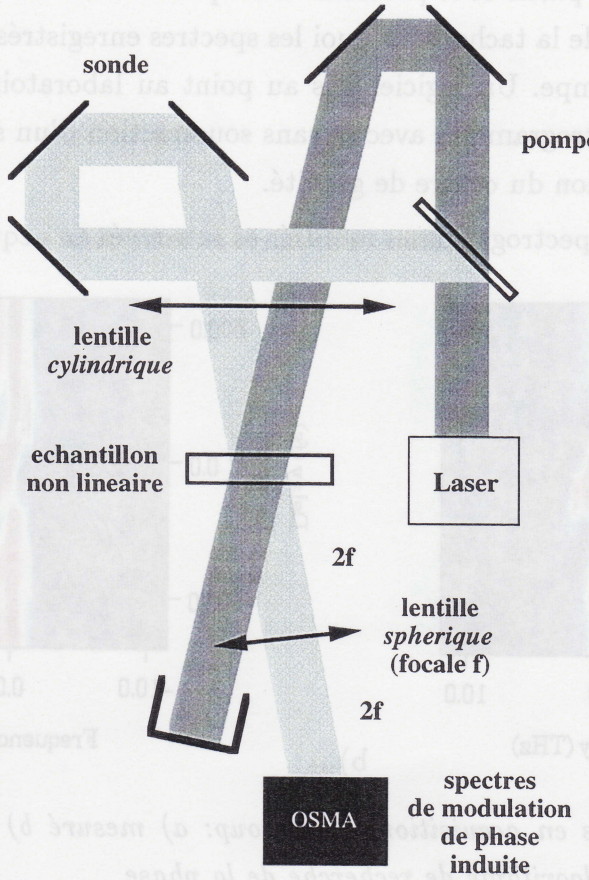


FIG. 2.37 – *Acquisition mono-coup: vue de dessus du dispositif expérimental*

Pour un angle θ de 2 degrés et des faisceaux de 1 centimètre de diamètre , on couvre ainsi une plage de temps de 1,16 picoseconde ce qui est largement suffisant pour caractériser une impulsion de durée inférieure à 200 femtosecondes. Il suffit alors de faire l'image du foyer de la lentille sur la fente d'entrée d'un spectromètre équipé d'un détecteur matriciel. Nous avons utilisé une caméra CCD de 256 lignes de 1024 pixels. Chaque ligne représente le spectre à un endroit de la fente, on a donc 256 spectres d'interaction correspondant à 256 retards entre l'onde de pompe et l'onde de sonde. Notons que pour pouvoir réaliser cette expérience, deux conditions sur les propriétés spatiales du faisceau doivent être remplies. Premièrement, la répartition d'intensité doit être homogène d'un bout à l'autre de la zone d'interaction. Dans le cas contraire, cela reviendrait à faire interagir la sonde avec autant

de pompes différentes que de pixels et le problème n'est plus soluble. Enfin, l'impulsion doit être la même sur l'ensemble de la tache, sans quoi les spectres enregistrés sont dissemblables même en l'absence de la pompe. Un logiciel mis au point au laboratoire par P. Rousseau permet de visualiser les spectrogrammes avec et sans soustraction d'un spectre de référence ainsi que la courbe de variation du centre de gravité.

La figure 2.38 montre les spectrogrammes mesurés et retrouvés en acquisition mono-coup.

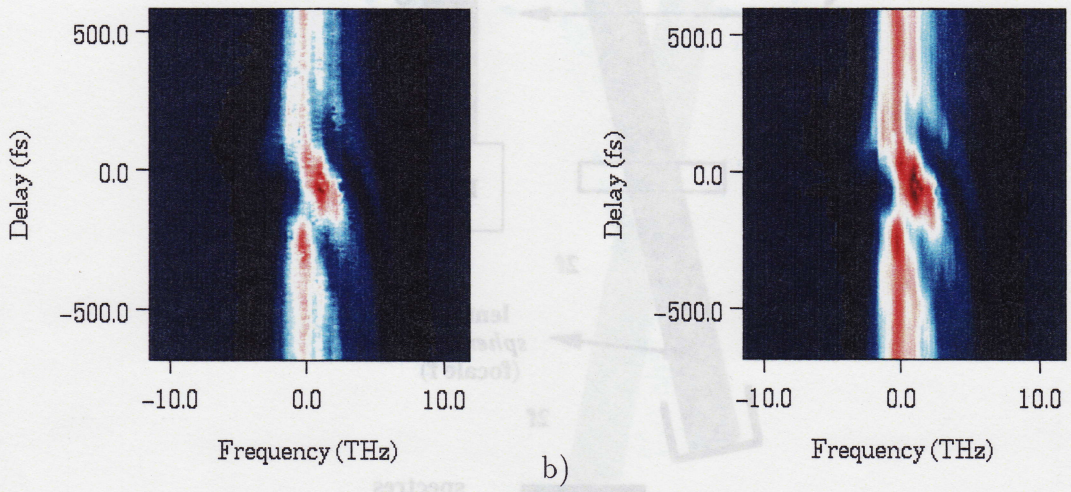


FIG. 2.38 – *Spectrogrammes en acquisition mono-coup: a) mesuré b) calculé en utilisant l'impulsion retrouvée par l'algorithme de recherche de la phase*

L'échantillon non linéaire utilisé est une lame épaisse d'un centimètre de BK7. La calibration en temps n'est pas faite en mesurant l'angle entre les deux faisceaux ce qui est trop imprécis mais en changeant la longueur d'un des bras de l'interféromètre d'une quantité δl. La courbe de centres de gravité des spectres de l'onde sonde doit alors se décaler d'un temps donné par $\delta t = 2\delta l/c$. Il suffit donc de mesurer de combien de pixels se déplace le passage à zéro de la courbe pour obtenir la correspondance entre le numéro de la ligne et le retard entre pompe et sonde. Les courbes de centres de gravité mesurée (carrés) et calculée (trait plein) après calibration sont montrées figure 2.39-a. On a une fenêtre temporelle de 1,2 picoseconde. Comme on peut le voir sur la figure 2.39-b, l'impulsion qui a été mesurée comporte de nombreuses structures à l'avant. Ceci correspond à une importante phase spectrale du troisième ordre (figure 2.39-d). On obtient de plus une bonne dynamique sur le profil temporel reconstruit, d'environ trois ordres de grandeur (figure 2.39-c) comparable à celle obtenue en multi-coups. Deux tirs différents correspondants à des énergies par impulsion presque identiques donnent

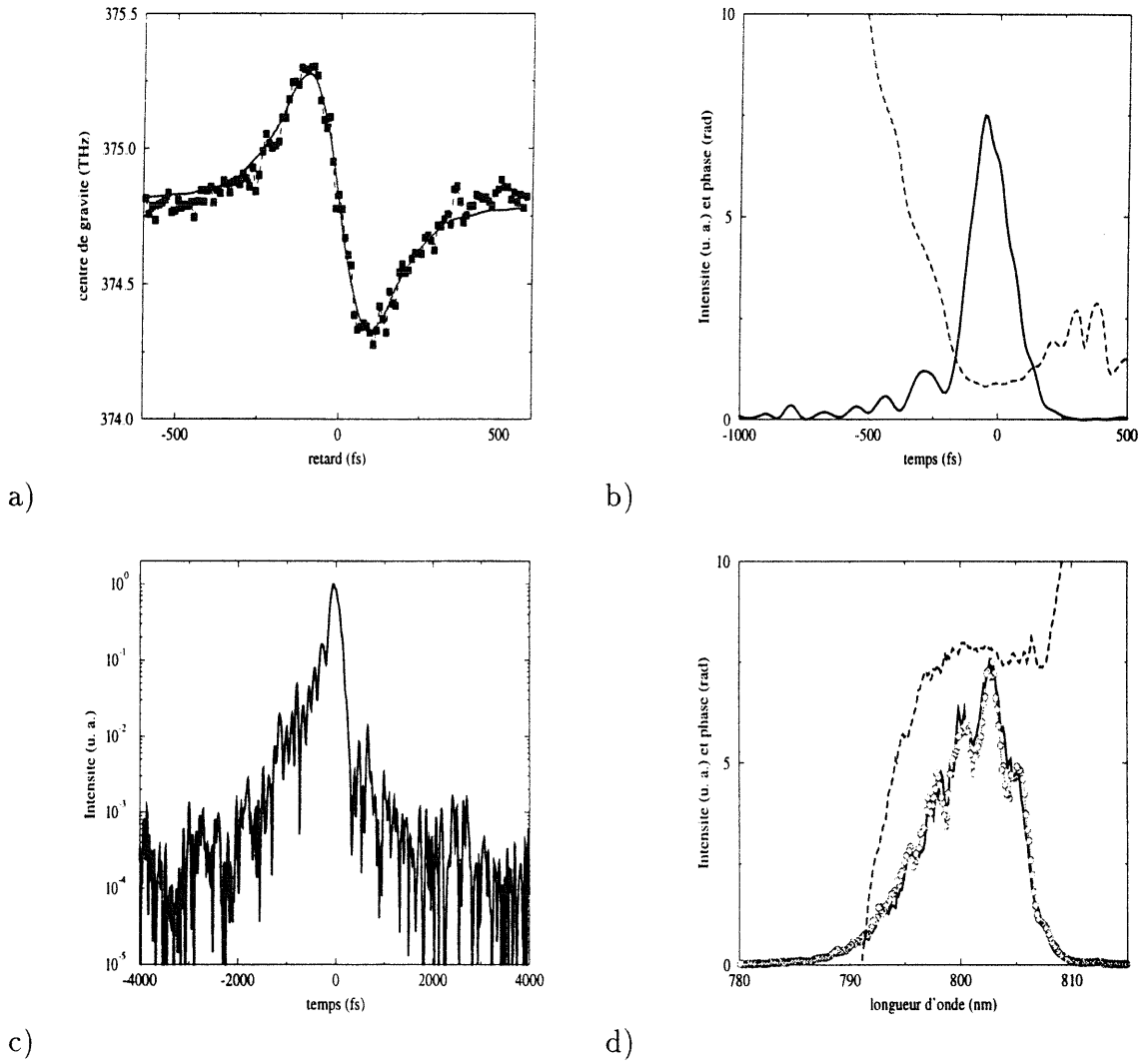


FIG. 2.39 – *Mesures en configuration mono-coup: a) centres de gravité en fonction du retard entre pompe et sonde mesuré (carrés) et retrouvé (trait plein), b) intensité et phase temporelles retrouvées, c) profil temporel (intensité) en échelle semi-logarithmique et d) intensité spectrale mesurée (trait plein), retrouvée (cercles) et phase spectrale retrouvée (pointillés)*

des résultats très proches les uns des autres (figure 2.40). Les phases non linéaires maximum

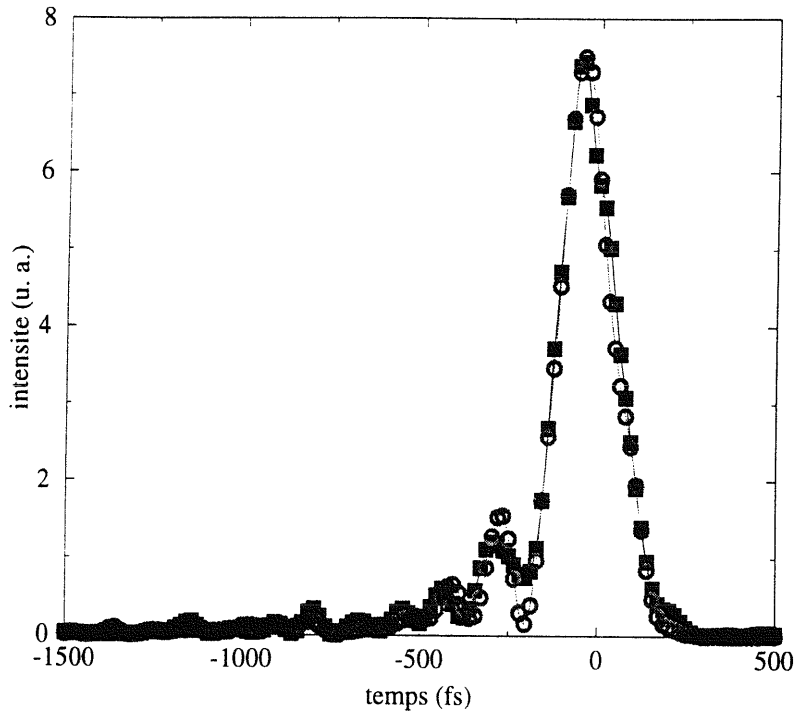


FIG. 2.40 – *Acquisition mono-coup: comparaison de deux tirs lasers (q_{med}=3,15 (carrés) et q_{med}=3,30 (cercles))*

correspondant à chaque impulsion sont respectivement de 3,15 et de 3,30 radians (valeur qui minimise l'erreur dans l'algorithme de recherche de la phase). Dans les deux cas on obtient une impulsion présentant plusieurs satellites à l'avant. Seule la profondeur de modulation varie d'un tir à l'autre.

2.5 Conclusion

Nous avons mis au point une méthode qui permet de retrouver l'amplitude et la phase d'une impulsion ultracourte intense. Elle utilise un algorithme simple, rapide et robuste et a été mise en œuvre avec succès à la fois sur le plan théorique et sur le plan expérimental.

De plus, l'acquisition des données peut être réalisée soit en multi-coups, soit en mono- coup. Les impulsions les plus courtes qui ont ainsi été caractérisées ont une durée d'environ 30 femtosecondes et leur profil temporel est retrouvé avec une dynamique de quatre ordres de grandeur.

Quelles sont les limites de la méthode? La première contrainte est qu'il faut pouvoir négliger l'influence de la dispersion de vitesse de groupe au cours de l'interaction pompe-sonde. Il est possible de continuer à utiliser la silice comme milieu non linéaire pour les impulsions dont la fréquence centrale se situe dans le proche infrarouge et ce jusqu'à des durées de l'ordre de 15 femtosecondes. Par contre, dès que la longueur d'onde diminue, il faut trouver un autre milieu non linéaire.

Le principe de la méthode repose sur un effet non linéaire du troisième ordre et pour l'obtenir, il faut possèder une source laser assez intense. Cela interdit pour l'instant de caractériser des sources (par exemple des oscillateurs femtosecondes) différentes des chaînes amplifiées. Cependant, on peut envisager l'utilisation d'un matériau plus non linéaire la silice, du moment que la réponse reste instantanée et que l'on peut négliger les effets de la dispersion de vitesse de groupe.

Chapitre 3

Autres expériences pompe-sonde

Les expériences pompe-sonde résolues spectralement peuvent être étendues à l'interaction dans des matériaux non linéaires autres que ceux présentant de l'effet Kerr instantané. En particulier, nous l'avons appliquée au cas d'un gaz ionisé (plasma) et de milieux Kerr mais présentant à la fois une réponse instantanée et une réponse retardée.

Après avoir décrit les méchanismes de l'ionisation par absorption multiphoronique en appliquant la théorie des perturbations à l'ordre le plus bas, la modulation de phase induite dans un plasma est présentée. En particulier, nous montrons de manière théorique et confirmons par l'expérience que la mesure des centres de gravité des spectres de la sonde permet d'obtenir la corrélation d'ordre N de l'impulsion (où la valeur de N est liée au potentiel d'ionisation du gaz). Les taux d'ionisation multiphotonique dans l'air et dans l'argon sont également comparés.

Enfin, la fin du chapitre porte sur l'étude de la dynamique temporelle de la variation non linéaire de l'indice de réfraction lorsque celle-ci possède une composante instantanée et une composante retardée. Grâce au calcul de la variation des centres de gravité des spectres de la sonde, il est possible de séparer les deux composantes. Le cas de l'air où la composante retardée provient de l'excitation Raman d'un ensemble de niveaux rotationnels est étudié.

3.1 Modulation de phase induite dans un plasma.

Ionisation

Dans ce qui suit, nous allons étudier ce qui se passe lorsque les impulsions lasers sont si intenses que leur champ électrique maximum est du même ordre de grandeur ou supérieur au champ atomique. Il devient alors possible d'ioniser un gaz créant ainsi un plasma. Nous nous plaçons de plus dans le cas où le milieu est transparent à la fréquence considérée. L'ionisation des gaz et des solides a été et est toujours l'objet de nombreuses recherches puisque la compréhension de ce phénomène est indispensable à la modélisation de nombreux effets physiques comme par exemple la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz.

Nous nous intéresserons ici à des gaz faiblement ionisés. Dans ce cas, l'apparition d'électrons libres se traduit par une modification de l'indice de réfraction du milieu donnée par:

$$\Delta n = -n_0 \frac{n_e}{2N_c} \tag{3.1.1}$$

où n_e est la densité d'électrons libres et N_c est la densité critique définie par:

$$N_c = \frac{\epsilon_0 m \omega^2}{e^2}$$

m et e sont respectivement la masse et la charge de l'électron. La densité électronique est une fonction non linéaire de l'intensité du laser. Ici, l'ionisation est dite non résonnante car le milieu est transparent, même si un accord accidentel entre deux niveaux excités reste cependant possible. Plusieurs modèles décrivent l'ionisation non résonnante et on distingue deux principaux régimes: celui de la multi photoionisation et celui de l'ionisation par effet tunnel [55].

Dans le premier cas, l'ionisation a lieu par absorption simultanée de plusieurs photons. A l'ordre le plus bas en perturbation, la probabilité par unité de temps P d'arracher un électron correspond à la probabilité d'absorber N photons et est donnée par

$$P = KI^N$$

où K est une constante qui dépend du gaz considéré. La densité d'électrons libres est obtenue par intégration au cours du temps

$$n_e(t) = K \int_{-\infty}^{t} I^N(t')dt' \tag{3.1.2}$$

Ce modèle, même si il est très simplifié, décrit de façon satisfaisante le nombre d'atomes ionisés aussi longtemps que l'intensité est inférieure à une valeur précisée dans ce qui suit. Pour obtenir une caractérisation plus précise d'un plasma, il faut tenir compte d'effets d'ordre supérieur [56].

Pour l'effet tunnel, de nombreux modèles existent (par exemple celui d'Ammosov Delone et Kraÿnov dit modèle ADK [55]). Le plus simple est de faire l'hypothèse d'un champ statique et de considérer un électron dans un puits de potentiel coulombien V(r). Le potentiel associé au champ électrique E est V_E(r)=-E.r ce qui donne pour le potentiel total

$$V'(r) = V(r) - E.r$$

Le puits de potentiel est alors transformé en une barrière de potentiel (voir figure 3.1) que

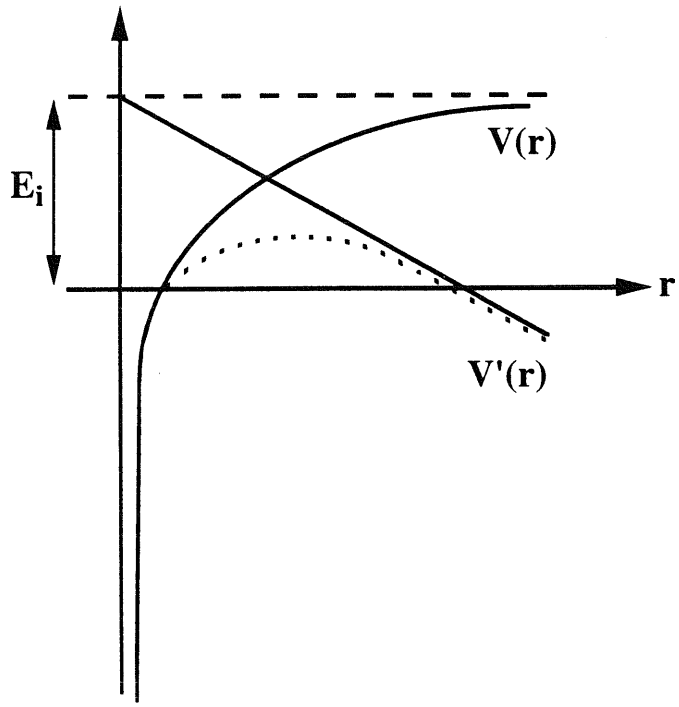


FIG. 3.1 – *Ionisation par effet tunnel: V(r) potentiel coulombien, V'(r)(pointillés) potentiel coulombien et potentiel d'un champ électrique statique. E_i représente le potentiel d'ionisation*

l'électron peut franchir par effet tunnel.

La distinction entre les deux régimes se fait selon l'intensité du laser par rapport au potentiel d'ionisation du gaz. Pour distinguer les deux régimes, on peut introduire le paramètre

de Keldysh ou paramètre d'adiabaticité

$$\gamma = \sqrt{\frac{E_i}{2\Phi_p}}$$

avec E_i le potentiel d'ionisation de l'espèce considérée et Φ_p le potentiel pondéromoteur du rayonnement incident. La définition de Φ_p donne

$$\gamma = 0,23\sqrt{10^{14}\frac{E_i}{I\lambda^2}}$$

où E_i est exprimé en eV, I en W/cm^2 et λ en μm. Quand $\gamma \gg 1$, on se trouve en régime multiphotonique, quand $\gamma \ll 1$, il faut utiliser le modèle de l'ionisation par effet tunnel. La transition entre les deux régimes se situe autour de $\gamma = 1$ ce qui correspond à une intensité laser de 1,3 $\times$ 10^{14} W/cm^2 dans le cas de l'argon à $\lambda = 800$ nm. De plus, lorsque le champ de l'impulsion est encore plus intense, la situation se complique car il faut considérer les effets d'ionisation multiple où plusieurs électrons peuvent être arrachés au noyau. On voit en effet sur la figure 3.2 qu'à partir d'une intensité égale à quelques 10^{14} W/cm^2, on ne peut plus négliger ni la deuxième, ni la troisième ionisation de l'argon.

Modulation de phase induite dans un plasma

Nous nous plaçons dans le cas où un faisceau intense ionise au plus une fois les atomes ou molécules du gaz. On sonde alors la variation non linéaire d'indice à l'aide d'un faisceau de faible intensité. De plus, on considère que les conditions expérimentales sont réunies pour que l'on se trouve dans le cadre du modèle multi-photonique. La phase non linéaire accumulée par le test vaut alors:

$$\phi_{nl}(t-\tau) = \frac{4\pi}{\lambda} z \Delta n(t-\tau) \tag{3.1.3}$$

où λ est la longueur d'onde et z la longueur d'interaction entre les deux faisceaux. Il faut N photons pour arracher un électron, c'est-à-dire que l'énergie cumulée de ces N photons doit être supérieure au potentiel d'ionisation du gaz considéré (à l'ordre le plus bas de la théorie des perturbations). Les potentiels d'ionisation des gaz rares ainsi que ceux de l'azote et de l'oxygène sont réunis dans le tableau 3.1. Le nombre de photons nécessaires à l'ionisation varie avec la longueur d'onde du faisceau incident puisque l'énergie d'un photon est donnée par:

$$E = h\nu = \frac{hc}{\lambda}$$

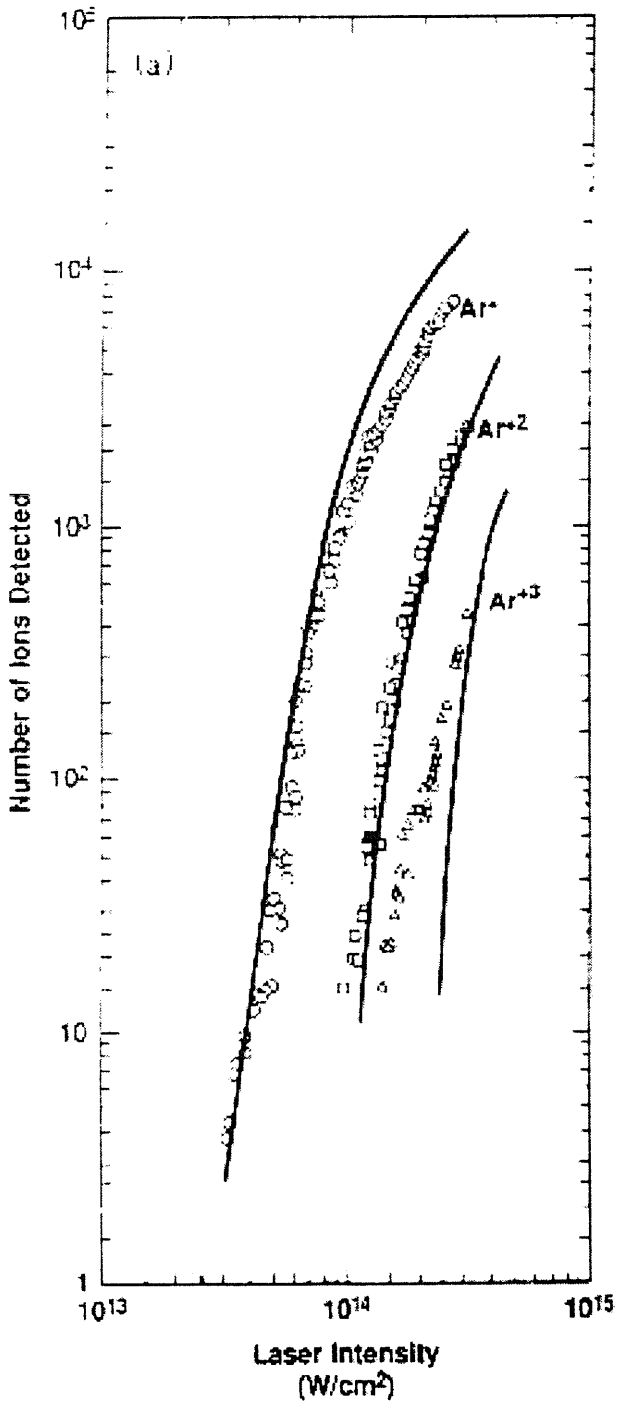


FIG. 3.2 – *Ionisation de l'argon: nombre d'ions détectés en fonction de l'intensité du laser (extrait de [57])*

Gaz	Potentiel d'ionisation (eV)
Xénon (Xe)	12,12
Krypton (Kr)	13,99
Argon (Ar)	15,75
Néon (Ne)	21,56
Hélium (He)	24,58
Azote (N_2)	15,6
Oxygène (O_2)	12,2

TAB. 3.1 – *Potentiels d'ionisation des gaz rares, de l'azote et de l'oxygène*

Pour un laser saphir dopé au titane $\lambda = 0{,}8$ μm et E = 1,55 eV. N varie alors de 8 pour le xénon à 16 pour l'hélium. Le modèle multiphotonique prédit que la densité électronique est proportionnelle à $\int_{-\infty}^{t} I^N(t')dt'$ et donc:

$$\Delta n(t) = -\alpha \int_{-\infty}^{t} I^N(t')dt'$$

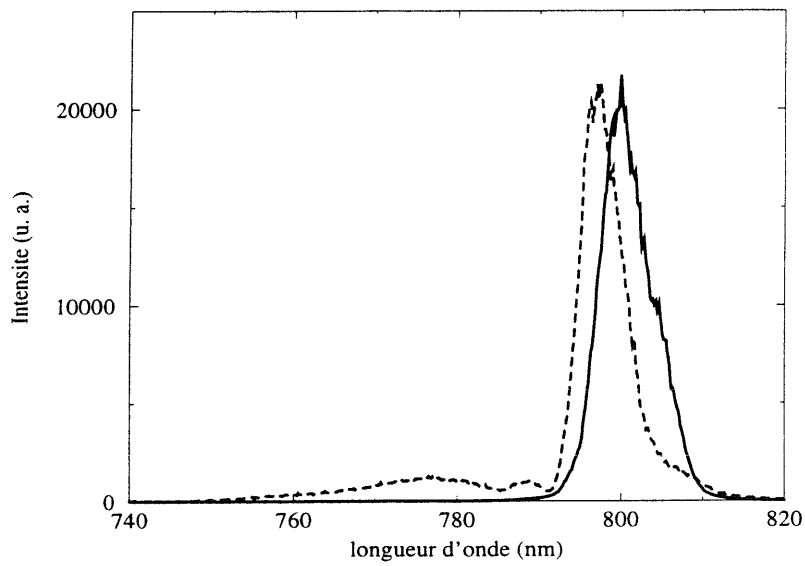
où α est une constante positive et $I(t) = 2n_0\varepsilon_0 c|E_0(t)|^2$. L'équation 3.1.3 devient:

$$\phi_{nl}(t-\tau) = -\frac{4\pi\alpha z}{\lambda}\int_{-\infty}^{t-\tau} I^N(t')dt' \tag{3.1.4}$$

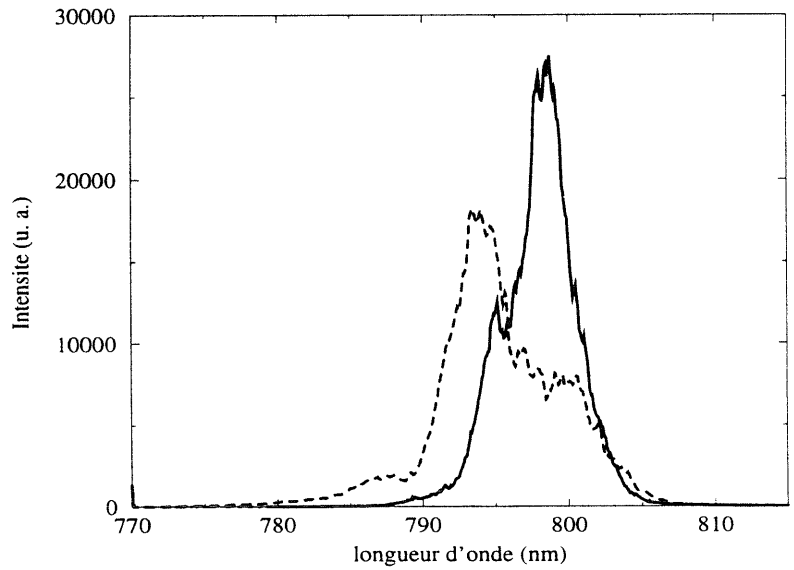
Comme dans le cas de la modulation de phase induite dans un milieu Kerr instantané, on peut s'intéresser à la variation du centre de gravité du spectre de l'onde sonde en fonction de son retard par rapport à l'onde de pompe. En utilisant le résultat de l'équation 2.2.9, on obtient:

$$g_\nu(\tau) = g_0 + \frac{2\alpha z}{\lambda W}\int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I^N(t-\tau)dt \tag{3.1.5}$$

La variation du centre de gravité est proportionnelle à la corrélation d'ordre N de l'impulsion. α étant une constante positive $g_\nu(\tau)$ est toujours plus grand que g_0, les spectres se décalent toujours vers le bleu (vers les hautes fréquences) comme on peut le voir sur le spectre de modulation de phase induit par ionisation de l'air à pression atmosphérique de la figure 3.3-a. C'est un résultat bien connu dans les expériences à un seul faisceau: lorsqu'un faisceau



a)



b)

FIG. 3.3 – *Décalage vers le bleu: a) Spectre de modulation de phase induite dans un plasma créé dans de l'air à pression atmosphérique. b) Spectre d'automodulation de phase dans un plasma créé dans de l'air à pression atmosphérique. Les spectres avant propagation sont en trait plein et ceux après propagation en pointillés. On voit nettement que le maximum d'intensité spectrale s'est déplacé vers les longueurs d'onde les plus courtes*

est assez intense pour ioniser un gaz, son spectre est décalé vers le bleu [58, 59, 60] et on peut aussi observer une défocalisation du faisceau dans certains cas [58, 61]. Le cas à un seul faisceau est équivalent au retard nul et l'équation 3.1.5 donne

$$g_\nu(0) = g_0 + \frac{2\alpha z}{\lambda W}\int_{-\infty}^{+\infty} I^{N+1}(t)dt > g_0$$

ce qui donne bien le résultat attendu. C'est ce que l'on observe expérimentalement en focalisant un faisceau laser de 5 millijoules et 120 femtosecondes dans l'air atmosphérique (voir figure 3.3-b).

Deux voies sont envisageables pour l'exploitation des modifications spectrales dans une expérience de modulation de phase induite dans un plasma, la caractérisation d'impulsions femtosecondes et la comparaison de l'ionisation dans des gaz différents.

3.1.1 Caractérisation d'impulsions femtosecondes par modulation de phase induite dans un plasma

Il peut être intéressant de connaître les caractéristiques temporelles d'une impulsion ultracourte sans avoir recours à un algorithme de recherche de phase et si possible en temps réel. De plus, avec le développement des sources secondaires des lasers femtosecondes amplifiés, en particulier vers les courtes longueurs d'onde, les méthodes qui sont applicables dans l'ultraviolet proche ou lointain sont utiles. La modulation de phase induite dans un plasma entre dans cette catégorie de méthode [8, 62]. Comme on l'a vu au paragraphe précédent, on peut facilement mesurer la corrélation d'ordre N d'une impulsion. Si N est grand, $I^N(t)$ se rapproche fortement d'une fonction δ et l'équation 3.1.5 devient:

$$g_\nu(\tau) \simeq g_0 + \frac{2\alpha z}{\lambda W} I(\tau)$$

La figure 3.4 montre l'écart entre la corrélation d'ordre N de l'impulsion et l'impulsion elle-même pour trois valeurs de N: 5, 10 et 15. On voit que toutes les courbes sont très proches les unes des autres et que N n'a pas besoin d'être très élevé pour obtenir une bonne information sur l'impulsion. Pour une impulsion gaussienne de largeur T à mi-hauteur en intensité, la corrélation d'ordre N a une largeur T'=$T\sqrt{\frac{N+1}{N}}$. Si N=10, la différence entre T et T' est de 5 %. Il faut noter que la corrélation n'est une approximation de l'impulsion que si celle-ci ne comporte pas de structure dont l'intensité est du même ordre de grandeur que celle du

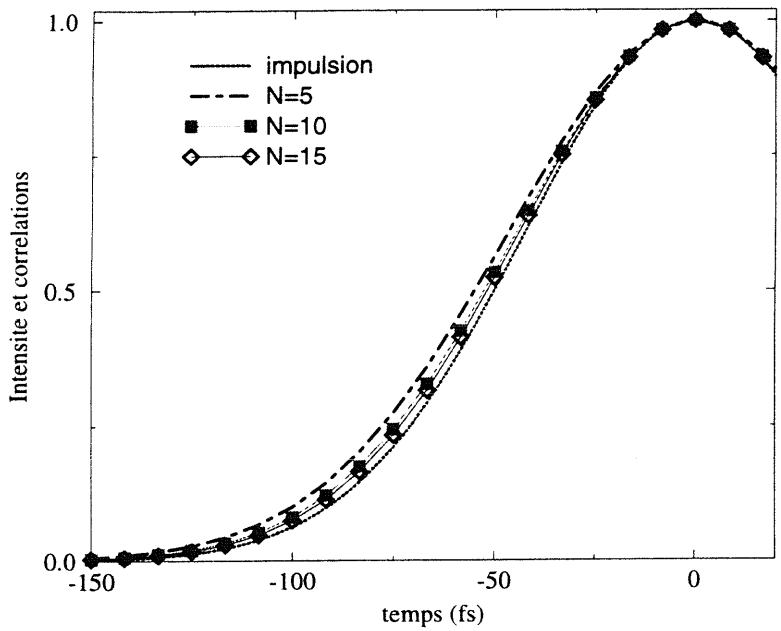


FIG. 3.4 – *Corrélations d'ordre 5 (traits et points), 10 (carrés) et 15 (losanges) d'une impulsion gaussienne (points) d'une durée de 100 femtosecondes*

pic principal. La figure 3.5 montre ce qu'on obtient dans le cas d'une double impulsion. Dans ce cas, $I^N(t)$ n'est plus proche d'un pic de Dirac mais de deux pics séparés dans le temps et c'est la corrélation de ces pics et de l'impulsion que l'on observe, ce qui s'éloigne notablement de l'impulsion.

Lorsque l'on va vers les courtes longueurs d'onde, le nombre de photons requis pour ioniser un gaz peut diminuer notablement. Par exemple, pour l'harmonique 17 d'un laser émettant à 800 nanomètres, un seul photon suffit. L'équation 3.1.5 devient

$$g_\nu(\tau) = g_0 + \frac{2\alpha z}{\lambda W}\int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t-\tau)dt$$

La variation en fonction du retard entre pompe et sonde du centre de gravité du spectre de la sonde est alors proportionnel à l'autocorrélation de l'impulsion. Il est très difficile de mesurer la durée des impulsions de courte longueur d'onde (λ <200 nm), la modulation de phase induite dans un plasma peut être une solution. De plus, un algorithme de substitution

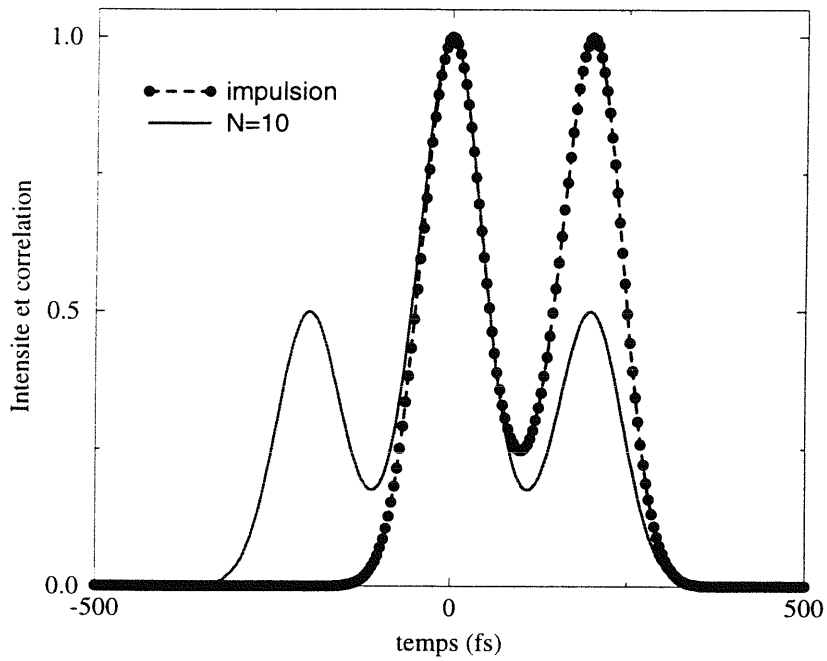


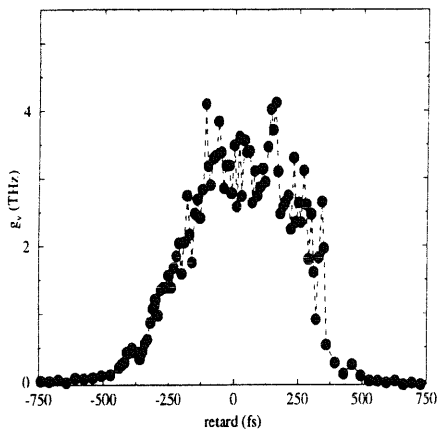
FIG. 3.5 – *Corrélation d'ordre 10 (trait plein) pour une double impulsion (cercles pleins). La corrélation d'ordre 10 ne reproduit pas du tout la structure de l'impulsion. En effet, on obtient trois pics de corrélation à partir d'une impulsion double*

semblable à celui mis au point pour l'interaction dans un milieu présentant de l'effet Kerr permet, en théorie du moins, de retrouver les caractéristiques de l'impulsion (amplitude et phase). Cela demande que l'on puisse enregistrer correctement les spectres après interaction et que l'ionisation ait bien lieu dans le régime perturbatif.

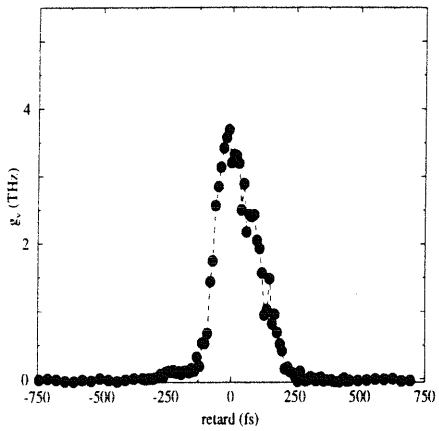
Démonstration expérimentale

Nous avons mesuré à l'aide de la méthode de modulation de phase induite par ionisation, les impulsions produites par deux chaines lasers différentes, l'une dont les impulsions font 120 femtosecondes de durée et l'autre dont les impulsions font 30 femtosecondes de durée. Ce sont les deux chaines lasers fonctionnant à 10 Hertz présentées au chapitre précédent. Avec le premier système nous avons de plus modifié l'écartement des réseaux de diffraction

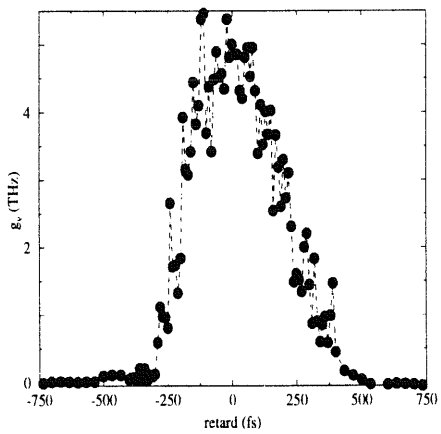
du compresseur afin d'obtenir des impulsions de durées différentes. Pour chaque mesure la



a)



b)



c)

FIG. 3.6 – *Caractérisation d'impulsions de durée supérieure à 120 femtosecondes par modulation de phase induite dans un plasma créé dans de l'air à pression atmosphérique. b) Compresseur optimisé (distance entre les réseaux L_0=51,6 cm), a) L=L_0-1 mm et c) L=L_0+1 mm*

distance entre les réseaux varie d'un millimètre. La figure 3.6-b correspond à l'impulsion la plus courte et on a rapproché (écarté) les réseaux du compresseur pour la figure 3.6-a (b). L'énergie par impulsion est de 3,2 millijoule pour les impulsions les plus longues et de 1,6 millijoules pour l'impulsion la plus courte.

Cette méthode s'applique aussi pour des impulsions courtes et nous avons mesuré des

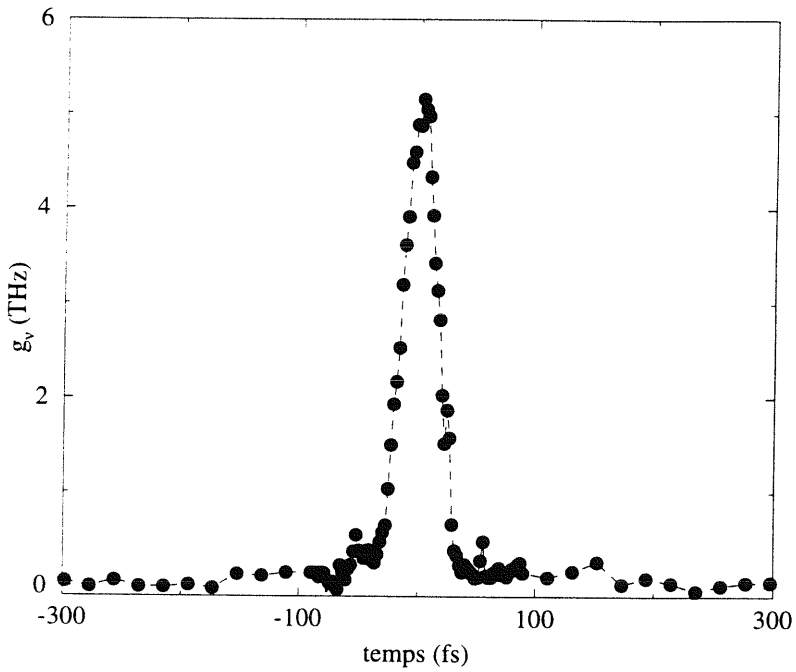


FIG. 3.7 – *Caractérisation d'impulsions de 30 femtosecondes de durée par modulation de phase induite dans un plasma créé dans de l'air à pression atmosphérique*

impulsions de 30 femtosecondes. Ces durées sont parmi les plus courtes qu'il soit possible de mesurer à ces longueurs d'onde en restant dans le domaine de validité du modèle multiphotonique. En effet, le spectre d'une impulsion d'une durée inférieure à 30 femtosecondes est très large. De plus, il suffit de 10 photons à 850 nanomètres pour être au dessus du potentiel d'ionisation de l'argon et de 12 photons à 750 nanomètres. On constate alors que, dans ces conditions, le modèle multiphotonique n'est plus adapté et qu'il faut utiliser un modèle plus général. Même dans ce cas, l'ionisation reste un phénomène qui induit une variation temporelle d'indice de réfraction que l'on peut approcher par une fonction de Heaviside.

On observe l'ionisation uniquement lorsque l'intensité de l'onde de pompe est assez grande pour arracher des électrons aux atomes (ou molécules) du gaz. De plus, on cherche à toujours se placer en régime multiphotonique. Par conséquent, la dynamique sur l'impulsion retrouvée

est comprise entre ces deux limites. Dans le cas de l'argon par exemple, l'ionisation est négligeable en dessous de quelques 10^{13} W/cm^2 et pour éviter le régime tunnel, on garde l'intensité en dessous de 10^{14} W/cm^2 [57]. En effet, on constate à l'examen de la figure 3.2 que pour des intensités supérieures, le nombre d'ions et donc d'électrons produits n'est plus une fonction de l'intensité à la puissance N (la courbe en échelle logarithmique n'est plus une droite). On aura donc au mieux une dynamique d'un peu plus d'un ordre de grandeur comme on peut le voir sur la figure 3.8. Nous avons comparé les résultats obtenus par cette

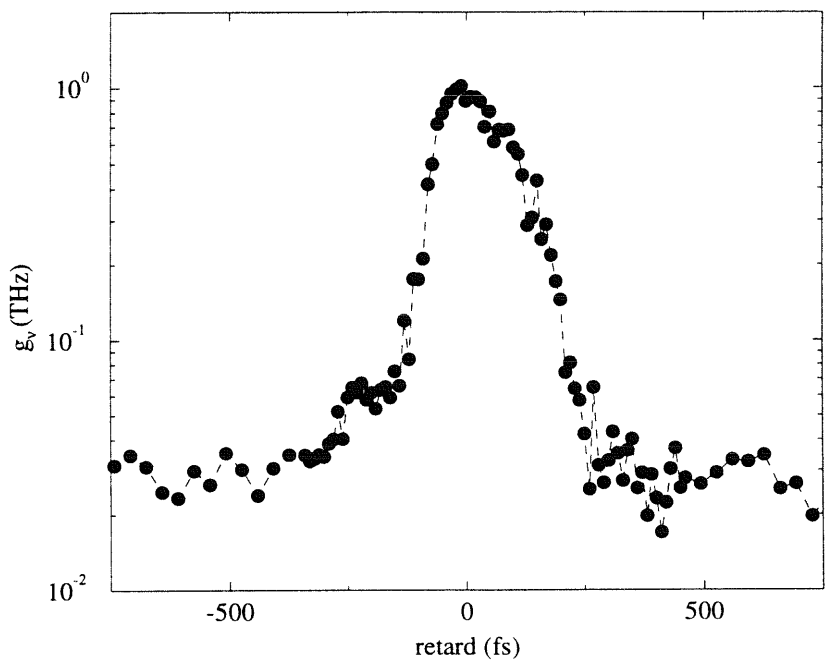


FIG. 3.8 – *Dynamique de la mesure par modulation de phase induite dans un plasma*

méthode et par celle du chapitre 2. Les fluctuations tir à tir de l'intensité du laser induisent des fluctuations très grandes dans la mesure puisque on a affaire à un phénomène non linéaire d'ordre élevé. Il faut aussi éviter une deuxième ionisation car celle-ci est décalée en temps par rapport à la première. La variation non linéaire d'indice n'est alors plus proportionnelle à une fonction de Heaviside mais à la somme de deux fonctions de Heaviside décalées dans le temps. On peut s'interroger sur ce qui se passe dans le cas où le gaz est ionisé au plus une seule

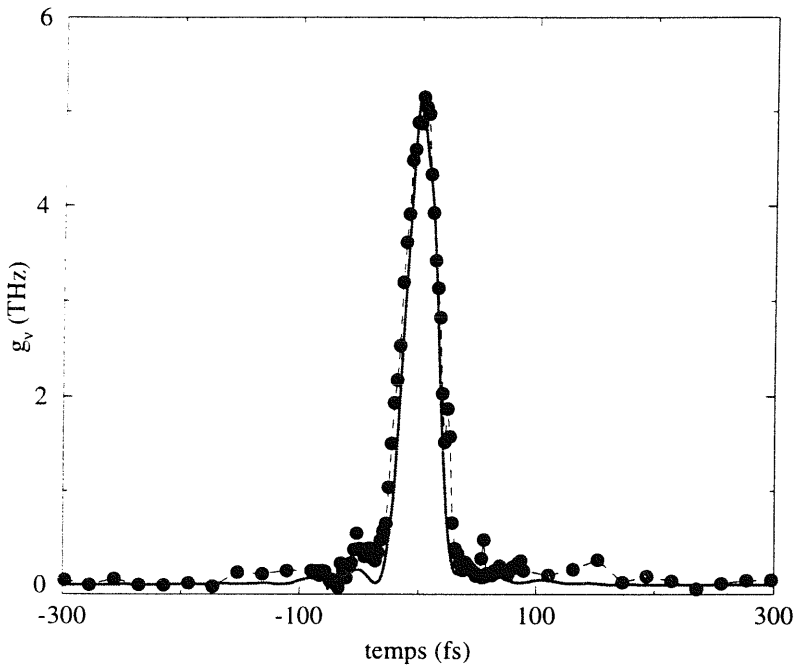


FIG. 3.9 – *Comparaison des impulsions retrouvées par modulation de phase induite dans de la silice (trait plein) et dans un plasma (cercles)*

fois mais où il faut utiliser le modèle de l'ionisation par effet tunnel. Considérons le cas de l'argon et d'une impulsion pompe gaussienne de 30 femtosecondes. On constate que lorsque l'intensité crête augmente, on s'éloigne de plus en plus d'une fonction de Heaviside. On observe aussi cette tendance sur les résultats expérimentaux lorsque l'on augmente l'énergie (et donc l'intensité) du faisceau pompe en gardant tous les autres paramètres constants. On voit sur la figure 3.11 que la courbe mesurée est plus large quand on augmente l'énergie.

3.1.2 Comparaison de l'ionisation dans l'argon et dans l'air

Les probabilités d'ionisation multiphotonique sont difficiles à estimer. Cependant, il est important de les connaître afin de valider les modèles théoriques. Nous allons montrer que la méthode décrite au paragraphe précédent permet de comparer les taux d'ionisation pour

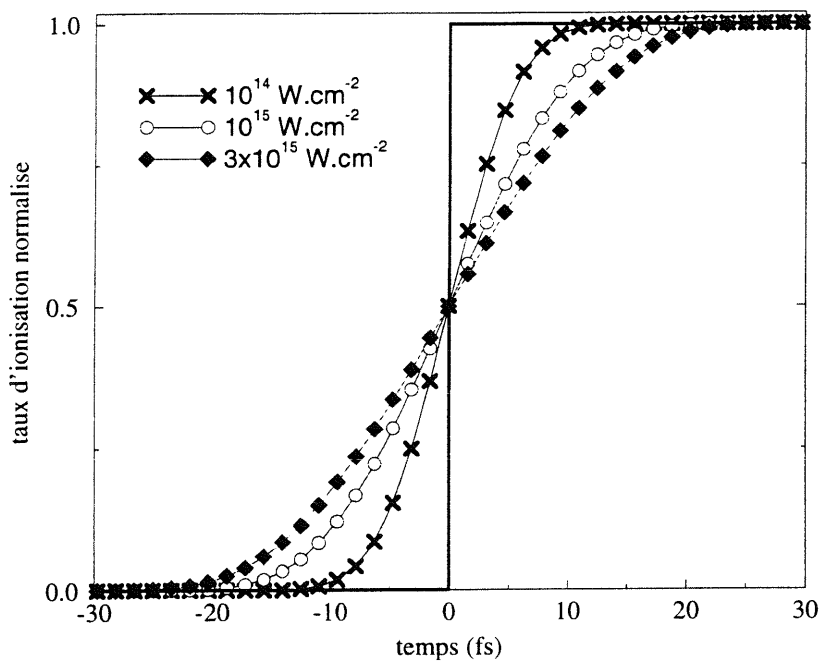


FIG. 3.10 – *Dynamique de l'ionisation tunnel en fonction de l'intensité crête*

différents gaz.

Exprimons la variation du centre de gravité du spectre de la sonde en fonction de la densité électronique $n_e(t)$. Les équations 2.2.9 et 3.1.1 donnent

$$g_\nu(\tau) = g_0 + \frac{n_0 z}{W\lambda N_c}\int_{-\infty}^{+\infty} |E_0(t)|^2 \frac{dn_e(t-\tau)}{dt} dt$$

Faisons l'approximation que $n_e(t)$ est une fonction de Heaviside, on a alors

$$n_e(t) = n_e^{max} H(t)$$

et

$$\frac{dn_e(t)}{dt} = n_e^{max}\delta(t)$$

On a alors

$$g_\nu(\tau) = g_0 + \frac{n_0 z |E_0(\tau)|^2}{W\lambda}\frac{n_e^{max}}{N_c} \tag{3.1.6}$$

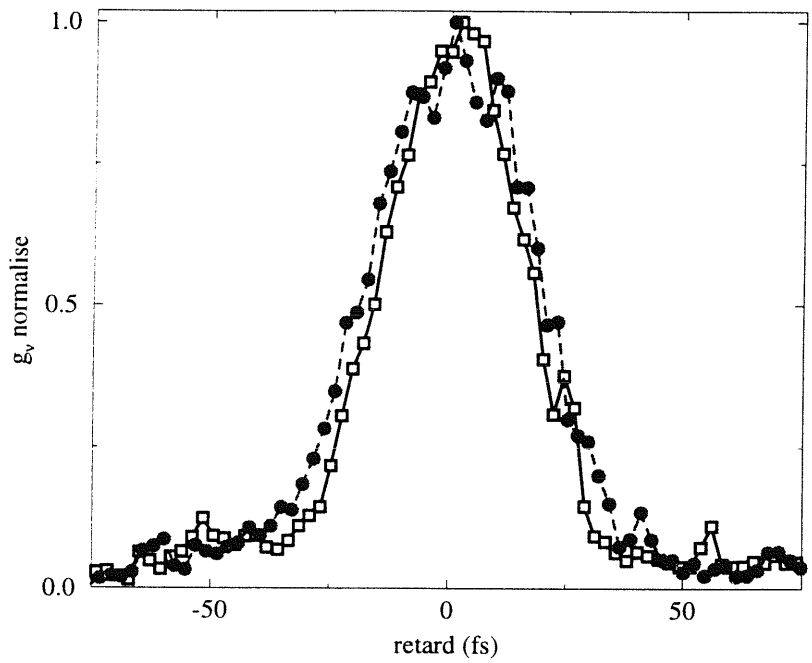


FIG. 3.11 – *Variations du centre de gravité de la sonde à différentes énergies E_1 (carrés) et E_2 (cercles pleins) avec $E_2 > E_1$*

On voit bien que deux mesures réalisées avec la même impulsion laser mais des gaz différents permet de comparer les taux d'ionisation maximum atteints.

On peut aussi, si on connaît le profil temporel de l'impulsion, retrouver la fonction $n_e(t)$ grâce à une déconvolution. Cependant, cette technique est très sensible au bruit de mesure.

Nous avons comparé de façon expérimentale l'ionisation dans l'air et dans l'argon à pression atmosphérique à l'aide d'impulsions de 30 femtosecondes et de 120 femtosecondes. Celles-ci ont d'abord été caractérisées par la méthode exposée au chapitre deux. La simulation numérique montre que l'on peut négliger l'influence de l'effet Kerr par rapport à celle de l'ionisation [63]. La comparaison des propriétés de l'air et de l'argon est intéressante parce que, contrairement à l'argon, l'air est un mélange de gaz et il est difficile de prédire a priori son comportement.

Nous avons réalisé les expériences de modulation de phase induite dans un plasma en

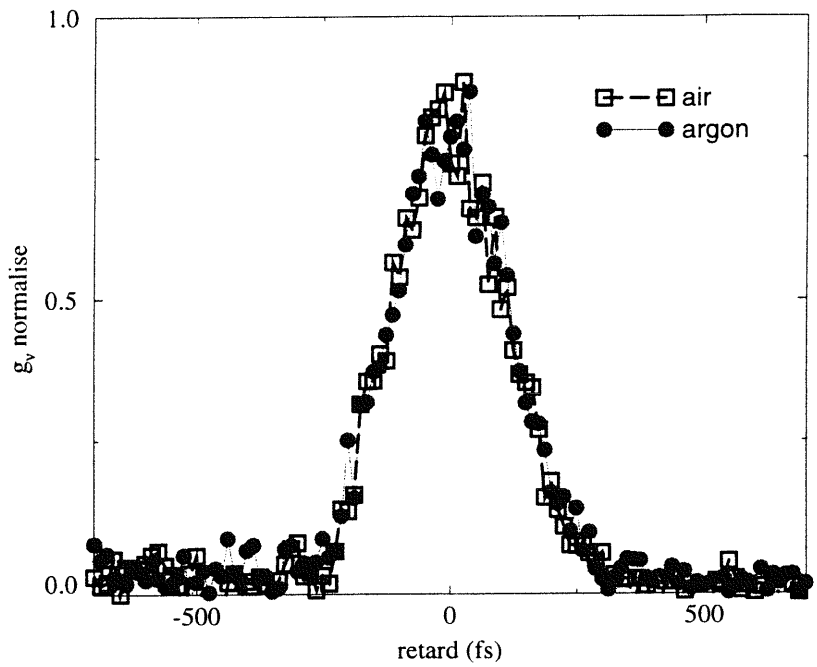


FIG. 3.12 – *Comparaison de l'ionisation dans l'air et l'argon avec des impulsions d'une durée d'environ 150 femtosecondes. La mesure de la variation des centres de gravité des spectres de modulation de phase induite dans un plasma créé dans un gaz à pression atmosphérique donne un résultat presque identique pour l'air et l'argon*

faisant interagir un faisceau intense et un faisceau de faible intensité dans une cellule remplie de gaz. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 3.12, les deux gaz donnent des courbes pratiquement identiques. On peut en tirer deux conclusions. Tout d'abord, cela implique qu'il faut autant de photons dans les deux cas pour franchir la barrière du potentiel d'ionisation c'est-à-dire 11. Le résultat n'est pas surprenant car les potentiels d'ionisation de l'argon et de l'azote sont respectivement de 15,75 eV et de 15,6 eV. Ensuite, cela veut dire que le taux d'ionisation est le même.

Après avoir caractérisé l'impulsion par la méthode de recherche de phase exposée au chapitre 2, on pourrait aussi déduire de mesures semblables à celles ci-dessus la dynamique de l'ionisation de façon plus précise que ce que donnent Wood *et al.* [64].

3.2 Dynamique temporelle de l'indice non linéaire

Pour la recherche de phase, on s'est intéressé jusqu'ici à des matériaux dont la réponse non linéaire est instantanée, par exemple la silice. Les gaz rares font aussi partie de cette catégorie de matériaux. Cependant il existe de nombreux exemples où ce n'est pas le cas, dans la plupart des semi-conducteurs, dans certains liquides et dans les gaz moléculaires. Il est donc important de déterminer si la réponse non linéaire d'ordre 3 d'un échantillon est purement instantanée ou non, ainsi que de connaitre les parts relatives de la réponse instantanée et de la réponse retardée. Considérons des matériaux transparents c'est-à-dire que la partie imaginaire de $\chi^{(3)}$ est nulle. L'indice de réfraction s'écrit:

$$n = n_0 + \Delta n$$

où n_0 est l'indice de réfraction linéaire du milieu et Δn la modification non linéaire de l'indice. Pour une réponse uniquement instantanée, on définit l'indice non linéaire pour un laser polarisé linéairement par:

$$n_2 = \frac{3}{4\varepsilon_0 c {n_0}^2}\chi^{(3)}_{1111}$$

et

$$n = n_0 + n_2 I$$

où I est l'intensité du faisceau laser donnée par

$$I = 2n\varepsilon_0 c|e|^2$$

avec le champ électrique réel E suivant

$$\mathbf{E}(t) = [e(t)\exp[i(kz - \omega t)] + c.c.]\,\hat{\mathbf{y}}$$

où y est la direction de polarisation du champ et z la direction de propagation. I est exprimé en W/m^2 et donc n_2 l'est en m^2/W. n_2 peut varier d'un ordre de grandeur selon les matériaux. Le tableau 3.2 rappelle les valeurs mesurées pour quelques solides et liquides usuels [65, 45]. Dans le cas général, Δn se décompose en une partie instantanée et une partie retardée ce qui donne:

$$\Delta n(t) = n_{2,el} I(t) + \int_{-\infty}^{t} R(t-t')I(t')dt' \tag{3.2.7}$$

ou, après le changement de variable u=t-t',

$$\Delta n(t) = n_{2,el} I(t) + \int_{0}^{+\infty} R(u)I(t-u)du$$

Matériau	n_2 (10^{-20} m^2/W)
MgF_2	1,15
suprasil	2,82
saphir	3,2
BBO	3,4
BK7	3,75
eau	5,7
CCl_4	19
KTP	23,4

TAB. 3.2 – *Indice non linéaire de milieux à réponse instantanée*

La contribution instantanée correspond à la déformation du nuage électronique sous l'action du champ et est donc notée $n_{2,el}$. La partie retardée est d'origine nucléaire et provient par exemple de la réorientation des molécules d'un liquide dans le champ de l'onde excitatrice ou de l'excitation de niveaux de vibration.

3.2.1 Un cas d'école: le disulfure de carbone (CS_2)

Le CS_2 est un milieu non linéaire qui a été très étudié au cours de ces dernières années ([66, 67] par exemple). La réponse de ce liquide peut être modélisée par une somme de mono-exponentielles d'amplitudes et de temps de réponse différents (en plus de la réponse instantanée):

$$R_{CS_2}(t) = \frac{n_2^1}{T_1}\exp(-\frac{t}{T_1}) + \frac{n_2^2}{T_2}\exp(-\frac{t}{T_2})$$

Le temps le plus long T_1 = 1,5 picoseconde correspond à la réorientation des molécules dans le champ électrique de l'impulsion. Le second temps plus court (T_2 = 100 femtosecondes) correspond à l'interaction entre les molécules. Les temps de réponse des contributions retardées sont fixés mais pas leur amplitude relative par rapport à la contribution électronique. La mesure de la variation du centre de gravité du spectre de l'onde sonde dans une expérience pompe-sonde permet d'avoir accès aux rapports $r_1 = \frac{n_2^1}{n_{2,el}}$ et $r_2 = \frac{n_2^2}{n_{2,el}}$. Pour cela, on cherche le meilleur ajustement à la courbe expérimentale avec r_1 et r_2 comme paramètres.

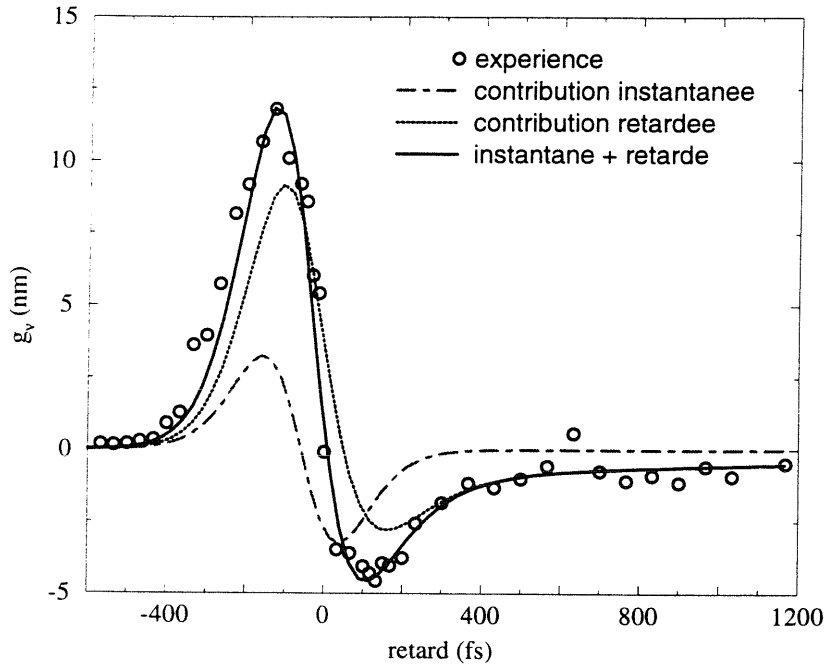


FIG. 3.13 – *Expérience pompe-sonde dans le CS_2. La résoulution temporelle permet de séparer les contributions instantanées et retardée*

L'impulsion est prise gaussienne à phase constante et sa durée, déterminée par une mesure de dérivée de l'autocorrélation, est de 140 femtosecondes. On obtient alors $r_1 = 16,25$ et $r_2 = 1,25$ en accord avec les résultats de [66].

Il est important que les impulsions utilisées ne possèdent pas de phase résiduelle. Dans le cas contraire, nous allons montrer qu'il y a couplage entre les ondes pompe et sonde et donc que le modèle de modulation de phase induite n'est plus valable [15]. Considérons deux ondes de pulsations ω_1 et ω_2 et de vecteurs d'ondes $\mathbf{k_1}$ et $\mathbf{k_2}$. Le champ total vaut

$$E(\mathbf{r},t) = A_1 e^{i(\mathbf{k_1}.\mathbf{r}-\omega_1 t)} + A_2 e^{i(\mathbf{k_2}.\mathbf{r}-\omega_2 t)} + c.c.$$

et l'intensité est donnée par

$$I = 2n_0\varepsilon_0 c\left[A_1A_1^* + A_2A_2^* + (A_1A_2^* e^{i(\mathbf{q}.\mathbf{r}-\delta t)} + c.c.)\right]$$

où $\mathbf{q} = \mathbf{k_1} - \mathbf{k_2}$ et $\delta = \omega_1 - \omega_2$. Prenons une variation non linéaire de l'indice de réfraction

uniquement sous la forme

$$\Delta n = \frac{n_2}{T}\int_{-\infty}^{t} I(t')e^{(t'-t)/T}dt'$$

d'où

$$\Delta n = 2n_0 n_2 \varepsilon_0 c\left[A_1 A_1^* + A_2 A_2^* + \left[\frac{A_1 A_2^* e^{i(\mathbf{q}.\mathbf{r}-\delta t)}}{1-i\delta T} + c.c.\right]\right] \tag{3.2.8}$$

L'équation de propagation non linéaire pour le terme se propageant dans la direction $\mathbf{k_2}$ s'écrit donc

$$\frac{dA_2}{dz} = i\frac{2\pi\Delta n}{\lambda}A_2$$

ou

$$\frac{dA_2}{dz} = i\frac{2\pi}{\lambda}2n_0 n_2 \varepsilon_0 c\left[|A_1|^2 + |A_2|^2\right]A_2 + i\frac{2\pi}{\lambda}2n_0 n_2 \varepsilon_0 c\frac{|A_1|^2}{1+i\delta T}A_2 \tag{3.2.9}$$

En utilisant la définition des intensités I_1 et I_2, on obtient

$$\frac{dI_2}{dz} = \frac{4\pi}{\lambda}n_2\frac{\delta T}{1+\delta^2 T^2}I_1 I_2 \tag{3.2.10}$$

Si les impulsions sont limitées par transformée de Fourier, $\delta = 0$ et l'intensité reste inchangée au cours de l'interaction quel que soit le retard entre les deux ondes. Si la phase temporelle est purement parabolique, δ est proportionnel au retard entre la pompe et la sonde. Dans un milieu où n_2 est positif, selon le signe du produit δT, on observera un gain ($\delta T > 0$) ou un amortissement ($\delta T < 0$). Dans le cas général, l'évolution de l'intensité est une fonction compliquée du retard où amortissements et gains se succèdent. Le modèle de modulation de phase pure pour lequel l'intensité de la sonde est considérée comme constante n'est donc valable pour étudier une contribution retardée que si on utilise des impulsions limitées par transformée de Fourier.

3.2.2 Cas de l'air

La connaissance de l'indice non-linéaire de l'air est très importante puisque dans la plupart des expériences, les faisceaux se propagent dans l'air (parfois sur plusieurs mètres) avant d'arriver sur la cible ou la région d'interaction. Ceci peut modifier fortement les caractéristiques du faisceau. Par exemple, on voit sur la figure 3.14 que le spectre d'une impulsion intense est déformé et décalé vers le rouge après quelques mètres de propagation dans l'air. La dynamique temporelle de l'indice non linéaire influe aussi sur l'autofocalisation et la formation de modes autoguidés dans l'air. La valeur de l'indice non linéaire d'un gaz est une

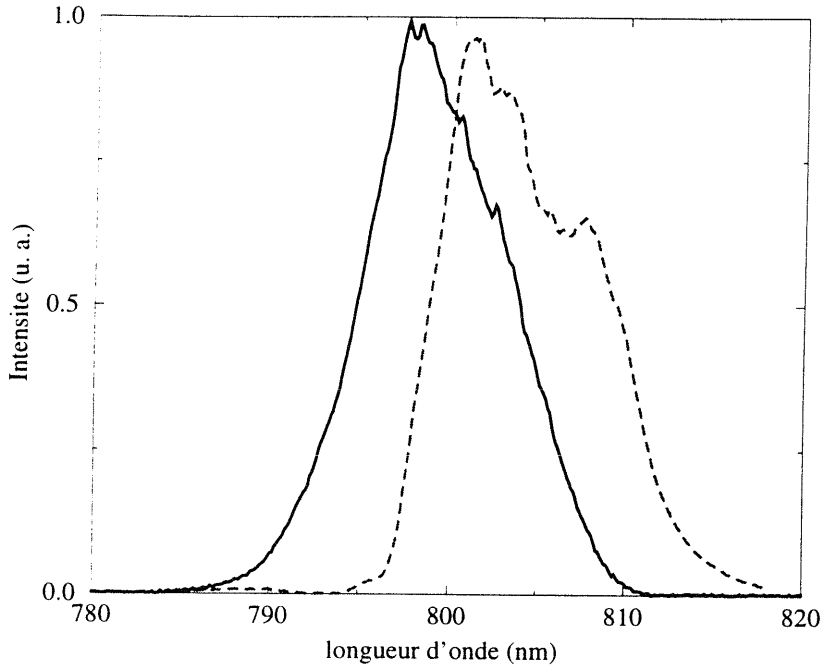


FIG. 3.14 – *Spectre avant (trait plein) et après (pointillés) propagation dans 5 mètres d'air du laser 0,5 TW utilisé à pleine puissance. Le spectre après propagation est modulé et fortement décalé vers les grandes longueurs d'onde*

donnée difficilement accessible par une méthode telle que le Z-scan [68, 69] qui nécessite un échantillon dont la longueur est inférieure ou de l'ordre du paramètre confocal du faisceau focalisé utilisé. Lorsque l'échantillon est un solide, cette condition est facilement satisfaite mais les gaz sont environ mille fois moins non linéaires que les solides (tableaux 3.2 et 3.3) et il faudrait donc un échantillon mille fois plus épais. On peut aussi utiliser l'analyse spectrale après automodulation de phase avec un faisceau laser intense [65, 70] mais il n'est pas possible de faire la distinction entre un indice de réfraction non linéaire solution d'une équation de Debye (réponse retardée mono-exponentielle) et le modèle Raman que nous allons exposer par la suite. Nous allons montrer à l'aide d'une expérience pompe-sonde que c'est bien le modèle Raman qui décrit la réponse retardée de l'air.

Gaz	n_2 (10^{-23} m^2/W)
Argon [70]	1,4
Xénon [70]	8,1
Krypton [71]	2,8
Néon [71]	0,1

TAB. 3.3 – *Indice non linéaire de quelques gaz rares à la pression atmosphérique*

Contribution rotationnelle à la variation non linéaire de l'indice de réfraction

Nous décrivons pour commencer le modèle correspondant à la variation non linéaire de l'indice de réfraction de l'air. Exprimons la fonction de réponse pour des gaz moléculaires dont les molécules sont de forme linéaire tels que l'azote, l'oxygène ou le dioxyde de carbone [72, 73, 74, 75]. On a

$$R(t) = \frac{n_{2,rot}}{t_{n2}} \sum_{J=0}^{\infty} F_J \sin(-\omega_J t) \tag{3.2.11}$$

où t_{n2} est un temps caractéristique de la réponse du milieu, le temps de montée de la fonction de réponse du milieu. $n_{2,rot}$ est l'amplitude de la réponse, elle est proportionnelle à la densité ainsi qu'au carré de l'anisotropie de la polarisabilité $\beta(\omega)$. Celle-ci est définie par

$$\beta(\omega) = \alpha_{||}(\omega) - \alpha_{\perp}(\omega)$$

où $\alpha_{||}(\omega)$ représente la polarisabilité parallèlement à l'axe de symétrie de la molécule et $\alpha_{\perp}(\omega)$ représente la polarisabilité perpendiculairement à l'axe précédent. On voit donc que les gaz rares pour lesquels les atomes sont à symétrie sphérique ont une réponse retardée nulle, seule reste la contribution électronique instantanée. Détaillons maintenant l'expression 3.2.11. F_J correspond à la contribution de chacun des niveaux de rotation excité et vaut

$$F_J = (\rho_{J+2} - \rho_J) Z_J \frac{(J+1)(J+2)}{2J+3}$$

avec ρ_J la population du niveau J et Z_J un facteur qui dépend de la parité de J et du gaz considéré (voir tableau 3.6). ρ_J est facteur statistique qui vaut

$$\rho_J = \frac{\exp\left(-hcBJ(J+1)/k_B T\right)}{\sum_{J=0}^{\infty} \exp\left(-hcBJ(J+1)/k_B T\right)}$$

Gaz	β (C^2 kg^{-1} s)	$\frac{\beta^2}{\beta^2_{N_2}}$
Azote (N_2)	$1{,}03\times10^{-40}$	1
Oxygène (O_2)	$1{,}27\times10^{-40}$	1,50
Dioxyde de carbone (CO_2)	$2{,}26\times10^{-40}$	4,76

TAB. 3.4 – *Anisotropie de la polarisabilité moléculaire*

où h est la constante de Planck, k_B la constante de Boltzmann, T la température et B la constante de rotation de la molécule. Enfin ω_J est la fréquence de rotation associée au niveau J

$$\omega_J = 4\pi Bc(2J+3)$$

Une impulsion femtoseconde possède un spectre assez large pour exciter presque tous les niveaux significativement peuplés. La réponse du milieu est alors la somme cohérente des

Gaz	B (cm^{-1})
Azote (N_2)	2,00
Oxygène (O_2)	1,44
Dioxyde de carbone (CO_2)	0,39

TAB. 3.5 – *Constante de rotation pour différentes molécules linéaires*

réponses de chacun des niveaux de rotation. Comme ces niveaux sont équidistants, on observe des résurgences spontanées de la fonction de réponse et donc de l'indice non linéaire comme on peut le voir sur la figure 3.15. Les instants d'apparition de ce phénomène sont déterminés par la valeur de la constante de rotation de la molécule considérée. En effet, les fréquences des niveaux de rotation sont espacées de $\delta\omega = 8\pi Bc$. Et on peut écrire

$$\omega_J = (J+\frac{3}{2})\delta_\omega$$

Montrons maintenant que P défini par

$$P = \frac{1}{2Bc}$$

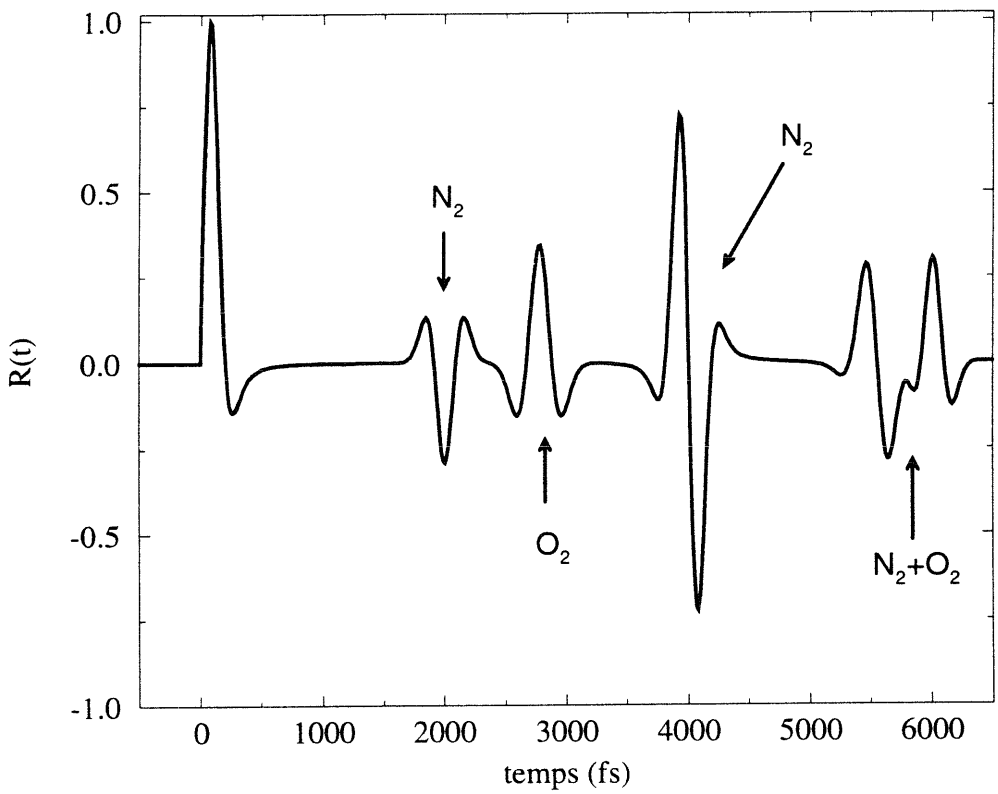


FIG. 3.15 - *Fonction de réponse de l'air normalisée à l'unité*

est une période de la fonction de réponse. On a aussi

$$P = \frac{4\pi}{\delta_\omega}$$

d'où

$$\omega_J P = (2J + 3) \times 2\pi$$

et donc R(t+P)=R(t). Pour l'azote, cela donne une période de P_{N_2}=8,3 picosecondes et elle est de P_{O_2}=11,6 picosecondes pour l'oxygène. On observe également une cohérence partielle à la demie période et au quart de la période. En effet, $\omega_J P/2 = (J+1)2\pi + \pi$ et on a donc R(t+P/2)=-R(t). Enfin, $\omega_J P/4 = (J+1)\pi + \pi/2$ et selon la parité de J,

$$\sin\left[\omega_J(t+P)\right] = \pm cos(\omega_J t)$$

Ce sont alors les valeurs du coefficient Z_J qui déterminent la forme de la fonction de réponse à ces instants. Z_J correspond aux propriétés nucléaires du gaz considéré et celles-ci ne sont évidemment pas les mêmes pour l'oxygène et l'azote. Pour l'azote, les transitions depuis les niveaux pairs sont deux fois plus intenses que celles depuis les niveaux impairs. Pour l'oxygène, seuls les niveaux impairs sont peuplés. De plus, la valeur de la période pour

gaz	Z_J	J
azote	1	impair
	2	pair
oxygène	1	impair
	0	pair

TAB. 3.6 – *Force des transitions entre niveaux rotationnels pour l'azote et l'oxygène*

l'oxygène étant presque une fois et demie plus grande que celle pour l'azote, on obtient un recouvrement de ces phénomènes à certains instants comme par exemple autour de t=6 ps.

Vérification expérimentale

On doit retrouver ces résurgences de la réponse retardée à travers la variation non linéaire de l'indice de réfraction de l'air. Nous avons donc réalisé une expérience pompe-sonde au cours de laquelle le retard entre les deux ondes pouvait prendre des valeurs supérieures à T_{O_2} et T_{N_2}. Pour palier la faible valeur de n_2, nous avons croisé les faisceaux non focalisés avec un angle très faible afin d'obtenir une longueur d'interaction de plusieurs mètres [9]. La figure 3.16 montre la variation du centre de gravité du spectre de l'onde de sonde en fonction du retard entre les deux faisceaux. On note tout d'abord que dans la partie où les deux impulsions se recouvrent (-250 fs $< \tau <$ 250 fs) on mesure un décalage vers le rouge plus grand que le décalage vers le bleu ce qui est bien caractéristique de la présence d'une contribution retardée à la variation non linéaire de l'indice. On peut ensuite observer que l'on obtient bien un effet non linéaire longtemps après le passage de l'impulsion intense de pompe. Le modèle exposé ci-dessus permet de retrouver les variations de fréquence centrale mesurées. Nous avons procédé à un ajustement avec pour paramètre libre le rapport entre

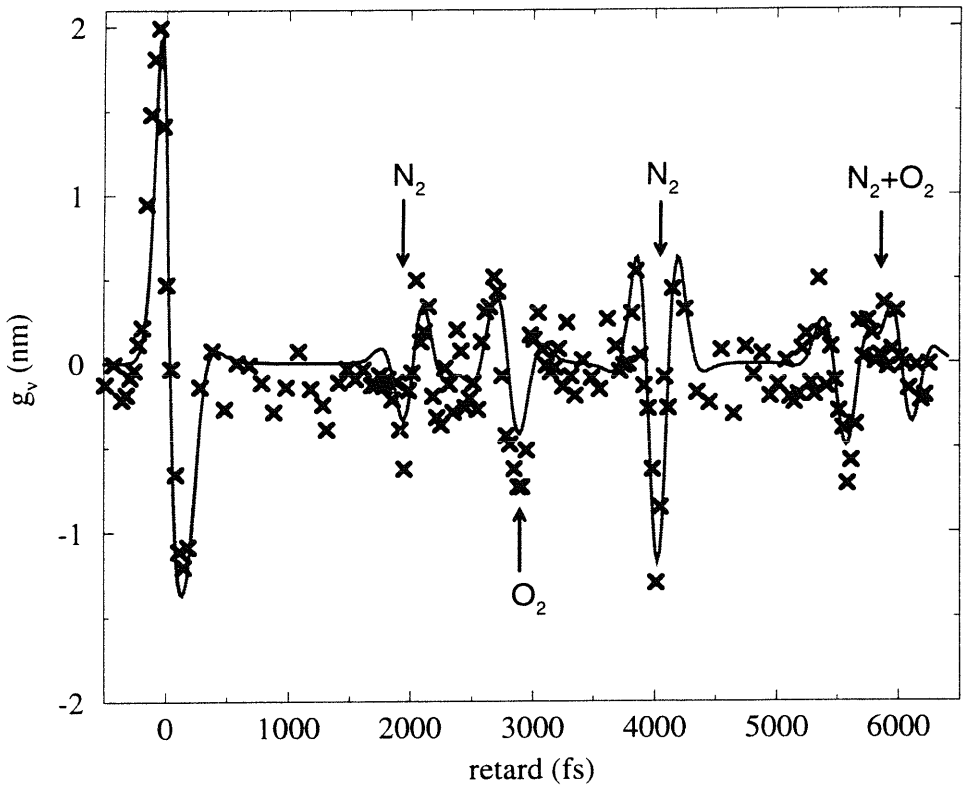


FIG. 3.16 – *Expérience pompe-sonde dans l'air: variation du centre de gravité du spectre de la sonde mesuré (croix) et calculé pour un meilleur ajustement (trait plein)*

la réponse instantanée et la réponse retardée défini par

$$r = \frac{n_{2,el}}{n_{2,rot}}$$

D'après la figure 3.15, le temps de montée de la fonction de réponse de l'air vaut $t_{n2} = 80$ femtosecondes. Le meilleur ajustement donne alors r=18,2. Cela correspond à une phase non linéaire maximale de 1,22 radian pour la partie instantanée et de 0,73 radian pour la partie retardée.

Ce qui nous intéresse pour la propagation dans l'air est l'influence de l'automodulation de phase due à la variation non linéaire de l'indice de réfraction. On peut alors constater que

l'automodulation de phase subie par l'impulsion dans l'air dépend de la durée de celle-ci, même lorsque la fonction de réponse du milieu est indépendante de ce paramètre. En utilisant la variation non linéaire de l'indice de réfraction déterminée dans le paragraphe précédent,

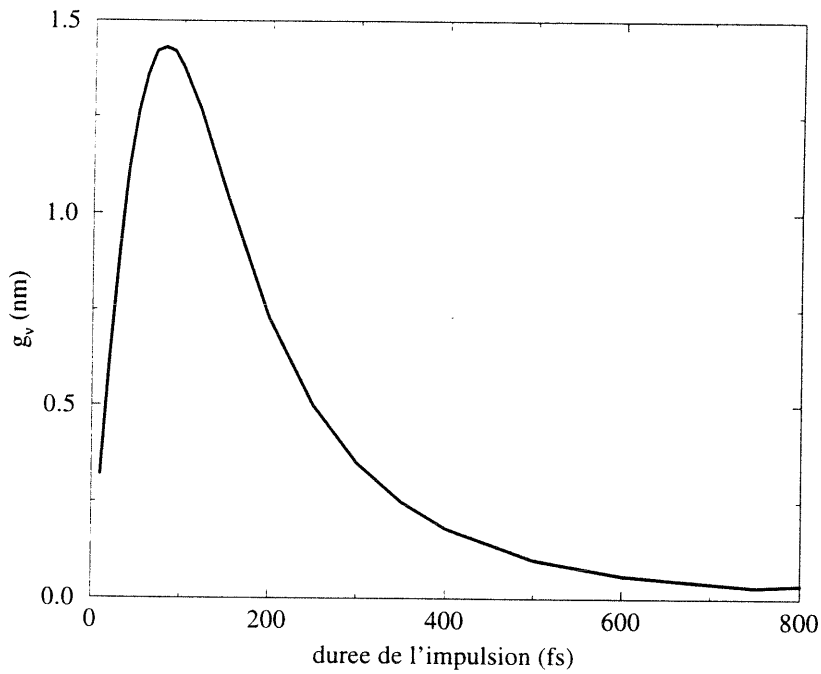


FIG. 3.17 – *Décalage vers le rouge en fonction de la durée de l'impulsion*

il est possible de calculer le spectre d'automodulation de phase d'une impulsion gaussienne de largeur à mi-hauteur T, T variant de 20 à 750 femtosecondes avec une phase non linéaire instantanée maximale égale à 1.2 radian et une phase non linéaire retardée maximale qui dépend forcément de la durée de l'impulsion à travers la convolution de l'impulsion excitatrice et de la fonction de réponse. On constate que le spectre automodulé est de plus décalé vers le rouge et que l'amplitude de ce décalage dépend de la durée de l'impulsion (voir figure 3.17). Le couplage maximum avec les niveaux de rotation des différentes molécules est obtenu pour une impulsion de 80 femtosecondes de durée. Pour des impulsions plus courtes, la rotation des molécules n'a pas le temps de se faire ce qui découple en partie la contribution électronique de la contribution rotationnelle. La partie instantanée devient alors plus importante et le

décalage vers le rouge moins grand. Lorsque la largeur des impulsions devient plus longue, le temps de réponse de la contribution devient progressivement de l'ordre de grandeur de la durée de l'impulsion excitatrice puis inférieur à celle-ci. La réponse non linéaire est alors pratiquement instantanée et le décalage vers le rouge tend à disparaître.

En conclusion, nous avons montré que les expériences pompe-sonde résolues spectralement peuvent être réalisées dans des milieux non linéaires variés tels qu'un gaz ionisé ou un milieu Kerr avec réponse retardée. Ainsi la modulation de phase induite dans un gaz ionisé est une méthode particulièrement simple de mesurer des impulsion ultracourtes intenses et qui est de plus bien adaptée à l'ultraviolet lointain. Enfin, nous avons vu qu'il est possible d'extraire de la mesure de la variation du centre de gravité des spectres de la sonde, une réponse Kerr retardée complexe.

Conclusion et perspectives

Conclusion

Mon travail de thèse a principalement permis la réalisation d'un dispositif permettant de caractériser à la fois en amplitude et en phase des impulsions ultracourtes. Cette technique repose sur l'analyse des spectres d'un faisceau de faible intensité (la sonde) ayant traversé un milieu de type Kerr transparent et avec réponse instantanée, illuminé par une réplique intense de la sonde (la pompe). En faisant varier l'écart temporel entre la pompe et la sonde, on imprime alors une "empreinte" du faisceau intense sur le faisceau faible.

Il est possible d'estimer la durée de l'impulsion en calculant le moment d'ordre 1 (ou centre de gravité) du spectre de la sonde en fonction du retard entre les deux ondes. En effet, on obtient alors la dérivée de l'autocorrélation. Un algorithme est cependant nécessaire pour obtenir une caractérisation complète de l'impulsion. Nous avons montré qu'un algorithme très simple et très rapide reposant sur des substitutions permet d'extraire l'information recherchée. Aucun cas d'ambiguïté de la solution ou de stagnation dans un minimum local n'a été rencontré sur des exemples numériques, la convergence est toujours limitée par l'erreur d'arrondi de l'ordinateur.

Nous avons également mis en oeuvre de façon expérimentale cette méthode de caractérisation des impulsions femtosecondes. Cela a été fait aussi bien dans le proche infrarouge (800 nanomètres) sur des systèmes lasers reposant sur l'amplification à dérive de fréquences dans le saphir dopé avec du titane, que dans le proche ultraviolet (400 nanomètres) après doublage de fréquences des impulsions infrarouges dans un cristal non linéaire. Ces chaînes laser fonctionnent à un taux de répétition de 10 Hertz ou de 1 kiloHertz. Nous avons de plus démontré la faisabilité d'un système d'acquisition des données en seul tir laser ce qui est

indispensable pour les lasers à faible récurrence (< 1 Hz).

Enfin, nous avons réalisé des expériences pompe-sonde en utilisant des effets non linéaires différents de l'effet Kerr instantané. Le premier cas considéré est celui où la pompe est assez intense pour ioniser un gaz à pression atmosphérique tel que l'air ou l'argon. Le calcul des centres de gravité donne alors la corrélation d'ordre N de l'impulsion où N est le nombre de quanta nécessaires pour arracher un électron. Cela donne aussi la possibilité de comparer l'ionisation pour plusieurs gaz ou mélanges de gaz. Le deuxième cas est celui des milieux présentant une réponse non linéaire du troisième ordre à la fois instantanée et retardée. La même étude des variations des centre de gravités de l'onde de sonde permet de confirmer les modèles choisis pour la partie retardée, elle permet aussi de déterminer l'importance relative des contributions. Nous avons ainsi étudié le cas de l'air et mis en évidence qu'il faut prendre en compte la contribution rotationnelle Raman dans la réfraction non linéaire.

Perspectives

Il m'apparaît possible d'envisager trois directions vers lesquelles le travail de ma thèse concernant la caractérisation d'impulsions ultracourtes pourrait être étendu de façon plus ou moins directe: une amélioration de la sensibilité, la possibilité de mesurer des impulsions encore plus courtes et la caractérisation de sources dans l'ultraviolet lointain ou les rayons X. Ces trois axes de recherche peuvent être parfois liés entre eux.

La méthode de recherche de phase basée sur la modulation de phase induite nécessite l'utilisation d'un matériau présentant une non linéarité d'ordre trois que l'on puisse considérer comme instantanée. Pour cela, nous avons choisi d'utiliser un solide et en particulier la silice dont la valeur de l'indice non linéaire nous oblige à avoir une énergie par impulsion supérieure à une dizaine de microjoules pour une durée de l'ordre de 100 femtosecondes. Il semble possible de gagner au plus un ordre de grandeur en changeant de matériau (par exemple l'eau et le CCl_4 sont respectivement 2 et 6 fois plus non linéaires que la silice) car les milieux présentant une non linéarité beaucoup plus forte (CS_2, semi-conducteurs...) ont rarement une réponse instantanée. Cependant, il a été mis en évidence au cours des dernières années que l'on pouvait simuler des effets non linéaires du troisième ordre par une cascade d'effets non linéaires du deuxième ordre [76, 77, 78, 79]. Les indices non linéaires effectifs que l'on obtient alors peuvent être jusqu'à environ cent fois plus grands que celui de la silice. C'est alors suffisant pour mesurer des impulsions produites par un oscillateur à extracteur

d'impulsions (E=40 nJ et T=13,5 fs [80]). On peut également envisager l'utilisation de guides d'ondes (fibres optiques...) peu dispersifs [81].

De nombreuses équipes de recherches cherchent à obtenir des impulsions les plus courtes possibles. Des oscillateurs utilisant le saphir dopé au titane produisent des impulsions d'une durée inférieure à 10 femtosecondes [82, 83]. D'autre part, des systèmes reposant sur l'automodulation de phase suivie d'une recompression externe permettent d'atteindre 5 femtosecondes avec un taux de répétition élevé [84] ou des énergies non négligeables [85]. La fréquence porteuse de ces impulsions se situe dans le proche infrarouge mais les spectres correspondants sont très large et le problème de la dispersion de vitesse de groupe se pose alors. On peut probablement continuer à utiliser la méthode que nous avons mis au point mais avec un échantillon non linéaire très fin.

Les sources laser femtosecondes intenses sont aussi très utilisées afin de générer un rayonnement dans l'ultraviolet plus ou moins lointain. Le plus souvent, des harmoniques d'ordre impair sont produits en focalisant le faisceau à la fréquence fondamentale dans un jet de gaz [86]. L'ordre des harmoniques ainsi générés peut être très élevé [87, 88] et la durée des impulsions dans l'ultraviolet est potentiellement très courte. Cependant, leur caractérisation reste difficile. La méthode de recherche de phase reposant sur une modulation de phase induite dans un milieu Kerr pourrait être encore utilisable à condition de trouver le bon milieu d'interaction. De plus, la modulation de phase induite dans un plasma semble convenir à ce type d'impulsion même si les expériences d'optique non linéaire avec les harmoniques d'ordre élevé restent délicates.

Annexe A

Transformée de Fourier: définitions et propriétés

1 Définitions

• On définit la *transformée de Fourier directe* d'une fonction complexe de la variable t par:

$$\mathcal{F}(\nu) = \mathbf{TF}\left[f(t)\right] = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t)e^{2i\pi\nu t}dt$$

• La *transformée de Fourier inverse* est donnée par:

$$f(t) = \mathbf{TF^{-1}}\left[\mathcal{F}(\nu)\right] = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{F}(\nu)e^{-2i\pi\nu t}d\nu$$

• On dispose de la relation suivante sur la *distribution de Dirac*:

$$\delta(t-t_0) = \mathbf{TF^{-1}}\left[e^{2i\pi\nu t_0}\right]$$

Le changement de variable $\nu' = -\nu$ donne

$$\delta(t-t_0) = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{2i\pi\nu(t-t_0)}d\nu$$

• On peut dériver l'expression précédente pour obtenir la *dérivée de la distribution de Dirac*:

$$\delta'(t-t_0) = 2i\pi\int_{-\infty}^{+\infty} \nu e^{2i\pi\nu(t-t_0)}d\nu$$

2 Propriétés

• Le *théorème de Parseval-Plancherel* établit l'égalité des normes dans les deux espaces réciproques:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} |f(t)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{F}(\nu)|^2 d\nu$$

• La transformée de Fourier de f*(t) fonction conjuguée de f(t) est donnée par

$$\mathbf{TF}\left[f^*(t)\right] = \mathcal{F}^*(-\nu)$$

et de même

$$\mathbf{TF}^{-1}\left[\mathcal{F}^*(\nu)\right] = f^*(-t)$$

• La *corrélation* de deux fonctions f et g est définie par

$$C(t') = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t)g(t+t')dt$$

On a alors

$$\mathbf{TF}\left[C(t')\right] = \mathcal{F}(-\nu)\mathcal{G}(\nu)$$

Si f est une fonction réelle, alors $\mathcal{F}(-\nu) = \mathcal{F}(\nu)^*$ et

$$\mathbf{TF}\left[C(t')\right] = \mathcal{F}(\nu)^*\mathcal{G}(\nu)$$

Par conséquent, dans le cas f=g où C(t') représente *l'autocorrélation* de la fonction f, on obtient

$$\mathbf{TF}\left[C(t')\right] = |\mathcal{F}(\nu)|^2$$

• Nous avons aussi une relation entre l'ajout d'une phase linéaire dans un espace et une translation dans l'espace réciproque.

$$\mathbf{TF}\left[f(t)e^{-2i\pi\nu_0 t}\right] = \mathcal{F}(\nu - \nu_0)$$

et

$$\mathbf{TF}^{-1}\left[\mathcal{F}(\nu)e^{2i\pi\nu t_0}\right] = f(t - t_0)$$

• La transformée de Fourier de la dérivée en temps de f(t) est reliée à $\mathcal{F}(\nu)$ par

$$\mathbf{TF}\left[\frac{df(t)}{dt}\right] = -i2\pi\nu\mathcal{F}(\nu)$$

De même, on obtient dans l'espace réciproque

$$\mathbf{TF}^{-1}\left[\frac{d\mathcal{F}(\nu)}{d\nu}\right] = i2\pi t f(t)$$

Annexe B

Largeurs à mi-hauteur en temps et en fréquence

On définit la largeur d'une fonction complexe f de la variable x par l'écart quadratique moyen de son module élevé au carré

$$\left\langle x^2 \right\rangle = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} x^2 |f(x)|^2 dx}{\int_{-\infty}^{+\infty} |f(x)|^2 dx}$$

Nous allons maintenant montrer quelques propriétés intéressantes de la largeur des impulsions et des spectres.

1 Produit $\langle t^2 \rangle \langle \nu^2 \rangle$

Le temps et la fréquence sont des variables conjuguées, il existe donc l'équivalent d'une relation d'incertitude. Pour trouver cette relation, on peut d'abord remarquer que l'inégalité suivante est satisfaite pour tout α réel

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \left| \alpha t e(t) + \frac{de(t)}{dt} \right|^2 dt \geq 0$$

où e(t) est l'enveloppe du champ électrique d'une impulsion. En développant, on obtient

$$\alpha^2 \int_{-\infty}^{+\infty} t^2 |e(t)|^2 dt + \alpha \int_{-\infty}^{+\infty} t \frac{d|e(t)|^2}{dt} dt + \int_{-\infty}^{+\infty} \left| \frac{de(t)}{dt} \right|^2 dt \geq 0$$

Une intégration par parties sur le terme en α donne

$$\alpha^2 \int_{-\infty}^{+\infty} t^2 |e(t)|^2 dt + \alpha \int_{-\infty}^{+\infty} |e(t)|^2 dt + \int_{-\infty}^{+\infty} \left| \frac{de(t)}{dt} \right|^2 dt \geq 0$$

En utilisant le théorème de Parseval-Plancherel et les propriétés des transformées de Fourier des dérivées, on arrive à l'inégalité

$$\alpha^2 \int_{-\infty}^{+\infty} t^2 |e(t)|^2 dt + \alpha \int_{-\infty}^{+\infty} |e(t)|^2 dt + 4\pi^2 \int_{-\infty}^{+\infty} \nu^2 |\tilde{e}(\nu)|^2 d\nu \geq 0$$

Une division par $\int_{-\infty}^{+\infty} |e(t)|^2 dt$ fait alors apparaître $\langle t^2 \rangle$ et $\langle \nu^2 \rangle$ et on doit donc avoir

$$\alpha^2 \left\langle t^2 \right\rangle - \alpha + 4\pi^2 \left\langle \nu^2 \right\rangle \geq 0 \tag{1.1}$$

pour tout α réel. C'est le cas si le déterminant du polynôme du second degré en α est négatif donc si

$$\left\langle t^2 \right\rangle \left\langle \nu^2 \right\rangle \geq \frac{1}{16\pi^2}$$

Le produit $\langle t^2 \rangle \langle \nu^2 \rangle$ est donc toujours supérieur à $\frac{1}{16\pi^2}$, cherchons si il existe des fonctions pour lesquelles cette borne est atteinte. Pour qu'elle le soit, il faut que

$$\alpha t e(t) + \frac{de(t)}{dt} = 0$$

L'intégration de cette équation différentielle est immédiate et donne

$$e(t) = E_0 \exp\left[-\alpha \frac{t^2}{2}\right] \tag{1.2}$$

Les impulsions de profil temporel gaussien avec une phase temporelle constante sont des fonctions qui minimisent le produit $\langle t^2 \rangle \langle \nu^2 \rangle$.

2 Largeur temporelle minimale pour un spectre donné

On considère un spectre donné f(ν) où f est une fonction réelle qui s'annule à l'infini. Le champ complexe des impulsions correspondant à ce spectre est

$$e(t) = \mathbf{TF^{-1}} \left[f(\nu) e^{i\varphi(\nu)} \right]$$

avec $\varphi(\nu)$ la phase spectrale qui est une fonction réelle. D'après le théorème de Parseval-Plancherel, $W = \int_{-\infty}^{+\infty} |e(t)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} f^2(\nu) d\nu$ où W est une constante et on a donc

$$\left\langle t^2 \right\rangle = \frac{1}{W} \int_{-\infty}^{+\infty} t^2 |e(t)|^2 dt$$

Posons $N = \int_{-\infty}^{+\infty} t^2 |e(t)|^2 dt$, la définition de e(t) donne alors

$$N = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} f(\nu) f(\nu') \exp i \left[\varphi(\nu) - \varphi(\nu')\right] t^2 e^{i2\pi(\nu'-\nu)t} d\nu d\nu' dt \tag{2.3}$$

Or

$$\int_{-\infty}^{+\infty} t^2 e^{i2\pi(\nu'-\nu)t} dt = -\frac{1}{4\pi^2} \delta"(\nu' - \nu)$$

en notant $\delta"$ la dérivée seconde de la distribution de Dirac. Une double intégration par parties permet d'obtenir

$$N = -\frac{1}{4\pi^2} \int_{-\infty}^{+\infty} f(\nu) \left[f"(\nu) - f(\nu) \left(\varphi'(\nu)\right)^2 - i \left[2f'(\nu)\varphi'(\nu) + f(\nu)\varphi"(\nu)\right]\right] d\nu \tag{2.4}$$

où les exposants ' et " représentent respectivement les dérivées premières et secondes par rapport à ν. N est une quantité réelle et on peut vérifier que

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \left[2f(\nu)f'(\nu)\varphi'(\nu) + \left(f(\nu)\right)^2 \varphi"(\nu)\right] d\nu = 0$$

Enfin, en notant que $\int_{-\infty}^{+\infty} f(\nu) f"(\nu) d\nu = -\int_{-\infty}^{+\infty} \left(f'(\nu)\right)^2 d\nu$, on trouve

$$\left\langle t^2 \right\rangle = \frac{1}{4\pi^2 W} \int_{-\infty}^{+\infty} \left[\left(f(\nu)\right)^2 \left(\varphi'(\nu)\right)^2 + \left(f'(\nu)\right)^2\right] d\nu \tag{2.5}$$

Il est évident que $\langle t^2 \rangle$ est minimum lorsque $\left(\varphi'(\nu)\right)^2 = 0$ c'est-à-dire lorsque la phase spectrale est constante. L'impulsion dans le domaine temporelle est alors la plus courte possible et est dite limitée par la transformée de Fourier.

Bibliographie

[1] C. RISCHEL, A. ROUSSE, I. USCHMANN, P. ALBOUY, J.-P. GEINDRE, P. AUDEBERT, J.-C. GAUTHIER, E. FORSTER, J.-L. MARTIN et A. ANTONETTI, "Femtosecond time-resolved x-ray diffraction from laser-heated organic films", *Nature*, vol. **390**, 1997.

[2] J. CAO, C. BARDEEN et K. WILSON, "Molecular "π pulse" for total inversion of electronic state population", *Phys. Rev. Lett.*, vol. **80**, p. 1406, 1998.

[3] B. PRADE, J. SCHINS, E. NIBBERING, M. FRANCO et A. MYSYROWICZ, "A simple method for the determination of the intensity and phase of ultrashort optical pulses", *Opt. Comm.*, vol. **113**, p. 79, 1994.

[4] E. NIBBERING, M. FRANCO, B. PRADE, G. GRILLON, J.-P. CHAMBARET et A. MYSYROWICZ, "Spectral determination of the amplitude and phase of intense ultrashort pulses", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. **13**, p. 317, 1996.

[5] J.-F. RIPOCHE, B. PRADE, M. FRANCO, G. GRILLON, R. LANGE et A. MYSYROWICZ, "Determination of the duration of UV femtosecond pulses", *Opt. Comm.*, vol. **134**, p. 165, 1997.

[6] M. FRANCO, R. LANGE, J.-F. RIPOCHE, B. PRADE et A. MYSYROWICZ, "Characterization of ultra-short pulses by cross-phase modulation", *Opt. Comm.*, vol. **140**, p. 331, 1997.

[7] R. LANGE, M. FRANCO, J.-F. RIPOCHE, B. PRADE, P. ROUSSEAU et A. MYSYROWICZ, "Reconstruction of the time profile of femtosecond laser pulses through cross-phase modulation", *IEEE J. Selected Topics Quant. Elec.*, vol. **4**, 1998.

[8] J.-F. RIPOCHE, R. LANGE, M. FRANCO, B. PRADE, P. ROUSSEAU et A. MYSYROWICZ, "Measurement of femtosecond pulseshapes via ionisation of air", *IEEE J. Selected Topics Quant. Elec.*, vol. **4**, 1998.

[9] J.-F. RIPOCHE, G. GRILLON, B. PRADE, M. FRANCO, E. NIBBERING, R. LANGE et A. MYSYROWICZ, "Determination of the time dependence of n_2 in air", *Opt. Comm.*, vol. **135**, p. 310, 1997.

[10] Y. R. SHEN, *The principles of nonlinear optics*, Wiley and sons, 1984.

[11] G. P. AGRAWAL, *Nonlinear fiber optics*, Academic Press, 1989.

[12] A. DALGARNO et A. KINGSTON, "The refractive indices and Verdet constants of the inert gases", *Proc. Roy. Soc.*, vol. **A259**, p. 424, 1966.

[13] C. ALLEN, *Astrophysical quantities*, University of London, 1964.

[14] S. DIDDAMS et J.-C. DIELS, "Dispersion measurements with white-light interferometry", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. **13**, p. 1120, 1996.

[15] R. W. BOYD, *Nonlinear optics*, Academic Press, 1992.

[16] A. BRAUN, G. KORN, X. LIU, D. DU, J. SQUIER et G. MOUROU, "Self-channeling of high-peak-power fs laser pulses in air", *Opt. Lett.*, vol. **20**, p. 73, 1995.

[17] E. NIBBERING, P. CURLEY, G. GRILLON andB. PRADE, F. SALIN et A. MYSYROWICZ, "Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air", *Opt. Lett.*, vol. **21**, p. 62, 1995.

[18] J. RANKA, R. SCHIRMER et A. GAETA, "Observation of pulse splitting in nonlinear dispersive media", *Phys. Rev. Lett.*, vol. **77**, p. 3783, 1996.

[19] R. LANGE, G. GRILLON, J.-F. RIPOCHE, M. FRANCO, B. LAMOUROUX, B. PRADE, A. MYSYROWICZ, E. NIBBERING et A. CHIRON, "Anomalous long-range propagation of femtosecond laser pulses through air: moving focus or pulse self-guiding?", *Opt. Lett.*, vol. **23**, p. 120, 1998.

[20] J. MANASSAH, P. BALDECK et R. ALFANO, "Self-focusing, self-phase modulation and diffraction in bulk homogeneous material", *Opt. Lett.*, vol. **13**, p. 1090, 1988.

[21] J. MARBURGER, "Self-focusing: theory", *Prog. Quant. Elec.*, vol. **4**, p. 35, 1975.

[22] H. EICHLER, P. GÜNTER et D. POHL, *Laser-induced dynamic gratings*, Springer-Verlag, 1986.

[23] D. STRICKLAND et G. MOUROU, "Compression of amplified chirped optical pulses", *Opt. Comm.*, vol. **56**, p. 219, 1985.

[24] M. SHEIK-BAHAE, "Femtosecond kerr-lens autocorrelation", *Opt. Lett.*, vol. **22**, p. 399, 1997.

[25] Y. KOBAYASHI, T. SEKIKAWA, Y. NABEKAWA et S. WATANABE, "27-fs extreme ultraviolet pulse generation by high-order harmonics", *Opt. Lett.*, vol. **23**, p. 64, 1998.

[26] J. RANKA, A. GAETA, A. BALTUSKA, M. PSCHENICHNIKOV et D. WIERSMA, "Autocorrelation measurement of 6-fs pulses based on the two-photon-induced photocurrent in a GaAsP photodiode", *Opt. Lett.*, vol. **22**, p. 1344, 1997.

[27] S. PREIN, S. DIDDAMS et J.-C. DIELS, "Complete characterization of femtosecond pulses using an all-electronic detector", *Opt. Comm.*, vol. **123**, p. 567, 1996.

[28] K. NAGANUMA, K. MOGI et H. YAMADA, "General method for ultrashort light pulses measurement", *IEEE J. Quant. Elec.*, vol. **25**, p. 1225, 1989.

[29] C. YAN et J.-C. DIELS, "Amplitude and phase recording of ultrashort pulses", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. **8**, p. 1259, 1991.

[30] J. CHILLA et O. MARTINEZ, "Direct determination of the amplitude and phase of femtosecond light pulses", *Opt. Lett.*, vol. **16**, p. 39, 1991.

[31] J. PAYE, M. RAMASWAMY, J. FUJIMOTO et E. IPPEN, "Measurement of the amplitude and phase of ultrashort light pulses from spectrally resolved autocorrelation", *Opt. Lett.*, vol. **18**, p. 1946, 1993.

[32] J. PEATROSS et A. RUNDQUIST, "Temporal decorrelation of short laser pulses", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. **15**, p. 216, 1998.

[33] D. KANE et R. TREBINO, "Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating", *IEEE J. Quant. Elec.*, vol. **29**, p. 571, 1993.

[34] R. TREBINO, K. DELONG, D. FITTINGHOFF, J. SWEETSER, M. KRUMBÜGEL, B. RICHMAN et D. KANE, "Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating", *Rev. Sci. Inst.*, vol. **68**, p. 3277, 1997.

[35] J.-K. RHEE, T. SONOWSKI, A.-C. THIEN et T. NORRIS, "Real-time dispersion analyzer of femtosecond laser pulses with use of a spectrally and temporally resolved upconversion technique", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. **13**, p. 1780, 1996.

[36] K. DELONG, D. FITTINGHOFF, R. TREBINO, B. KOHLER et K. WILSON, "Pulse retrieval in frequency-resolved optical gating based on the method of generalized projections", *Opt. Lett.*, vol. **19**, p. 2152, 1994.

[37] K. CHU, J. HERITAGE, R. GRANT et W. WHITE, "Temporal interferometric measurement of femtosecond spectral phase", *Opt. Lett.*, vol. **21**, p. 1842, 1996.

[38] C. IACONIS et I. WALMSLEY, "Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses", *Opt. Lett.*, vol. **23**, p. 792, 1998.

[39] M. BECK, M. RAYMER, I. WALMSLEY et V. WONG, "Chronocyclic tomography for measuring the amplitude and phase structure of optical pulses", *Opt. Lett.*, vol. **18**, p. 2041, 1993.

[40] I. WALMSLEY et V. WONG, "Characterization of the electric field of ultrashort optical pulses", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. **13**, p. 2453, 1996.

[41] J.-K. GERCHBERG et T. SAXTON, "A practical algorithm for the determination of phase from an image and diffraction plane pictures", *Optik*, vol. **35**, p. 237, 1972.

[42] Y. BRUCK et L. SODIN, "On the ambiguity of the image reconstruction problem", *Opt. Comm.*, vol. **30**, p. 304, 1979.

[43] H.-S. ALBRECHT, P. HEIST, J. KLEINSCHMIDT et D. LAP, "Ultrashort beam-deflection method and its application for measuring the transient refractive index of materials", *Appl. Phys. B*, vol. **57**, p. 193, 1993.

[44] I. TANG, T. KRAUSS et F. WISE, "Sensitive measurement of nonlinear refraction and two-photon absorption by spectrally resolved two-beam coupling", *Opt. Lett.*, vol. **22**, p. 1077, 1997.

[45] R. DeSalvo, A. Said, D. Hagan, E. Van Stryland et M. Sheik-Bahae, "Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and n_2 in wide bandgap solids", *IEEE J. Quant. Elec.*, vol. **32**, p. 1324, 1996.

[46] A. Dogariu, T. Xia, D. Hagan, A. Said, E. Van Stryland et N. Bloembergen, "Purely refractive transient energy transfer by stimulated rayleigh-wing scattering", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. **14**, p. 796, 1997.

[47] A. Dogariu et D. Hagan, "Purely refractive energy transfer in dielectric media with chirped, 100-fs laser pulses," in *Quantum Electronics and Laser Science Conference (QELS'97)*, p. 52, article QTuF4.

[48] E. Treacy, "Optical pulse compression with diffraction gratings", *IEEE J. Quant. Elec.*, vol. **5**, p. 454, 1969.

[49] R. Fork, C. Brito Cruz, P. Becker et C. Shank, "Compression of optical pulses to 6 fs by using cubic phase compensation", *Opt. Lett.*, vol. **12**, p. 483, 1987.

[50] C. Le Blanc, G. Grillon, J.-P. Chambaret, A. Migus et A. Antonetti, "Compact and efficient multipass ti:sapphire system for femtosecond chirped-pulse amplification at the terawatt level", *Opt. Lett.*, vol. **16**, p. 140, 1993.

[51] J.-P. Chambaret, C. Le Blanc, G. Chériaux, P. Curley, G. Darpentigny, P. Rousseau, G. Hamoniaux, A. Antonetti et F. Salin, "Generation of 25-TW, 32 fs pulses at 10 Hz", *Opt. Lett.*, vol. **21**, p. 1921, 1996.

[52] G. Chériaux, *Influence des distorsions de phase sur le profil d'impulsions femtosecondes dans l'amplification à dérive de fréquence*, Thèse de doctorat, Université de Paris-sud, 1997.

[53] H. Kapteyn, M. Murnane, A. Szoke et R. Falcone, "Prepulse energy suppression for high-energy ultrashort pulses using self-induced plasma shuttering", *Opt. Lett.*, vol. **16**, p. 491, 1991.

[54] J. Itatani, J. Faure, M. Nantel, G. Mourou et S. Watanabe, "Suppression of the amplified spontaneous emission in chirped-pulse-amplification lasers by clean high-energy seed-pulse injection", *Opt. Comm.*, vol. **148**, p. 70, 1998.

[55] M. AMMOSOV, N. DELONE et V. KRAŸNOV, "Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field", *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, vol. **91**, p. 2008, 1986.

[56] H. MULLER, P. AGOSTINI et G. PETITE, "Multiphoton ionization," in *Atoms in intense laser fields*, M. GAVRILA, Ed. (1992), Academic Press.

[57] M. PERRY, A. SZOKE, O. LANDEN et E. CAMPBELL, "Non resonant multiphoton ionization of noble gases: theory and experiment", *Phys. Rev. Lett.*, vol. **60**, p. 1270, 1988.

[58] S. LE BLANC et R. SAUERBREY, "Spectral, temporal and spatial characteristics of plasma-induced spectral blue shifting and its application to femtosecond pulse measurement", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. **13**, p. 72, 1996.

[59] B. PENETRANTE, J. BARDSLEY, W. WOOD, C. SIDERS et M. DOWNER, "Ionization-induced frequency shifts in intense femtosecond laser pulses", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. **9**, p. 2032, 1992.

[60] B. RAU, C. SIDERS, S. LE BLANC, D. FISHER, M. DOWNER et T. TAJIMA, "Spectroscopy of short, intense, laser pulses due to gas ionisation effects", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. **14**, p. 643, 1997.

[61] S. RAE, "Ionization-induced defocusing of intense laser pulses in high-pressure gases", *Opt. Comm.*, vol. **97**, p. 25, 1993.

[62] S. LE BLANC et R. SAUERBREY, "Ultrashort pulse characterization using plasma-induced cross-phase modulation", *Opt. Comm.*, vol. **111**, p. 297, 1994.

[63] S. RAE, "Spectral blueshifting and spatial defocusing of intense laser pulses in dense gases", *Opt. Comm.*, vol. **104**, p. 330, 1994.

[64] W. WOOD, C. SIDERS et M. DOWNER, "Measurements of femtosecond ionization dynamics of atmospheric density gases by spectral blueshifting", *Phys. Rev. Lett.*, vol. **67**, p. 3523, 1991.

[65] E. NIBBERING, M. FRANCO, B. PRADE, G. GRILLON, C. LE BLANC et A. MYSYROWICZ, "Measurement of the nonlinear refractive index of transparent materials by spectral analysis after nonlinear propagation", *Opt. Comm.*, vol. **119**, p. 479, 1995.

[66] J. ETCHEPARE, G. GRILLON, J.-P. CHAMBARET, G. HAMONIAUX et A. ORSZAG, "Polarization selectivity in time-resolved transient phase grating", *Opt. Comm.*, vol. **63**, p. 329, 1987.

[67] D. MACMORROW, W. LOTSHAW et G. KENNEY-WALLACE, "Femtosecond optical kerr studies on the origin of the nonlinear responses in simple liquids", *IEEE J. Quant. Elec.*, vol. **24**, p. 443, 1988.

[68] M. SHEIK-BAHAE, A. SAID et E. VAN STRYLAND, "High sensitivity single-beam n_2 measurements", *Opt. Lett.*, vol. **14**, p. 955, 1989.

[69] M. SHEIK-BAHAE, A. SAID, T. WEI, D. HAGAN et E. VAN STRYLAND, "Sensitive measurements of optical nonlinearities using a single beam", *IEEE J. Quant. Elec.*, vol. **26**, p. 760, 1990.

[70] E. NIBBERING, G. GRILLON, M. FRANCO, B. PRADE et A. MYSYROWICZ, "Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N_2 and O_2 by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. **14**, p. 650, 1997.

[71] H. LEHMEIER, W. LEUPACHER et A. PENZKOFER, "Nonresonant third order hyperpolarizability of rare gases and N_2 determined by third harmonic generation", *Opt. Comm.*, vol. **56**, p. 67, 1985.

[72] J. HERITAGE, T. GUSTAFSON et C. LIN, "Observation of coherent transient birefringence in CS_2 vapor", *Phys. Rev. Lett.*, vol. **34**, p. 1299, 1975.

[73] C. LIN, J. HERITAGE, T. GUSTAFSON, R. CHIAO et J. MAC TAGUE, "Birefringence arising from the reorientation of the polarisabilty anisotropy of molecules in collisionless gases", *Phys. Rev. A*, vol. **13**, p. 813, 1976.

[74] M. MORGEN, W. PRICE, L. HUNZIKER, P. LUDOWISE, M. BLACKWELL et Y. CHEN, "Femtosecond raman-induced polarization spectroscopy studies of rotational coherence in O_2, N_2 and CO_2", *Chem. Phys. Lett.*, vol. **209**, p. 1, 1993.

[75] M. MORGEN, W. PRICE, P. LUDOWISE et Y. CHEN, "Tensor analysis of femtosecond raman induced polarization spectroscopy: application to the study of rotational coherence", *J. Chem. Phys.*, vol. **102**, p. 8780, 1995.

[76] R. DESALVO, D. HAGAN, M. SHEIK-BAHAE, G. STEGEMAN et E. VAN STRYLAND, "Self-focusing and self-defocusing by cascaded second-order effects in KTP", *Opt. Lett.*, vol. **17**, p. 28, 1992.

[77] R. DANIELIUS, P. DI TRAPANI, A. DUBIETIS, A. PISKARSKAS, D. PODENAS et G. BANFI, "Self-diffraction through cascaded second-order frequency-mixing effects in β-barium borate", *Opt. Lett.*, vol. **18**, p. 574, 1993.

[78] A. DUBIETIS, G. VALIULIS, R. DANIELIUS et A. PISKARSKAS, "Fundamental-frequency pulse compression through cascaded second-order processes in a type II phase-matched second-harmonic generator", *Opt. Lett.*, vol. **21**, p. 1262, 1996.

[79] M. KRUMBÜGEL, J. SWEETSER, D. FITTINGHOFF, K. DE LONG et R. TREBINO, "Ultrafast optical switching by use of fully phase-matched cascaded second-order nonlinearities in polarization-gate geometry", *Opt. Lett.*, vol. **22**, p. 245, 1997.

[80] A. BONVALET, *Spectroscopie infrarouge femtoseconde: étude, développement et applications*, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, 1997.

[81] M. THOMSON, J. DUDLEY, L. BARRY et J. HARVEY, "Complete pulse characterization at 1.5 μm using the Kerr nonlinearity in optical fibers," in *Conference on Lasers and Electro-opics (CLEO'98)*, p. 192, article CTuO6.

[82] J. ZHOU, G. TAFT, C. HUANG, M. MURNANE, H. KAPTEYN et I. CHRISTOV, "Pulse evolution in a broad-bandwidth ti:sapphire laser", *Opt. Lett.*, vol. **19**, p. 1149, 1994.

[83] A. STINGL, M. LENZNER, C. SPIELMANN, F. KAUSZ et R. SZIPÖCS, "Sub-10-fs mirror-dispersion-controlled ti:sapphire laser", *Opt. Lett.*, vol. **20**, p. 602, 1995.

[84] A. BALTUŠKA, Z. WEI, M. PSHENICHNIKOV et D. WIERSMA, "Optical pulse compression to 5 fs at a 1-MHz repetition rate", *Opt. Lett.*, vol. **22**, p. 102, 1997.

[85] M. NISOLI, S. DE SILVESTRI, O. SVELTO, R SZIPÖCS, K. FERENCZ, C. SPIELMANN, S. SARTANIA et F. KRAUSZ, "Compression of high-energy laser pulses below 5 fs", *Opt. Lett.*, vol. **22**, p. 522, 1997.

[86] A. L'HUILLIER, L.-A. LOMPRÉ, G. MAINFRAY et C. MANUS, "High-order harmonic generation in rare gases," in *Atoms in intense laser fields*, M. GAVRILA, Ed. (1992), Academic Press.

[87] C. SPIELMANN, N. BURNETT, S. SARTANIA, R. KOPPITSCH, M. SCHNÜRER, C. KAN, M. LENZNER, P. WOBRAUSCHEK et F. KRAUSZ, "Generation of coherent x-rays in the water window using 5-femtosecond laser pulses", *Science*, vol. **278**, p. 661, 1997.

[88] Z. CHANG, A. RUNDAQUIST, H. WANG, M. MURNANE et H. KAPTEYN, "Generation of coherent soft x-rays at 2.7 nm using high harmonics", *Phys. Rev. Lett.*, vol. **79**, p. 2967, 1997.

Table des figures

1.1 Spectres d'automodulation de phase après propagation non linéaire dans un centimètre de verre (BK7) 23
1.2 Influence de la dispersion de vitesse de groupe en présence ou non d'automodulation de phase 24
1.3 Interaction à deux ondes en polarisation x-z 30
1.4 Autodiffraction: vecteurs d'onde 33

2.1 Schéma de principe d'un compresseur 39
2.2 Fonction de Wigner et modulation de phase temporelle: rotation dans l'espace des phases (ω,t) 43
2.3 Ambiguïté de l'autocorrélation 47
2.4 Exemple numérique de spectrogramme contenant tous les spectres de modulation de phase induite 49
2.5 Spectrogramme: phase quadratique négative 49
2.6 Spectrogramme: phase quadratique positive 50
2.7 Spectrogramme: phase constante 50
2.8 Spectrogramme: phase quadratique positive (exemple expérimental) 51
2.9 Positions relatives de la pompe et de la sonde et variation du centre de gravité du spectre de la sonde en fonction du retard entre la pompe et la sonde . . . 52
2.10 Spectres typiques de modulation de phase induite 53
2.11 Schéma de l'algorithme de recherche de la phase 55
2.12 Représentations possibles des solutions 59

2.13 Influence de la valeur de q_{med} sur la convergence de l'algorithme 60
2.14 Influence de l'erreur sur q_{med} sur la convergence de l'algorithme 61
2.15 Influence des différentes sources de bruit 63
2.16 Montage expérimental pour l'acquisition en multi-coups 66
2.17 Influence de la bande passante des éléments optiques sur la dynamique d'une impulsion courte 67
2.18 Réflectance de miroirs aluminium et argent 68
2.19 Impulsions mesurées pour deux distances différentes entre les réseaux du compresseur 70
2.20 Différence de phase induite par l'écartement des réseaux du compresseur . . 71
2.21 Enveloppes temporelles et spectrales (salle verte) 72
2.22 Courbe de variation du centre de gravité pour une impulsion à 800 nanomètres (salle verte) 72
2.23 Spectrogrammes obtenus avec le laser 0.5 TW 73
2.24 Courbe de variation du centre de gravité pour une impulsion à 400 nanomètres (salle verte) 73
2.25 Second harmonique dans un cristal de BBO de 500 μm d'épaisseur 74
2.26 Enveloppes temporelles et spectrales (second harmonique de la salle verte) . 75
2.27 Enveloppes temporelles et spectrales du laser 25 TW (salle jaune) 76
2.28 Spectrogrammes obtenus avec le laser 25 TW 76
2.29 Courbe de variation du centre de gravité pour une impulsion à 400 nanomètres (salle jaune) 77
2.30 Second harmonique dans un cristal de BBO de 200 μm 78
2.31 Enveloppes temporelles et spectrales (second harmonique de la salle jaune) . 78
2.32 Chaine au kiloHertz: dérivée de l'autocorrélation et enveloppe spectrale . . . 79
2.33 Variation des centres de gravité et de l'impulsion retrouvée en fonction de la phase non linéaire maximum 80
2.34 Impulsion gaussienne avec une préimpulsion: amélioration du contraste par doublage 82

2.35 Comparaison des impulsions fondamentale et harmonique mesurées 82
2.36 Influence de la dispersion de vitesse de groupe subie par l'impulsion à 400 nm 84
2.37 Acquisition mono-coup: vue de dessus du dispositif expérimental 85
2.38 Spectrogrammes en acquisition mono-coup 86
2.39 Mesures en configuration mono-coup et résultats de l'algorithme de recherche de phase 87
2.40 Acquisition mono-coup: comparaison de deux tirs lasers 88

3.1 Ionisation par effet tunnel: potentiel dépendant d'un champ électrique statique 93
3.2 Ionisation de l'argon 95
3.3 Décalage vers le bleu: spectres de modulation de phase induite et d'automodulation de phase dans un plasma 97
3.4 Corrélations d'ordre 5, 10 et 15 d'une impulsion gaussienne d'une durée de 100 femtosecondes 99
3.5 Corrélation d'ordre 10 pour une double impulsion 100
3.6 Caractérisation d'impulsions de durée supérieure à 120 femtosecondes par modulation de phase induite dans un plasma 101
3.7 Caractérisation d'impulsions de 30 femtosecondes de durée par modulation de phase induite dans un plasma créé dans de l'air à pression atmosphérique . . 102
3.8 Dynamique de la mesure par modulation de phase induite dans un plasma . 103
3.9 Comparaison des impulsions retrouvées par modulation de phase induite dans de la silice et dans un plasma 104
3.10 Dynamique de l'ionisation tunnel en fonction de l'intensité crête 105
3.11 Variations du centre de gravité du spectre de la sonde à différentes énergies . 106
3.12 Comparaison de l'ionisation dans l'air et l'argon 107
3.13 Expérience pompe-sonde dans le CS_2 110
3.14 Spectre après propagation dans 5 mètres d'air 112
3.15 Fonction de réponse de l'air 115
3.16 Expérience pompe-sonde dans l'air 117
3.17 Décalage vers le rouge en fonction de la durée de l'impulsion 118

Liste des tableaux

1.1 Dispersion de vitesse de groupe et longueur de dispersion dans différents milieux 18

2.1 Configurations possibles pour le FROG 41
2.2 Cas tests: paramètres et performance de l'algorithme 57
2.3 Énergie par impulsion nécessaire pour obtenir q_{med}=1 62

3.1 Potentiels d'ionisation des gaz rares, de l'azote et de l'oxygène 96
3.2 Indice non linéaire de milieux à réponse instantanée 109
3.3 Indice non linéaire de quelques gaz rares à la pression atmosphérique 113
3.4 Anisotropie de la polarisabilité moléculaire 114
3.5 Constante de rotation pour différentes molécules linéaires 114
3.6 Force des transitions entre niveaux rotationnels pour l'azote et l'oxygène . . 116

Summary

This work has been devoted to the development of a method for the measurement of both the amplitude and phase of intense femtosecond laser pulses. Using a pump-probe setup, we perform an analysis of the changes in the spectrum of a pulse experiencing cross-phase modulation in an instantaneous Kerr-like medium. The extracted information changes with the complexity level of the analysis. Firstly, visual inspection of the group of spectra as a function of the delay between pump and probe gives an indication of the presence of a residual linear chirp of a given sign. The computation of the first order moment of the spectrum then yields the derivative of the autocorrelation and thus an estimation of the pulse duration. However, in order to get the amplitude and phase, the use of a phase-retrieval algorithm is needed.

Numerical and experimental studies show that this method is well suited for the characterization of amplified femtosecond laser chains. Indeed, the proposed algorithm is simple, converges for all tested cases and is robust. Moreover, this method was used to characterize near-infrared pulses ($\lambda = 800$ nm) with durations ranging from 30 to 300 femtoseconds. We also studied pulses produced through frequency doubling in a nonlinear crystal.

To conclude, we also performed spectrally resolved pump-probe experiments in different nonlinear media such as an ionised gas or a Kerr medium with both an instantaneous and a retarded response.

Key Words
Femtosecond pulses
Phase retrieval
Time profile
Pump-probe experiment
Cross-phase modulation

Résumé

Ce travail de thèse a porté sur la mise point d'une méthode permettant de mesurer à la fois en amplitude et phase des impulsions laser femtosecondes intenses. Pour cela, nous avons procédé à l'analyse des variations du spectre d'une impulsion au cours d'une expérience de modulation de phase croisée dans un milieu présentant une réponse de type Kerr instantanée à l'aide d'un dispositif de type pompe-sonde. Trois niveaux d'analyse permettent d'obtenir différentes informations sur les caractéristiques de l'impulsion. Premièrement, l'inspection visuelle de la nappe de spectres en fonction du retard entre la pompe et la sonde donne une indication de la présence ou non d'une phase quadratique résiduelle dont le signe est déterminé. Ensuite, le calcul du moment d'ordre un des spectres conduit à la dérivée de l'autocorrélation et donc à une estimation de la durée de l'impulsion à caractériser. Enfin, l'utilisation d'un algorithme de recherche de la phase est nécessaire afin d'obtenir l'amplitude et la phase.

Une étude numérique et expérimentale montre que cette méthode est bien adaptée à la caractérisation de chaînes laser femtosecondes amplifiées. En effet, l'algorithme utilisé est simple, robuste et convergent dans tous les cas que nous avons considérés. De plus, nous avons appliqué cette méthode dans le proche infrarouge ($\lambda = 800$ nm) à la mesure d'impulsions dont la durée est comprise entre 30 et 300 femtosecondes. Nous avons également étudié les impulsions produites par doublage de fréquences dans un cristal non linéaire.

Enfin, il a également été démontré que les expériences pompe-sonde résolues spectralement peuvent être réalisées en utilisant d'autres milieux non linéaires tels qu'un gaz ionisé ou un milieu Kerr présentant une réponse instantanée et une réponse retardée.

Mots clés

Impulsions femtosecondes

Mesure de phase

Profil temporel

Expérience pompe-sonde

Modulation de phase croisée