N° d'ordre : 42259









# Habilitation à Diriger les Recherches

Présentée par

Constance VALENTIN Chargée de Recherche au CNRS

# Optique linéaire et non-linéaire dans les gaz et les fibres optiques

Soutenue le 13 décembre 2016 devant la commission d'examen composée de :

Eric CONSTANT Emmanuel HUGONNOT Annie KLISNICK Marc DOUAY Arnaud MUSSOT Directeur de Recherche, ILM, Lyon Ingénieur de Recherche HDR, CEA/CESTA, Bordeaux Directrice de Recherche, ISMO, Orsay Professeur, Université Lille 1 Professeur, Université Lille 1 Rapporteur Rapporteur Rapporteur Examinateur Garant d'HDR

Université Lille 1 – Sciences et technologies Laboratoire de Physique des lasers, Atomes et Molécules, UMR CNRS 8523 Institut IRCICA, USR CNRS 3380 50 Avenue Halley, 59658 Villeneuve d'Ascq, France *Je remercie toutes les personnes qui ont contribué à ce travail, les collègues de tous les laboratoires dans lesquels j'ai travaillé, en particulier du Laboratoire d'Optique Appliquée à Palaiseau et du Laboratoire de Physique des Lasers Atomes et Molécules à Lille.* 

Je dédie ce travail à mon père, Pierre Valentin, qui m'a donné le goût de la physique depuis mon plus jeune âge et qui m'a toujours encouragée à suivre sa voie.

*Je souhaite à mes neveux, Robin Masurel et Yohann Fretel, la joie de perpétuer le goût de la recherche en physique.* 

# Table des matières

Chapitre 1 : Introduction générale Références	9 12
Chapitre 2 : Comprendre la génération des sources XUV dans les gaz	17
2.1 Introduction	17
2.2 Propagation d'impulsions laser ultra-intenses dans un gaz	17
2.2.1 Introduction	17
2.2.2 L'ionisation et ses effets sur la propagation des impulsions laser	18
2.2.3 Propagation dans un milieu partiellement ionise	18 20
2.3 Théorie de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz	20 21
2.3.1 Introduction	21
2.3.2 Aspets microscopiques : Dipôle atomique	21
2.3.3 Aspects macroscopiques : Cartes d'accord de phase et absorption	21
2.3.4 Conclusion	21
2.4 Vers l'optimisation	21
Références	23
Chapitre 3 : Développement et optimisation de la source harmonique	27
3.1 Introduction	27
3.2. Etat de l'art : les avantages de la géométrie longue focale	27
3.3 Augmentation du nombre de photons dans le domaine XUV	29
3.3.1 Introduction	29
<u>3.2.2 Harmoniques élevées avec une intensité faible : réabsorption des harmoniques</u>	20
<u>3 3 3 Amélioration de la source aux longueurs d'onde plus courtes</u>	29
3.3.4 Injection d'harmonique pour le laser X OFL : le plasma comme milieu	51
amplificateur	33
3.3.5 Contrôle optimal	34
3.3.5.1 Contrôle de la phase spectrale du laser infrarouge	
3.3.5.2 Optimisation par contrôle actif de la phase spectrale des harmoniques	
3.3.5.3 Contrôle actif de la phase spatiale pour l'optimisation de la ligne harmonique	
3.3.6 Conclusion	37
3.4 Optimisation de la focalisation des harmoniques d'ordre élevé	37
<u>3.4.1 Introduction</u>	37
<u>3.4.2 Focalisation par un miroir torique</u>	37
3.4.3 Focalisation par un miroir parabolique hors axe	38
<u>3.4.4 Controle du front d'onde narmonique par miroir deformable</u>	39 40
<u>5.4.5 COnclusion</u> 3.5 Expérience d'application de la source harmonique à plus courte longuour d'apple	40 <b>4</b> 0
3.5 Experience a application de la source narmonique à plus courte longueur à onde 3.6 Conclusion	40 47
Références	43

Chapitre 4 : Génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les fibres kagomé	49
4.1 Introduction	49
4.2 Intérêt de la fibre kagomé pour le guidage	49
4.3 Simulations : accord de phase des harmoniques	50
<u>4.3.1 Hypothèses de calcul</u>	50
<u>4.3.2 Accord de phase</u>	51
<u>4.3.3 Première étape : résultats pour les harmoniques basses (H3) et validation du</u>	
modèle	53
<u>4.3.4 Deuxième étape : harmoniques d'ordre plus élevé</u>	54
4.3.5 Exemple de simulation pour l'harmonique 25 generee dans l'Argon	56
4.4 Ameliorations	58
4.5 Conclusions et Perspectives	59
References	00
Chapitre 5 : Fibres à mode plat	63
5.1 Introduction	63
5.2 Contexte et état de l'art	63
5.3 Principe de fonctionnement de la fibre à mode plat	64
5.4 Fibre microstructurée monomode à mode plat	65
5.4.1 Contraintes de fabrication	65
5.4.2 Réalisations expérimentales et caractérisations	68
5.5 Effilage de la fibre	70
<u>5.5.1 Intérêt de l'effilage</u>	70
5.5.2 Controle du profil spatial	70
5.6 Fibre a maintien de polarisation	72
5.6.1 Simulation des contraintes et des modes guides	73
5.5.2 <u>Augmentation de la biréfringence</u>	75
5.7 Augmentation de l'aire effective du mode fondamental anlati	/6
5.7.1 Introduction	/ð 70
5.7.2 Résonateurs dans une gaine à symétrie hexagonale	70 78
5.7.3 Hétérostructuration dans une gaine à symétrie cylindrique	70 79
5.7.4 Réalisations expérimentales de fibres à grand cœur	80
5.8 Conclusion et perspectives	81
Références	83
Chapitre 6 : Conclusion générale et perspectives	87
6.1 Conclusion générale	87
6.2 Persepctives	89
6.2.1 Harmoniques haute cadence	89
6.2.2 Impulsion attoseconde unique	89
Références	91

Annexe 1 : Propagation d'un champ intense dans un gaz rare	93
A1.1 Introduction	93
A1.2 L'ionisation et ses effets sur la propagation des impulsions laser	93
A1.3 Propagation dans un milieu ionisé	94
A1.3.1 Hypothèses	94
A1.3.2 Equations de dispersion	95
A1.3.3 Equations de propagation	95
A1.3.4 Méthode numérique de résolution des équations	96
A1.4 Présentation du code 3D pour la propagation des harmoniques d'ordre élevé	97
<u>A1.4.1 Introduction – position du problème : pourquoi 3D</u>	97
A1.4.2 Equation de propagation	98
A1.4.3 Maillage et développements numériques	99
A1.4.4 Résultats préliminaires	99
A1.5 Conclusion	100
Références	102
Annexe 2 : Théorie des harmoniques d'ordre élevé	103
A2.1 Introduction	103
A2.2 Rappels sur le modèle à 3 étapes et le modèle de Lewenstein : chemins quantiques	103
A2.3 Calcul du dipôle atomique par résolution TDSE 1D	104
A2.4 Calcul de la phase du dipôle : désintégration quantique	105
A2.5 Aspects macroscopiques : Cartes d'accord de phase et absorption	107
A2.5.1 Cartes d'accord de phase	107
A2.5.1 Absorption dans le domaine XUV	108
A2.6 Conclusion	110
Références	111
Annexe 3 : Couplage d'une fibre Mode Plat avec la fibre NKT	113
A3.1 Introduction	113
A3.2 Définitions	113
A3.3 Taux de couplage	114
A3.4 Couplage avec le mode fondamental simulé par COMSOL Multiphysics	115
A3.5 Conclusion	117
Références	118
Annexe 4 : Curriculum Vitae détaillé	119
Publications	127

## **Chapitre 1: Introduction générale**

Ce manuscrit est le reflet de mes recherches réalisées entre 2001 jusqu'à aujourd'hui. J'ai fait le choix de garder les thèmes qui peuvent interagir : propagation linéaire et non linéaire dans un milieu matériel (gazeux ou solide), interaction laser-matière, etc. Toute la recherche abordée avant et après est bien sûr importante mais il m'est difficile de l'inclure ici. Néanmoins elle n'est pas non plus complètement déconnectée de la thématique des fibres optiques car plusieurs équipes de part le monde sont intéressées par les sources XUV à forte cadence (> kHz), fiables pour las étalons secondaires de fréquences [1,2]. Ce cheminement me permettra aussi d'aborder des projets de recherche qui me tiennent à cœur mais que je n'ai pas pu réaliser jusqu'à maintenant.

Vous vous demandez ce qui a motivé mes différentes mutations avec changement de thématique. Quand j'ai débuté ma thèse au Laboratoire Aimé Cotton (LAC) sous la direction de Pierre Pillet, l'idée de refroidir des atomes par laser me semblait farfelue et complètement contreintuitive. Bien sûr, j'étais comme le commun des mortels qui prêtent au laser des propriétés de chauffage plutôt que de refroidissement. Ce sujet venait à peine de débuter au laboratoire et nous étions en concurrence directe avec l'équipe de G. Cohen-Tannoudji au Laboratoire Kastler-Brossel. Les trois années de thèse m'ont permis de parfaire mes connaissances sur l'interaction atome-laser et les subtilités du couplage entre états internes (états quantiques des atomes) et états externes (vitesse ou quantité de mouvement des atomes) qui en découlent [3]. Deux expériences de manipulation d'atomes de Césium par laser y sont décrites : la première concerne les mélasses mouvantes [4] qui seront utilisées ensuite pour réaliser un jet continu d'atomes froids [5,6] et la seconde concerne le transfert adiabatique de population [7], prémices de nouvelles expériences d'interférométrie avec des atomes froids [8]. Après ma thèse, quelques mois de post-doc et une année d'ATER, je me suis insérée dans le Laboratoire de l'Horloge Atomique (LHA), laboratoire propre du CNRS (si si ça existait encore), sur un poste de Chargée de Recherche en section 8 dans l'équipe de Noël Dimarcq. L'application première du refroidissement d'atomes de césium par laser est naturellement les horloges atomiques, la définition de la seconde étant basée sur la transition hyperfine entre les deux niveaux fondamentaux de l'atome de Césium neutre. Avec des atomes froids, soit on augmente le temps d'interrogation micro-onde des atomes de césium et donc la stabilité de l'horloge [9,10], soit on miniaturise les horloges tout en gardant une bonne stabilité [11,12]. C'est la deuxième solution que nous avons suivie au LHA, puis plus tard au Laboratoire des SYstèmes de Références Temps-Espace (SYRTE). L'intérêt de ces horloges est qu'elles peuvent être embarquées dans des satellites pour la synchronisation des signaux [13].

Mais alors pourquoi avoir quitté ce laboratoire ? Pour des raisons financières (plus de contrat avec le Bureau National de Métrologie), l'expérience de jet continu d'atomes froids a dû être arrêtée, ce qui m'a obligée à me recentrer sur les horloges miniatures et leurs propriétés métrologiques. Comme j'étais plus intéressée par le domaine de l'interaction laser avec les atomes plutôt que les simulations sur les propriétés métrologiques de ces horloges, j'ai décidé de changer de laboratoire par voie de mutation. Je me suis tournée vers Philippe Zeitoun qui travaillait à l'époque au LSAI sur le laser X dans l'équipe de Pierre Jaeglé. Il m'a conseillée d'aller au Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA) dans l'équipe de Philippe Balcou pour travailler sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG en anglais) et le laser X par ionisation par le champ (OFI en anglais). Ces deux thématiques m'ont beaucoup plu car elles font intervenir l'interaction d'un champ ultra-intense et ultracourt avec des atomes. Elles permettent d'obtenir une source cohérente dans le domaine XUV (1-100 nm) [14]. D'autres sources de rayonnement XUV cohérentes et basées sur l'interaction plasma-laser étaient aussi étudiées à l'époque dans d'autres laboratoires telles que les lasers X sur cible solide [15]. Le LOA fait partie de LaserLab [16], c'est à dire qu'il doit fournir à la communauté européenne, voire internationale, des sources laser ultra-intenses et ultra-courtes ou de rayonnement secondaire (XUV, X, électrons, protons, neutrons) pour les applications. Ce consortium de laboratoires européens lui permet d'obtenir des fonds de la part de l'Europe, en fonction du nombre d'équipes qui viennent utiliser ces sources.

Pendant les dix années passées au LOA, j'ai tout particulièrement participé au développement de la source HHG [17-20] afin que des équipes nationales et internationales puissent l'utiliser pour des applications. L'optimisation de la source passe bien sûr par la compréhension des phénomènes observés : je me consacrais aux simulations de ces phénomènes. Le pompage de différents milieux (plasma, électrons) par des harmoniques d'ordre élevé a fortement amélioré les caractéristiques de sources XUV plus intenses [21,22] et c'est vers cette solution que s'est tournée la communauté des lasers à électrons libres émettant dans le domaine XUV [23]. De part la spécificité de ce laboratoire dans lequel de multiples collaborations sont encouragées, j'ai participé à un certain nombre d'articles en tant que "fournisseuse de photons XUV" en plus des développements de simulation. J'étais aussi associée à la thématique laser X-OFI [24] mais j'étais plus impliquée sur la thématique HHG. J'ai aussi participé à plusieurs GDR au niveau national (SAXO et AppliX) et à deux contrats européens sur les impulsions attosecondes et leurs applications (ATTO et XTRA). Les expériences d'application de la source HHG sont multiples : génération d'impulsions attosecondes [25,26], photoionisation IR-XUV d'atomes de gaz rare [27], études des phonons optiques dans le Bismuth [28], ablation XUV [29], magnétisation transitoire [30]. Toutes ces applications demandent des spécificités que seules les harmoniques d'ordre élevé peuvent fournir : impulsion ultra-courte (1 fs, voire attoseconde) [25,26], cohérences temporelle et spatiale [31], focalisation et qualité de front d'onde [32-34], contrôle de la polarisation [35]. Par contre, vu que le laser de génération est de cadence faible (kHz), notre source n'est pas adaptée pour les expériences en coïncidence [27] ou la génération de peigne de fréquence pour la métrologie des fréquences [1,2] par exemple. Pour améliorer ce point, il serait souhaitable d'utiliser un laser fibré de plus grande cadence au lieu d'un laser Ti:Sa [36]. L'amélioration de ces sources sont en perpétuellement en développement et les applications qui en découlent de plus en plus nombreuses. Il reste néanmoins quelques points faibles qu'il serait intéressant d'améliorer : la cadence et la fiabilisation des sources HHG et le contrôle de la polarisation [37]. Les chapitres 2 et 3 (avec les annexes 1 et 2) regroupent une partie des résultats obtenus pour cette thématique.

Mon deuxième changement thématique s'est produit en 2010 suite à la mutation de mon conjoint à Lille. J'ai donc sollicité le laboratoire de Physique des Lasers, Atomes et Molécules. J'ai choisi de venir dans l'équipe Photonique dirigée à l'époque par Mohamed Bouazaoui. Pour faire le lien entre mes recherches et ma nouvelle thématique, je me suis intéressée à la génération des harmoniques directement dans une fibre creuse [38] ou une fibre Kagomé [39]. En 2009, l'équipe d'U. Keller en collaboration avec F. Benabid n'avait obtenu qu'une très faible efficacité de conversion entre la pompe à 800 nm et les harmoniques (de l'ordre de 10<sup>-9</sup>). Plusieurs facteurs peuvent limiter cette efficacité de conversion : la fibre creuse était multimode et l'accord de phase n'était pas optimisé. C'est pourquoi je présenterai, dans le chapitre 4, quelques travaux préliminaires sur l'accord de phase des harmoniques générées dans une fibre creuse. Malheureusement les expériences, prévues au départ au Centre Lasers Intenses et Applications (CELIA), qui dispose d'une source fibrée ultra-intense [36], n'ont pas pu être menées faute de temps laser. Cette étape importante permettrait de proposer une autre voix pour la fiabilisation de la source XUV à plus haute cadence, pouvant concurrencer les sources générées directement dans la cavité [1,2].

Dès mon arrivée, Arnaud Mussot m'a tout de suite impliquée dans la collaboration avec Emmanuel Hugonnot du CEA/CESTA (Bordeaux) sur les fibres à mode plat, décrites très en détail dans le chapitre 5. Pourquoi ces fibres sont-elles intéressantes ? Pour plusieurs applications (usinage laser, médical et laser de puissances), il est obligatoire d'avoir le profil d'intensité en sortie de fibre le plus homogène possible. Nous avons montré que d'utiliser une fibre monomode délivrant un mode plat était le meilleur moyen d'y parvenir [40]. Cette thématique est très soutenue au sein du laboratoire car elle fait partie de l'Equipex FLUX (Fibres optiques pour les hauts flux) [41] et du laboratoire commun SYLFE (Systèmes Lasers Fibrés Energétiques) [42]. Cette thématique a donné lieu à différentes thèses : Pierre Calvet soutenue en 2014 [43] pour laquelle j'étais invitée dans le jury de thèse et Pierre Gouriou [44] dont je suis la co-encadrante. Une étudiante de master 2 a poursuivi les travaux menés par ces deux doctorants de février à juin 2016. J'ai aussi participé à diverses autres applications des fibres : mélange à quatre ondes dans les fibres hybrides à Bande Interdite Photonique [45], décomposition modale [46]. D'autres études impliquant le CEA/CESTA sont aussi en cours comme le mélange à quatre ondes dans les fibres à maintien de polarisation (PM) et la génération de lumière parasite lors de l'amplification dans la fibre dopée Yb utilisée dans la chaîne pilote de laser LMJ [47].

Finalement je suis aussi impliquée dans le projet TowerBragg qui vise à fabriquer des réseaux de Bragg fibrés directement sur la tour de fibrage. Il repose sur l'expertise de l'équipe Photonique et sur la centrale de technologie FiberTech, implantée à l'IRCICA. Pour l'instant, une seule équipe dans le monde (IPHT, Allemagne) élabore ce type de réseaux mais leur réflectivité est très faible [48]. Nous allons proposer d'autres méthodes qui visent à fabriquer des réseaux de plus forte réflectivité, fonctionnant à haute température [49] et présentant une plus grande fiabilité mécanique. Dans le cadre de la collaboration avec l'équipe de Guillaume Laffont du LCAE du CEA List, je co-encadre un doctorant Patrick Bulot avec Marc Douay, qui est maintenant le directeur du laboratoire PhLAM. Je ne rentrerai pas non plus dans les détails de cette thématique, qui vient juste de débuter, par souci de cohérence.

#### Références

- [1] C. Gohle et al., A frequency comb in the extreme ultraviolet, Nature 436, 234-237 (2005)
- [2] R. Jason Jones et al., Phase-Coherent Frequency Combs in the Vacuum Ultraviolet via High-Harmonic Generation inside a Femtosecond Enhancement Cavity, Phys. Rev. Lett. 94, 193201 (2005)
- [3] Constance Valentin, Manipulations non-cohérente et cohérente d'un jet atomique de césium par laser : mélasse optique dans un champ magnétique et transfert adiabatique de populations, Université Paris 11 (1994)
- [4] C. Valentin, et al., One dimension sub-Doppler molasses in presence of static magnetic field, Europhys. Lett. **17**, 133 (1992)
- [5] S. Weyers *et al.*, A continuous beam of cold cesium atoms extracted from a two-dimensional magneto-optical trap, Optics Commun. **143**, 30 (1997)
- [6] P. Berthoud *et al.*, *Bright*, *slow*, *and continuous beam of laser-cooled cesium atoms.*, Phys. Rev. A **60**, R424 (1999); C. Valentin *et al.*, *Numerical simulations of atomic behaviour for several configurations of cold cesium atoms.*, Proc. Joint Meeting of the 13th European Forum on Time and Frequency and the IEEE International Frequency Control Symposium 1999, pp 100-103 (1999)
- [7] P. Pillet et al., Adiabatic population transfer in a multilevel system, Phys. Rev. A 48, 845 (1993)
- [8] Atom Interferometry, ed. P. Berman, Academic Press (1997)
- [9] A. Clairon *et al.*, *A Cesium Fountain Frequency Standard: Preliminary Results*, IEEE Trans. Instrum. Meas. **44**, 128 (1995)
- [10] A. Joyet *et al.*, *Continuous Fountain CS Standard: Stability and Accuracy Issues.*, "Frequency standards and metrology", Proceedings of the 6<sup>th</sup> Symposium, St. Andrews, Scotland, pp. 273-280, World Scientific (2002)
- [11] C. Valentin *et al.*, *Microwave Interrogation of Cesium Atoms Cooled in Isotropic Light*, IEEE Trans. Instrum. Meas. **50**, 1224 (2001)
- [12] E. Guillot *et al.*, *HORACE: Atomic clock with cold atoms in a cell.*, Proc. Joint Meeting of the European Frequency and Time Forum and the IEEE International Frequency Control Symposium 1999, vol. 1, pp 81-84 (1999)
- [13] F.X. Esnault *et al.*, *HORACE: A compact cold atom clock for Galileo*, Advances in Space Research **47**, 854 (2011)
- [14] P. Jaeglé, *Coherent Sources of XUV Radiation: Soft X-ray Lasers and High Harmonic Generation*, Spinger Series in Optical Sciences (2006)
- [15] A. Klisnick, P. Zeitoun, D. Ros, A. Carillon, P. Fourcade, S. Hubert, G. Jamelot, *et al.*, *Transient pumping of a Ni-like Ag x-ray laser with a subpicosecond pump pulse in a traveling-wave irradiation geometry*, J. Opt. Soc. Am. B **17** (6), 1093 (2000)

#### [16] http://www.laserlab-europe.net/

- [17] Sophie Kazamias-Moucan, Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordres élevés pour l'optique non-linéaire dans l'extrême UV. Ecole Polytechnique (2003). S. Kazamias et al., Global Optimization of High Harmonic Generation, Phys. Rev. Lett. 90, 193901 (2003); S. Kazamias et al., Optimization of the focused flux of high harmonics, Eur. Phys. J. D 26, 47 (2003)
- [18] C. Valentin *et al.*, *Anomalous high-order harmonic generation*, Journal of Physics B: Atomic Molecular and Optical Physics **37**, pp 2661-2675 (2004)
- [19] O. Boyko et al., Systematic study of high harmonic control by temporal pulse shaping of laser pulses: major mechanisms of optimization, Phys. Rev. A 76, 063811 (2007); Boyko O. et al., Spectral tailoring of high harmonic generation by adaptative methods, Laser Physics 15, pp 616 - 619 (2005)
- [20] G. Lambert et al., An optimized kHz two-colour high harmonic source for seeding free-electron lasers and plasma-based soft x-ray lasers., New J. Phys. 11, 083033 (2009); G. Lambert et al., Aberration-free high-harmonic source generated with a two-colour field., Eur. Phys. Lett. 89, 24001 (2010)
- [21] Ph. Zeitoun et al., A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam., Nature 431, pp 426-429 (2004); F. Tissandier et al., Observation of spectral gain narrowing in a high-order harmonic seeded soft-x-ray amplifier., Phys. Rev. A 81, 063833 (2010)
- [22] G. Lambert et al., Injection of harmonics generated in gas in a free-electron laser providing intense and coherent extreme-ultraviolet light., Nat. Phys. 4, 296 (2008)
- [23] T. Maltezopoulos *et al.*, *A high-harmonic generation source for seeding a free-electron laser at 38 nm*, Appl. Phys. B **115**, 45 (2014)
- [24] S. Sebban *et al.*, *Investigations of collisionnaly pumped optical field ionisation soft-x-ray lasers*, J. Opt. Soc.Am. B **20**, 195-202 (2003); S. Sebban *et al.*, *Demonstration of a Ni-like Kr optical-field-ionization collisional soft x-ray at 32.8 nm.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 253901 (2002)
- [25] P. Johnsson et al., Attosecond Electron Wave Packet Dynamics in Strong Laser Fields, Phys. Rev. Lett. **95**, 013001 (2005)
- [26] A.-S. Morlens *et al.*, *Compression of attosecond harmonic pulses by extreme-ultraviolet chirped mirrors*, Opt. Lett. **30**, 1554 (2005)
- [27] O. Guyétand *et al.*, *Multicolour above-threshold ionization of helium: quantum interference effects in angular distributions*, Journal of Physics B: Atomic Molecular and Optical Physics **38**, L357 (2005)
- [28] E. Papalazarou *et al.*, *Probing coherently excited optical phonons by extreme ultraviolet radiation with femtosecond time resolution*, Appl. Phys. Lett. **93**, 041114 (2008)
- [29] J. Chalupský et al., Non-thermal desorption/ablation of molecular solids induced by ultrashort soft x-ray pulses., Optics Express 17, 208 (2009)

- [30] B. Vodungbo *et al.*, *Laser-induced ultrafast demagnetization in the presence of a nanoscale magnetic domain network*, Nature Comm. **3**, 1 (2012)
- [31] A.-S. Morlens et al., Submicrometer digital in-line holographic microscopy at 32 nm with high-order harmonic, Opt. Lett. **31**, 3095 (2006)
- [32] C. Valentin *et al.*, *Imaging and quality assessment of high-harmonic focal spots*, Opt. Lett. **28**, 1049 (2003)
- [33] C. Valentin *et al.*, *High-order harmonic wave fronts generated with controlled astigmatic infrared laser.*, J. Opt. Soc. Am. **B25**, B161 (2008)
- [34] J. Gautier et al., Optimization of the wave-front of high order harmonics., Eur. Phys. J. D 48, 459 (2008)
- [35] B. Vodungbo *et al.*, *Polarization control of high order harmonics in the EUV photon energy range*, Optics Express **19**, 4346 (2011)
- [36] A. Cabasse et al., Optimization and phase matching of fiber-laser-driven high-order harmonic generation at high repetition rate, Opt. Lett. 37, 4618 (2012); J. Boullet et al., High-order harmonic generation at a megahertz-level repetition rate directly driven by an ytterbium-dopedfiber chirped-pulse amplification system, Opt. Lett. 34, 1489 (2009)
- [37] G. Lambert et al., Towards enabling femtosecond helicity-dependent spectroscopy with highharmonic source, Nat. Commun. **6**, 1 (2015); O. Kfir et al., Generation of bright phasematched circularly-polarized extreme ultraviolet high harmonics, Nat. Phot. **9**, 99 (2015)
- [38] O.H. Heckl *et al.*, *High harmonic generation in a gas-filled hollow-core photonic crystal fiber*, Appl. Phys. B **97**, 369 (2009)
- [39] F. Couny *et al.*, *Large pitch kagome-structured hollow-core photonic crystal fiber*, Opt. Lett. **31**, 3574 (2006)
- [40] C.Valentin et al., Top-hat beam output of a single-mode microstructured optical fiber: Impact of core index depression., Optics Express 21, 23250 (2013); P. Calvet et al., Top-hat beam output with 100 μJ temporally shaped narrow-bandwidth nanosecond pulses from a linearly polarized all-fiber system., Opt. Lett. 39, 4780 (2014)
- [41] http://flux.univ-lille1.fr/index.php/fr/
- [42] http://www.jinnove.com/Actualites/Creation-du-laboratoire-de-recherche-SYLFE
- [43] Pierre Calvet, Mise en forme spatiale dans une fibre optique microstructurée pour la réalisation d'amplificateurs lasers fibrés pour les pilotes des lasers de puissance, Thèse de doctorat de l'Université de Lille 1 (2014)
- [44] P. Gouriou *et al.*, *Polarization maintaining single-mode fiber delivering a flat top intensity profile.*, Opt. Express **23**, 32496 (2015)
- [45] B. Sévigny *et al.*, Four-wave mixing stability in hybrid photonic crystal fibers with two zerodispersion wavelengths., Optics Express **21**, 30859 (2013)

- [46] B. Sévigny et al., Advanced S<sup>2</sup> Imaging: Application of Multivariate Statistical Analysis to Spatially and Spectrally Resolved Datasets, Jour. Lightwave Techno. **32**, 4004 (2014)
- [47] Laure Lago, *Amplification fibrée de haute énergie pour les lasers de puissance*, Thèse de doctorat de l'Université de Lille 1, ch. 3.3 (2011)
- [48] M. Rothhardt *et al.*, *High mechanical strength single-pulse draw tower gratings*, Proc. of SPIE Vol. **5579**, 127 (2004)
- [49] G. Laffont et al., Multiplexed regenerated fiber Bragg gratings for high-temperature measurement., Meas. Sci. and Technol. 24, 094010 (2013); G. Laffont et al., 9000 hours-long high temperature annealing of regenerated Fiber Bragg Gratings., Proc. of SPIE Vol. 8794, 87941X (2013)

# Chapitre 2 : Comprendre la génération des sources XUV dans les gaz

# 2.1 Introduction

Ce chapitre est primordial pour comprendre les phénomènes physiques entrant en jeu pour la génération de photons XUV dans les gaz. Il me permet de présenter des résultats qui ne sont pas forcément mis en avant par des pulications prestigieuses.

Il faut bien définir ce qu'est le domaine spectral qui nous intéresse : pour une longueur d'onde entre 1 et 100 nm, nous allons considérer que notre source est XUV. Les sources que je présenterai sont obtenues par interaction d'un laser ultra-intense (densité de puissance entre 10<sup>14</sup> et 10<sup>17</sup> W/cm<sup>2</sup>) avec un gaz rare en cellule.

Bien sûr, il ne suffit pas de comprendre les mécanismes mis en jeu dans la propagation, il faut aussi décrire l'interaction du champ intense avec le gaz. Je me limiterai au cas de la génération d'harmoniques d'ordre élevé bien que j'aie aussi contribué à l'étude de la génération de laser X par ionisation du champ. Même si les manips laser X ont été réalisées au LOA, les développements théoriques, bien plus complexes, ont été réalisés au Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas (LPGP) à Orsay.

Je vais donc dans un premier temps décrire les résultats des expériences et des simulations datant du début des années 2000 et pourquoi ces résultats sont toujours d'actualité dans l'étude de la propagation non linéaire dans les milieux matériels. Dans un deuxième temps, je donnerai les éléments les plus importants qui permettront de comprendre les expériences réalisées pour améliorer la source XUV basée sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

#### 2.2 Propagation d'impulsions laser ultra-intenses dans un gaz

L'interaction des impulsions laser ultra-intenses et ultra-courtes avec des atomes donnent lieu à toute une panoplie d'effets qui sont mis à profit pour différentes applications. Par exemple, on peut citer la filamentation [1] et le LIDAR [2] ou le marquage en volume dans la silice [3] et l'inscription de réseaux de Bragg fibrés [4], le supercontinuum dans l'eau [5] ou dans les fibres optiques [6], et finalement l'ionisation des gaz rares pour la génération d'harmoniques ou le laser X-OFI [7]. Nous allons nous intéresser à ces deux dernières applications pour lesquelles la densité de puissance est comprise entre 10<sup>14</sup> et 10<sup>17</sup> W/cm<sup>2</sup>. Avec ces densités de puissance, les électrons de la couche externe des atomes peuvent être ionisés directement par le champ par effet tunnel ou par suppression de barrière. Il s'ensuit des modifications transitoires de l'indice du milieu dans lequel se propage l'impulsion laser. Les effets sur l'impulsion laser sont bien connus : décalage vers le bleu, effet non-linéaire (effet Kerr) mais d'autres phénomènes apparaissent mais sont rarement détaillés dans la littérature. Au début des années 2000, beaucoup de publications concernaient la propagation dans l'air pour expliquer le phénomène de filamentation mais très peu concernaient les effets spatiotemporels de l'ionisation sur les impulsions lasers et sur le spectre. Avant mon arrivée au LOA, Frederik Weihe avait réalisé une expérience visant à étudier les effets de propagation d'un laser ultra-intense et ultra-court dans un gaz rare [8]. Je me suis alors investie dans les simulations permettant d'expliquer les résultats obtenus.

Cette partie regroupe les développements de simulation de la propagation d'un champ électrique laser dans un milieu gazeux, ionisé ou partiellement ionisé. La résolution des équations de Maxwell pour un milieu homogène et isotrope, avec un terme source permet d'obtenir une bonne description des résultats expérimentaux.

## 2.2.1 Introduction

L'interaction d'un champ laser intense avec un gaz conduit à une ionisation totale ou partielle du milieu gazeux. Les électrons libérés contribuent à modifier l'indice de réfraction, et donc la propagation du faisceau laser lui-même. Je décrirai dans un premier temps les effets de l'ionisation sur la propagation du champ. Je présenterai ensuite les expériences menées au laboratoire afin de mesurer ces effets. Les résultats du code de calcul seront ensuite comparés à des résultats expérimentaux pour des intensités de l'ordre de 10<sup>15</sup> à 10<sup>16</sup> W/cm<sup>2</sup>.

#### 2.2.2 L'ionisation et ses effets sur la propagation des impulsions laser

Pour des éclairements de l'ordre de 10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup> à 10<sup>17</sup> W/cm<sup>2</sup>, le champ électrique du laser est proche, voire supérieur au champ coulombien qui lie un électron de la couche externe au noyau. Par la suite, je ne considérerai que les atomes de gaz rares tels que l'Argon, Xénon, Krypton ou Néon, qui permettent de couvrir une très large bande spectrale (2-100 nm). Ces atomes présentent une couche électronique pleine ; ainsi, le potentiel de première ionisation est élevé (de 12.6 eV pour le Xénon à 21 eV pour le Néon). Nous verrons par la suite que ces gaz sont plus appropriés pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé, ainsi que pour le laser X OFI.

Comme nous le verrons dans la partie 2.2, la génération d'harmoniques d'ordre élevé n'est efficace que si les atomes sont peu ionisés. L'éclairement dans le gaz ne doit pas dépasser l'éclairement par suppression de barrière (cf Annexe 1). Par exemple, pour des atomes d'Argon, l'éclairement est de l'ordre de 1 à  $2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. En se basant sur les taux d'ionisation Ammosov-Delone-Krainov (ADK) [9], le taux d'ionisation est de l'ordre de quelques pourcents pour ces éclairements. Lors de la propagation de l'impulsion dans le milieu, le gaz s'ionise dès que le champ électrique correspondant le permet. La densité électronique dépend alors de l'espace et du temps. Non seulement les électrons libérés modifient la propagation du faisceau laser par effet de réfraction mais modifie aussi le spectre de l'impulsion laser par auto-modulation de phase. Des effets des électrons sur les impulsions harmoniques ont aussi été rapportés et expliqués [10].

En ce qui concerne le laser X OFI, les raies laser X étudiées sont celles produites par des ions Kr<sup>8+</sup> à 32,8 nm [11] ou Xe<sup>8+</sup> à 41,8 nm [12]. Ces ions sont chargés positivement 8 fois : ils sont obtenus par interaction avec le champ laser lui-même. Pour ioniser 8 fois, il faut alors un éclairement pouvant atteindre 10<sup>17</sup> W/cm<sup>2</sup>. Le nombre d'électrons libres dans le plasma est alors très important. Le gradient de densité électronique est encore plus marqué et les électrons agissent comme une lentille divergente pour le faisceau laser. Lors de la propagation, l'éclairement atteint n'est alors pas celui auquel on s'attend dans le vide et le point focal se retrouve alors en avant du plan focal théorique.

#### 2.2.3 Propagation dans un milieu partiellement ionisé

Le milieu gazeux étant homogène et isotrope, nous pouvons considérer que les grandeurs sont représentées par un scalaire. Nous supposerons que le champ électrique du faisceau laser se propage suivant l'axe z sous la forme d'une onde plane. Il peut par ailleurs être polarisé linéairement pour la génération d'harmoniques et circulairement pour le laser X. Par ailleurs les enveloppes temporelle et spatiale sont gaussiennes. Lors de la propagation, le milieu s'ionise, il faut alors tenir compte du courant de charge (dû au déplacement des électrons dans le plasma). Le champ électrique induit aussi une polarisation non-linaire, responsable de l'effet Kerr optique. Nous rappelons que pour des gaz monoatomiques, contrairement à l'air ou des matériaux tels que la silice pour les fibres optiques [6], seul l'effet Kerr instantané intervient.

L'indice de réfraction tient compte de la dispersion dans le milieu gazeux partiellement ionisé. La dispersion électronique est donnée par l'indice  $n_{elec}$  dans un plasma. Cet indice dépend de la densité d'électrons et de la fréquence du laser. La dispersion due aux atomes est proportionnelle au nombre d'atomes neutres lors du passage de l'impulsion et dépend de l'atome considéré. Enfin, nous devons aussi considérer la dispersion due à l'effet Kerr. Le développement du code est détaillé dans l'annexe I.

Le système laser utilisé est un laser Ti:Sa délivrant des impulsions centrées à 800 nm, d'énergie 7 mJ, et cadencé à 1 kHz. Le profil temporel est gaussien avec une durée de 35 fs à mihauteur. Le faisceau laser est gaussien spatialement de largeur 22 mm à 1/e. Ce faisceau est focalisé à l'aide d'une lentille de focale 750 mm dans une cellule remplie de gaz, avec une pression variable. La longueur de la cellule est de 1 mm. La mesure du profil temporel de l'impulsion est réalisée à l'aide d'un SPIDER (Spectral Phase Inteferometer for Direct Electriel-field Reconstruction) [13]. Le SPIDER développé au laboratoire présente une résolution temporelle de quelques fs et est configuré pour mesurer la durée des impulsions de l'ordre de 30 fs [14], permettant ainsi ce type de mesure. Nous nous sommes focalisées sur deux éclairements (ou intensités) : 10<sup>15</sup> W/cm<sup>2</sup>, proche de l'éclairement utilisé pour les HHG et 10<sup>16</sup> W/cm<sup>2</sup>, plus proche de l'éclairement requis pour les lasers X-OFI [15].

Nous avons enregistré l'intensité I(t) et la phase temporelle  $\Phi(t)$ . Le SPIDER permet de mesurer indépendamment le spectre  $I(\omega)$  de l'impulsion à l'aide d'un spectromètre. Nous avons observé des variations de la forme temporelle de l'impulsion en fonction de la pression du gaz. La figure 1.1a) correspond aux profils temporels mesurés avec ou sans gaz d'argon dans la cellule, avec un éclairement dans le vide de  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>. Dans ce cas, le champ laser est focalisé au niveau de l'entrée de la cellule, l'éclairement dans la cellule étant donc plus faible.



Figure 1.1 : a) Profils temporels mesurés avec (re rouge) et sans gaz (en noir) d'argon pour I ~  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> dans la cellule. b) Profil temporel simulé pour une impulsion de 6,6 mJ focalisée à l'entrée de la cellule de gaz de 1mm. Les lignes horizontales correspondent aux 4 premiers seuils d'intensité de suppression de barrière (BSI).

Sur la figure 1.1 a) on constate que l'impulsion est élargie jusqu'à une durée de 45 fs en présence de 30 torr d'argon. L'enveloppe de l'impulsion en sortie de cellule est fortement modulée avec des épaulements sur le front montant et présente une post-impulsion conséquente. On montre simplement que les variations d'indice de réfraction dans le plasma sont importantes pour un taux d'ionisation de l'ordre de quelques pourcents [8]. Les simulations ont permis de reproduire l'effet dynamique des ionisations successives induites par le laser (figure 1.1 b)) [16]. Lorsque l'intensité *I(t)* augmente, les atomes du gaz sont ionisés une première fois, induisant une variation rapide de l'indice de réfraction. Le faisceau subit une déformation spatiale qui se répercute sur le profil temporel mesuré. Puis, plus l'intensité est grande, plus les atomes sont ionisés avec des degrés d'ionisation plus élevés, correspondant aux différents épaulements marqués par les chiffres romains. Les simulations permettent de rendre compte des phénomènes intervenant sur la partie montante de l'impulsion. Par contre, elles n'ont pas permis d'expliquer la post-impulsion, située à droite du maximum de l'enveloppe.

Lorsque le faisceau est focalisé dans la cellule, l'intensité peut atteindre 10<sup>16</sup> W/cm<sup>2</sup> et les interactions non-linéaires entre le laser et le milieu gazeux deviennent plus importantes. Nous observons sur la figure 1.2 a) une modification très importante du spectre en présence du gaz.



Figure 1.2 : a) Spectres mesurés avec(en rouge) et sans gaz (en noir) pour I ~  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>. b) Profil temporel expérimental en présence d'Argon pour I ~  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>.

Le spectre présente deux sous-structures en bande latérale située à 20 nm de la longueur d'onde centrale du laser, correspondant à la pulsation plasma calculée à 30 torr (la pulsation plasma dépend du nombre d'atomes et du pourcentage d'ionisation). Ces bandes latérales sont la signature de la diffusion Raman Stoke et anti-Stoke induite par la propagation complexe du laser dans le plasma en formation [17]. Ce phénomène serait responsable de la post-impulsion mesurée sur le profil temporel observé sur la figure 1.1 a). Lorsque l'éclairement est très important, nous observons sur la figure 1.2 b) une déformation plus importante du profil temporel de l'intensité. L'éclairement étant plus important, l'effet Kerr participe aux variations d'indice : les effets non-linéaires deviennent prépondérants et pourraient expliquer cette déformation.

Ce code de simulation que nous avons développé reproduit qualitativement les résultats expérimentaux [8]. Nous avons vérifié la validité de ce code pour la propagation des impulsions femtosecondes dans un milieu gazeux pour des intensités comprises entre 10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup> et 10<sup>17</sup> W/cm<sup>2</sup>. Les résultats de cette expérience et des simulations numériques représentent une amélioration dans la compréhension des phénomènes de propagation d'une impulsion intense et ultra-courte dans un milieu gazeux. Pour des intensités supérieures à 10<sup>18</sup> W/cm<sup>2</sup>, il faudrait tenir compte des effets relativistes [18] tels que l'auto-focalisation, qui sont négligeables dans notre cas mais qui apparaissent à des densités de puissance plus faibles pour d'autres milieux, tels que l'air ou la silice (filamentation).

#### 2.2.4 Conclusion

J'ai présenté oralement ces résulats à l'International Quantum Electronic Conference (ICEQ02) et lors de la conférence XUV en 2002 [8]. Nous ne trouvons pas d'autres expériences similaires décrites dans la littérature bien que plusieurs processus de génération de rayonnement XUV soient basés sur l'interaction d'un gaz avec une impulsion ultra-intense et ultra-courte. Récemment l'équipe d'I. Sola à Salamanque (Espagne) a mesuré les profils temporels du laser fondamental lors de la génération d'harmonique d'ordre élevé [19].

#### 2.3 Théorie de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz

Pendant ces années au LOA, je me suis consacrée à l'étude théorique et expérimentale des harmoniques d'ordre élevé générées dans les gaz. Les différents développements théoriques sont consignés dans des articles ou des livres [7], je ne vais donc pas les rappeler en détails. Je m'attacherai juste à effectuer certains rappels ponctuels pour faciliter la compréhension des résultats expérimentaux.

#### 2.3.1 Introduction

La théorie de la génération d'harmonique d'ordre élevé a été développée au début des années 1990. Le modèle à trois étapes développé par Kulander *et al.* [20] et Corkum *et al.* [21] permet de rendre compte qualitativement des spectres expérimentaux (cf introduction). Ce modèle sera ensuite complété par un modèle quantique, développé par Lewenstein *et al.* [22]. Mais ce modèle est basé sur l'approximation de champ fort, c'est à dire que l'on néglige l'effet du champ coulombien sur la trajectoire électronique dans le continuum. Pour une étude complète, Kulander *et al.* ont proposé le calcul du dipôle atomique en résolvant l'équation de Schrödinger dépendante du temps (TDSE).

Les développements présentés dans l'annexe 2 sont primordiaux pour comprendre les enjeux des différentes expériences menées au LOA.

#### 2.3.2 Aspets microscopiques : Dipôle atomique

Dans ce chapitre, je présenterai rapidement les différents modèles. Un des résultats importants est que seulement deux chemins quantiques pour l'électron dans le continuum contribuent au signal d'harmonique. Par un traitement spectro-temporel, il est possible de calculer la contribution de chaque chemin quantique (désintrication quantique, annexe 2).

Lewensetein *et al.* ont démontré par un développement de point selle (saddle-point method) que seuls deux trajectoires électroniques contribuent au signal de la même harmonique [22]. Finalement, nous pouvons écrire le dipôle sous la forme de deux contributions. Les phases se mettent simplement sous la forme –  $\alpha I$  où I est l'intensité du laser. On montre que l'amplitude du dipôle est une puissance de l'intensité. L'exposant dépend de l'ordre harmonique dans le cas perturbatif (ionisation multiphotonique) et de l'atome considérés. L'approximation de champ fort utilisée dans ce calcul peut être contournée en développant un modèle plus complet [22].

La résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps (TDSE) permet de calculer l'évolution temporelle de la fonction d'onde de l'électron dans le continuum en tenant compte de l'interaction avec le champ laser mais aussi du potentiel coulombien [23]. Vu que la polarisation du faisceau laser est linéaire, un traitement 1D est suffisant. Le principe du code de simulation, écrit par V. Véniard (LCPMR) et que j'ai modifié par la suite, est détaillé dans l'annexe 2.

Après une présentation complète de la description microscopique de la génération d'harmoniques, c'est à dire tous les modèles de l'atome unique, je vais m'attarder maintenant aux aspects macroscopiques, c'est à dire l'accord de phase et l'absorption.

#### 2.3.3 Aspects macroscopiques : Cartes d'accord de phase et absorption

On peut considérer que quelques uns des atomes du gaz se comportent comme de petits dipôles qui rayonnent un champ sous forme d'harmoniques. Afin de construire le champ en sortie de cellule, il faut que tous les rayonnements émis interfèrent constructivement. C'est à dire que, lors de la propagation du champ harmonique dans le milieu gazeux, le rayonnement ne subit pas trop de déphasage. La définition de la longueur de cohérence est basée sur ce concept : elle correspond à la longueur dans le milieu au bout de laquelle le rayonnement est déphasé de  $\pi$ , correspondant à une interférence destructive. On comprend bien alors que si la longueur de génération est supérieure à cette valeur, le signal harmonique ne sera pas optimum.

L'accord de phase, introduit dans l'annexe 1 pour la propagation du champ harmonique, correspond au déphasage entre le champ harmonique et la polarisation non-linéaire induite à la même fréquence. Cette polarisation est directement liée au dipôle induit par  $N_{at}$  d où  $N_{at}$  est le nombre d'atomes et *d*, l'amplitude du dipôle. La phase du dipôle va donc jouer un rôle dans l'accord de phase.

L'énergie des photons harmoniques pouvant dépasser le seuil d'ionisation des atomes du gaz, la probabilité de photo-ionisation par absorption d'un photon harmonique est non négligeable. Il faut alors tenir compte de l'absorption si on veut comprendre les résultats expérimentaux.

#### 2.3.4 Conclusion

Au final, le nombre de photons harmoniques dépend du dipôle atomique, de la phase du dipôle, de l'accord de phase et de l'absorption. Pour obtenir plus de détails sur les développements théoriques, il convient de lire l'annexe 2. Afin d'optimiser la source, nous pouvons contrôler les différents paramètres expérimentaux qui influent sur tous ces paramètres.

#### 2.4 Vers l'optimisation

Les développements théoriques auxquels j'ai participé dans ce chapitre sont aussi décrits dans un grand nombre de publications de l'équipe [24-28]. L'optimisation de la source d'harmoniques d'ordre élevé a été la première préoccupation des différentes expériences et simulations entreprises pendant les dix années que j'ai passées au LOA. Je vais donc présenter ces expériences d'optimisation dans le chapitre suivant.

#### Références

- [1] Couairon, A., Bergé, L., Combis, P., Chiron, A., Lamouroux, B., & Mysyrowicz, A. (1999, November). Propagation and filamentation of ultra-short laser pulses in gases, In APS Division of Plasma Physics Meeting Abstracts (Vol. 1); H. R. Lange, G. Grillon, J.-F. Ripoche, M. A. Franco, B. Lamouroux, B. S. Prade, A. Mysyrowicz, E. T. J. Nibbering, and A. Chiron, Anomalous long-range propagation of femtosecond laser pulses through air moving focus or pulse self-guiding?, Opt. Lett. 23, 120-122 (1998)
- [2] J. Kasparian, M. Rodriguez, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, H. Wille, R. Bourayou, S. Frey, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.-P. Wolf, and L. Wöste, *White-Light Filaments for Atmospheric Analysis*, Science **301** (5629), 61-64 (2003)
- [3] A. Marcinkevičius, S. Juodkazis, M. Watanabe, M. Miwa, S. Matsuo, H. Misawa, and J. Nishii, Femtosecond laser-assisted three-dimensional microfabrication in silica, Opt. Lett. 26, 277-279 (2001)
- [4] Fertein E., Przygodzki C, Delbarre H., Hidayat A., Douay M. and Niay P., *Refractive-index changes of standard telecommunication fiber through exposure to femtosecond laser pulses at 810nm*," Appl. Opt. 40, 3506 (2001) ; Fu L.B., Marshall G.D., Bolger J.A., Steinvurzel P., Magi E.C., Withford M.J. and Eggleton B.J., *Femtosecond laser writing Bragg gratings in pure silica photonic crystal fibres*, Electron. Lett. 41, 638 (2005)
- [5] A. Brodeur and S. L. Chin, Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media, J. Opt. Soc. Am. B 16, 637-650 (1999)
- [6] *Supercontinuum generation in optical fibers*, Ed. J M Dudley, and J R Taylor, Cambridge University Press (2010)
- [7] P. Jaeglé, *Coherent Sources of XUV Radiation: Soft X-ray Lasers and High Harmonic Generation*, Spinger Series in Optical Sciences (2006)
- [8] C. Valentin, F. Weihe, Sophie Kazamias, R. Haroutunian, S. Sebban, et al., Mesure de la dynamique couplée de propagation et d'ionisation d'une impulsion laser Application au laser X-OFI ou à la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Journal de Physique IV (Proceedings) 108, pp.109 112 (2003)
- [9] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. Krainov, *Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electric field*, Sov. Phys. JETP, **64**, 1191 (1986)
- [10] C. Kan, C. E. Capjack, R. Rankin, and N. H. Burnett, *Spectral and temporal structure in high harmonic emission from ionizing atomic gases*, Phys. Rev. A **52**, R4336(R) (1995)
- [11] S. Sebban, T. Mocek, D. Ros, L. Upcraft, Ph. Balcou, R. Haroutunian, G. Grillon, B. Rus, A. Klisnick, A. Carillon, G. Jamelot, C. Valentin, et al., Demonstration of a Ni-Like Kr Optical-Field-Ionization Collisional Soft X-Ray Laser at 32.8 nm, Phys. Rev. Lett. 89, 253901 (2002)
- [12] S. Sebban, R. Haroutunian, Ph. Balcou, G. Grillon, A. Rousse, S. Kazamias, T. Marin, J. P. Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman, et al., Saturated Amplification of a Collisionally Pumped Optical-Field-Ionization Soft X-Ray Laser at 41.8 nm, Phys. Rev. Lett. 86, 3004 (2001)

- [13] C. Iaconis and I. A. Walmsley, *Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses*, Opt. Lett. **23** (10), 792-794 (1998)
- [14] C. Dorrer, B. de Beauvoir, C. Le Blanc, S. Ranc, J-P. Rousseau, P. Rousseau, J-P. Chambaret, and F. Salin, Single-shot real-time characterization of chirped-pulse amplification systems by spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction, Opt. Lett. 24 (22), 1644-1646 (1999)
- [15] R. Haroutunian, Sources XUV cohérentes crées par laser femtoseconde : *Laser X et optimisation de la génération d'harmoniques d'ordre élevé*, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique (2001)
- [16] S. Augst, D. Strickland, D.D. Meyerofer, S.L. Chin, and J.H. Eberly, *Tunneling ionization of noble gases in a high-intensity laser field*, Phys. Rev. Lett. 63, 2212 (1989)
- [17] W.B. Mori, C.D. Ecker, D.E. Hinkel, T. Katsouleas, *Raman Forward Scattering of Short-Pulse High-Intensity Lasers*, Phys. Rev. Lett. **72**, 1482 (1994)
- [18] P. Monot, T. Auguste, P. Gibbon, F. Jakober, and G. Mainfray, A. Dulieu, M. Louis-Jacquet, G. Malka, and J. L. Miquel, *Experimental Demonstration of Relativistic Self-Channeling of a Multiterawatt Laser Pulse in an Underdense Plasma*, Phys. Rev. Lett. 74, 2953 (1995)
- [19] W.Holgado, B.Alonso, J.SanRoman, and I.J.Sola, *Temporal and spectral structure of the infrared pulse during the high order harmonic generation*, Opt. Express **22**, 10191 (2014)
- [20] K. C. Kulander, K. J. Schafer and J. L. Krause, *Dynamics of short-pulse excitation ionization and harmonic conversion*, Proceedings of the Super Intense Laser-Atom Physics III Workshop, vol. **316** of NATO Advance Study Institute, series B/Physics, ed. B Piraux (Plenum Presse, New-York, 1993)
- [21] P.B. Corkum, *Plasma perspective on strong field multiphoton ionization*, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993)
- [22] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, Anne L'Huillier, and P. B. Corkum, *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*, Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994)
- [23] J.L. Krause, K.J. Schafer, and K.C. Kulander, *High-Order Harmonic Generation from Atoms and Ions in the High Intensity Regime*, Phys. Rev. Lett. **68**, 3535 (1992)
- [24] C. Valentin, S. Kazamias, D. Douillet, G. Grillon, Th. Lefrou, F. Augé, M. Lewenstein, J.-F. Wyart, S. Sebban and Ph. Balcou, *Anomalous high-order harmonic generation*, Journal of Physics B: Atomic Molecular and Optical Physics **37**, pp 2661-2675 (2004)
- [25] C. Valentin, S. Kazamias, D. Douillet, Thierry Lefrou, Frederika Auge-Rochereau, et al., Étude de la génération d'harmoniques anormales d'ordre élevé à basse intensité, J. Phys. IV 127, pp. 181-185 (2005)
- [26] Constance Valentin, Olga Boyko, Evaggelos Papalazarou, Gilles Rey, Brigitte Mercier, Laura Antonucci, Philippe Balcou, *Optimization of High Harmonic Generation by Genetic Algorithm.*, Acta Physica Hungarica A) Heavy Ion Physics **26**, 335 (2006)

- [27] C. Valentin, O. Boyko, G. Rey, B. Mercier, E. Papalazarou and L. Antonucci, Étude expérimentale de l'optimisation de la génération d'harmoniques d'ordre élevé par l'utilisation d'un algorithme génétique, J. Phys. IV 138, pp. 35-41 (2006)
  - [28] O. Boyko, C. Valentin, B. Mercier, Ch. Coquelet, V. Pascal, E. Papalazarou, G. Rey and Ph. Balcou, *Systematic study of high harmonic control by temporal pulse shaping of laser pulses: major mechanisms of optimization*, Phys. Rev. A **76**, 063811 (2007)

# Chapitre 3 : Développement et optimisation de la source harmonique

#### **3.1. Introduction**

Ce chapitre regroupe toutes les études visant à améliorer la source de rayonnement XUV basée sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Les bases théoriques détaillées dans le chapitre 2 et l'annexe 2 permettent de comprendre les résultats de ces études. Il faut alors optimiser la source en termes de nombre de photons dans la gamme spectrale d'intérêt (15-40 nm). Il faut aussi améliorer la qualité spatiale du faisceau et contrôler la durée des impulsions émises lors du processus afin de garantir une densité de puissance (ou éclairement) suffisante pour les applications.

Je présenterai tout d'abord des expériences visant à augmenter le flux de photons dans le domaine XUV. Plusieurs stratégies ont été testées au fil des années et ont conduit à un nombre important de publications :

- géométrie longue focale à l'aide d'un diaphragme (ou iris) [1-5]

- réabsorption des harmoniques d'ordre perturbatif [6,7]

- utilisation d'un filtre acousto-optique programmable permettant de modifier la structure temporelle de l'impulsion IR et/ou utilisation d'un miroir adaptatif afin de modifier la phase spatiale du faisceau fondamental [8-10]

- génération par faisceau IR ( $\omega$ ) et faisceau doublé en fréquence (2 $\omega$ ) [11-13]

- amplification d'harmoniques par plasma laser [14].

Il faut aussi contrôler la focalisation des harmoniques : nous avons mesuré la tache focale XUV dans différents cas et avons montré l'influence des optiques utilisées [15]. Le contrôle de la phase spatiale des harmoniques est possible en contrôlant directement celle du faisceau fondamental de génération [16,17].

L'intérêt des harmoniques d'ordre élevé est qu'elles peuvent être émises sous forme de train d'impulsions attosecondes. La compréhension des phénomènes physiques de lors de l'émission de ces harmoniques est alors fondamentale [18-19]. Le contrôle de la durée des impulsions harmoniques à l'aide de miroir chirpé attoseconde permettrait d'obtenir des impulsions ultra-courtes (dizaines d'attosecondes) dans le domaine spectral XUV [20]. Je ne décrirai pas ici ces développements.

Finalement, je présenterai une expérience d'application à courte longueur d'onde pour l'étude dynamique de la magnétisation d'échantillons de Cobalt [21]. D'autres expériences d'application réalisées en collaboration avec des équipes nationales et internationales ne seront pas décrites ici mais ont donné lieu à plusieurs publications [22-25].

Dans ce contexte, j'ai encadré deux stagiaires de Master 2 : Julien Higuet (2007) et Aifan Alata (2008). J'ai aussi co-encadré de façon non-officielle deux doctorants Olga Boyko (2006) et Evaggelos Papalazarou (2008).

#### 3.2. Etat de l'art et les avantages de la géométrie longue focale

Lorsque je suis arrivée au laboratoire, plusieurs équipes internationales étaient déjà bien avancées sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé [26-30]. Les efficacités de conversion sont de l'ordre de 10<sup>-5</sup> pour les harmoniques générées dans l'argon. Nous avons montré que l'efficacité de conversion avec notre géométrie était bien supérieure à celles des autres géométries, de l'ordre de **3 10**<sup>-5</sup>. Nous avons alors développé un modèle pour expliquer ces résultats [1-5]. Un spectre typique d'harmoniques d'ordre élevé générées dans le Néon est montré sur la Figure 3.1 : on peut atteindre des ordres très élevés, H91 correspondant à une longueur d'onde d'environ 9 nm.



Longueur d'onde

Figure 3.1: Spectre typique obtenu dans le Néon. Ces harmoniques très élevées ont été observées à l'aide d'une galette micro-cannaux (MCP en anglais), détecteur insensible à la lumière IR, pour lequel nous n'avons pas besoin de filtrer le laser fondamental.

La géométrie longue focale (f = 1m), schématisée sur la Figure 3.2, a permis d'obtenir un nombre de photons importants avec la possibilité d'optimiser la source, principalement en décomposant l'effet des différents paramètres géométriques sur l'accord de phase et en prenant en compte l'absorption du gaz générateur [2]. La densité de puissance du laser générateur ne doit pas être trop importante pour ne pas ioniser le milieu. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 2 et l'annexe 2, l'ionisation influe : 1) sur le nombre d'atomes utiles au signal harmonique et 2) sur l'accord de phase.



Figure 3.2: Schéma du montage expérimental pour la génération d'harmoniques : on focalise un laser émettant des impulsions autour de 800nm, d'énergie de 6 mJ, de durée environ 30 femtosecondes (fs) avec une cadence de 1 kHz dans une cellule de gaz. Le diaphragme permet de modifier l'énergie dans le faisceau ainsi que la géométrie de la tache focale. La pression du gaz peut être contrôlée. Après la cellule, on utilise des filtres en Aluminium pour ne garder que les harmoniques (la coupure courte longueur d'onde se situe à 17 nm). Le dispositif pour observer les harmoniques est composé d'un miroir torique, d'un réseau de diffraction fonctionnant en réflexion et d'une caméra CCD fonctionnant dans le domaine spectral XUV.

Comment limiter cette densité de puissance, tout en gardant un volume focal important ? Lors de la thèse de S. Kazamias, nous avons démontré que la plage spatio-temporelle d'accord de phase pouvait être augmentée lorsque la géométrie longue focale était améliorée à l'aide d'un diaphragme situé juste avant la lentille de focalisation [1]. Ce diaphragme limite l'énergie laser disponible mais aussi il permet d'augmenter la distance de Rayleigh, et donc le volume focal. L'emplacement de la cellule de génération par rapport au plan focal joue aussi un rôle. La densité de puissance dans la cellule de génération est ainsi limitée. Typiquement cette densité de puissance dans ces expériences

est de l'ordre de quelques **10**<sup>14</sup> **W/cm**<sup>2</sup>. La pression du gaz est aussi un paramètre important : si elle est trop élevée, la réabsorption des harmoniques par le gaz générateur peut alors limiter le signal XUV.

#### 3.3 Augmentation du nombre de photons dans le domaine XUV

#### 3.3.1 Introduction

Par la suite, notre équipe a cherché à améliorer la source pour les expériences d'application dont un exemple sera détaillé à la fin de ce chapitre. Pour augmenter le nombre de photons disponibles, on augmente la valeur du dipôle atomique [6,7,11-13], ou on amplifie le signal de l'harmonique 25 (32 nm) par un plasma créé par laser [14], ou alors par contrôle actif de l'accord de phase [8-10].

# <u>3.2.2 Harmoniques élevées avec une intensité faible : réabsorption des harmoniques faibles par le gaz ?</u>

Comme nous l'avons vu précédemment, l'intensité requise pour générer des harmoniques autour de l'ordre 25 dans l'argon est de l'ordre de 10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup>. En dessous, on s'attend à générer des harmoniques plus basses, et de façon moins optimale car l'absorption des harmoniques d'ordre plus bas est plus importante (cf Figure 3.3). Cependant, nous avons observé, comme sur la figure 3.4, des harmoniques avec des ordres très élevés jusqu'à la coupure du filtre en Aluminium à 17 nm (correspondant à H47), générées dans plusieurs gaz rares (Xénon, Krypton et Argon). Pour ces intensités, les ordres observés sont bien au delà de l'ordre de coupure donné en annexe 2. Les modèles théoriques admis (Lewentein, TDSE), exposés dans le l'annexe 2, ne permettent pas d'expliquer ces résultats.



*Figure 3.3 : Longueur d'absorption pour l'argon à la pression dans la cellule = 15 mbar. Pour les harmoniques basses, on voit bien que les longueurs d'absorption sont inférieures à 1 mm et donc inférieures à la longueur de la cellule.* 

Il est important de noter que les spectres obtenus n'ont été mesurés qu'à l'aide d'un spectromètre XUV de très grande sensibilité. L'efficacité de conversion mesurée pour ces harmoniques anormalement élevées est de l'ordre de 10<sup>-9</sup>, ce qui est très faible par rapport à l'efficacité de conversion des harmoniques mesurée dans les conditions usuelles, qui est de l'ordre de quelques 10<sup>-5</sup> [1]. L'observation des ordres très élevés est accompagnée de la disparition des ordres plus faibles. Afin d'analyser ces résultats, nous avons réalisé une étude systématique du signal harmonique en fonction de plusieurs paramètres tels que : la position de la cellule par rapport au foyer, la pression du gaz, l'énergie des impulsions laser et la longueur de la cellule [6,7].



*Figure 3.4 : Spectre d'harmoniques générées dans 25 torr d'argon avec un éclairement en entrée de cellule d'environ I = 2 10^{13} W/cm<sup>2</sup>.* 

J'ai pu vérifier que les effets macroscopiques sont équivalents à ceux obtenus pour les harmoniques plus basses dans les conditions usuelles de génération [6,7]. Seuls les effets microscopiques sont alors différents. L'étude en fonction de l'énergie de l'impulsion laser montre une dépendance linéaire du signal harmonique (cf Figure 3.5), permettant de conclure que le modèle de Lewenstein ne peut pas s'appliquer dans ce cas car on s'attendrait à une dépendance en puissance 5 en fonction de l'intensité laser [31].



Figure 3.5 : Signal de H29 (/10), H33 et H45 générées dans une cellule de 2 mm remplie de 15 torr d'argon en fonction de l'énergie du laser fondamental. L'intensité dans la cellule est de l'ordre de 7 10<sup>13</sup> W/cm<sup>2</sup>.

Ces résultats pourraient s'expliquer par la réabsorption des harmoniques d'ordre plus faible générées en début de cellule (H3 à H11) [32]. Couplées au laser IR, elles permettraient de générer plus efficacement ces harmoniques d'ordre très élevé (cf Figure 3.6). J'ai réalisé des simulations à partir du code TDSE présenté au deuxième chapitre dans le but de retrouver la variation quasilinéaire du signal en fonction des impulsions du laser IR. Dans ce calcul, le délai entre les impulsions laser et harmoniques est nul (on considère une impulsion attoseconde (10<sup>-18</sup> s) composée des cinq harmoniques en phase). Il faut bien comprendre qu'en réalité, les harmoniques ne sont pas en phase, ni entre elles, ni avec l'impulsion IR (accord de phase vérifié). J'ai pu vérifier que pour les harmoniques d'ordre élevé, le signal augmentait linéairement avec l'éclairement laser.



Figure 3.6 : Simulation du signal harmonique généré dans l'Argon par le laser IR seul (en noir) et par le laser IR avec cinq harmoniques (H3 à H11) en phase (en rouge) par la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps. On voit que l'on peut gagner sept ordres de grandeur sur le signal de l'harmonique 45 en prenant en compte les harmoniques d'ordre plus bas (ces harmoniques sont émises sous forme d'un train d'impulsions attosecondes).

Pour vérifier cette hypothèse, il aurait fallu développer une expérience avec deux cellules de génération : une première pour générer les harmoniques basses (dans le Xénon par exemple), puis une deuxième cellule avec de l'argon ou du Néon. Ce montage expérimental aurait demandé trop de développement et nous n'en avions pas les moyens. Ce type d'expérience a été réalisé par la suite par l'équipe d'U. Keller [33], expliqué plus en détail par l'équipe de K. Schaffer [34] et reproduit plus récemment par l'équipe d'A. Lhuillier [35] et a confirmé les hypothèses que j'avais avancées.

## 3.3.3 Amélioration de la source aux longueurs d'onde plus courtes

Lorsque nous avons décidé de développer cette expérience, plusieurs équipes avaient montré l'intérêt de générer les harmoniques avec le faisceau IR et le faisceau doublé en fréquence (à 400 nm) comme par exemple [36,37]. Kim *et al.* ont démontré une efficacité de conversion de 5 10<sup>-5</sup> pour H38 générée dans l'Helium : le signal obtenu alors à 20 nm est deux ordres de grandeur plus important qu'en présence du faisceau IR seul. Néanmoins, notre montage utilisé est plus simple et un gain important sur l'efficacité de conversion est ausi avéré. Plusieurs problèmes restent néanmoins à résoudre afin de fournir une source de photons XUV fiable.

L'efficacité de conversion des harmoniques d'ordre élevé pour des longueurs d'onde inférieures à 20 nm est très faible. Plus le gaz de génération est léger, plus les ordres d'harmoniques atteints sont grands mais plus l'efficacité de conversion diminue. Il en résulte que l'énergie pour cette gamme de longueur d'onde est très faible (de l'ordre de 10 pJ).

Pour augmenter ce signal, nous avons mis en place un dispositif doubleur de fréquence sur le faisceau infrarouge de génération représenté sur la Figure 3.7. Le faisceau IR provient d'un laser Ti :Sa délivrant des impulsions centrées à 800 nm, d'énergie 7 mJ et de durée 35 fs. L'énergie et la focalisation sont contrôlées à l'aide d'un iris. Le dispositif doubleur consiste à doubler la fréquence du faisceau IR à l'aide d'un cristal de BBO de 100 µm ou 250 µm d'épaisseur. Ce cristal est placé après la lentille de focalisation afin de focaliser les deux faisceaux à l'intérieur de la cellule de génération et aussi pour augmenter l'efficacité de génération du faisceau IR. Ces deux faisceaux permettent la génération d'harmoniques, paires et impaires, dans la cellule remplie de gaz rare (Ar, Kr, Ne, He). Les faisceaux de génération sont filtrès à l'aide de deux filtres en Aluminium de 200

nm d'épaisseur. Les harmoniques sont analysées à l'aide d'un spectromètre, composé d'un réseau de diffraction en transmission et d'une caméra CCD fonctionnant dans l'XUV et d'un dispositif de mesure de front d'onde de type Hartmann, adapté au domaine spectral XUV.



Figure 3.7 : a) Schéma de l'expérience de génération à l'aide du cristal de BBO. b) Détail du dispositif de génération à deux couleurs dans la cellule.

D'après les propriétés de biréfringence du cristal du BBO, la polarisation du faisceau bleu est perpendiculaire à celle du faisceau IR. Il en résulte que les harmoniques générées avec les deux faisceaux ne seront plus polarisées suivant une direction bien précise. Cette géométrie, simple d'utilisation, présente un autre désavantage : le délai entre les deux impulsions est donné par l'épaisseur du cristal et provient de la dispersion de vitesse de groupe. Ce délai est d'environ 18 fs pour une épaisseur de 100  $\mu$ m mais atteint 45 fs pour une épaisseur traversée de 250  $\mu$ m, ce qui correspond à un recouvrement temporel très faible (les impulsions présentent une durée comparable de 40 à 45 fs).

Les résultats de mesure du nombre de photons obtenus sont très prometteurs : nous pouvons voir sur la Figure 3.8 (a) que l'efficacité de conversion pour les harmoniques d'ordre supérieur à 39, générés dans le néon et l'hélium, est augmentée de deux ordres de grandeur [11-13]. On voit aussi que la Figure 3.8 (b) que le signal pour les harmoniques générées avec le BBO d'épaisseur de 250 µm est plus faible que pour le BBO d'épaisseur plus fine à cause du mauvais recouvrement temporel des impulsions. L'énergie par harmonique atteint des valeurs qui permettent l'utilisation des ces harmoniques comme injecteur dans les plasmas de laser X [14] et dans les laser à électrons libres (LEL) X [38,39]. Notre dispositif de mesure ne permet pas de visualiser les harmoniques d'ordre supérieur à 47 (correspondant à 17 nm, la coupure du filtre d'aluminium utilisé pour couper l'IR et le bleu). Néanmoins, nous pouvons espérer atteindre des valeurs d'énergie suffisante pour l'injection des LEL à 10 nm.



Figure 3.8 : (a) mesure des spectres d'harmoniques avec (vert) et sans cristal de BBO (rose); (b) mesure des spectres d'harmoniques avec un cristal de BBO d'épaisseur 100  $\mu$ m (vert) et 250  $\mu$ m (bleu).

Des mesures de front d'onde par le dispositif de mesure de front d'onde type Hartmann ont montré que l'utilisation du cristal de BBO permettait de diminuer la valeur de distorsions de front d'onde des harmoniques. En effet, le faisceau bleu présente une tache focale plus petite que celle du faisceau IR et il se produit comme un filtrage spatial du faisceau IR. Seules les distorsions au centre du faisceau seront imprimées sur le faisceau harmonique. Nous avons alors démontré que l'amélioration sur l'harmonique H18 était excellente : la valeur de distorsion r.m.s. atteint  $\lambda/17$  à 44 nm [12]. Nous avions auparavant démontré une telle amélioration sur le front d'onde de l'harmonique amplifiée à 32 nm [40].

Ces résultats très prometteurs nous ont confortés de l'utilité d'un tel dispositif pour les expériences d'application de notre source harmonique. De plus, des études très récentes ont montré que la polarisation résultante est circulaire et convient parfaitement pour les expériences [41].

#### 3.3.4 Injection d'harmonique pour le laser X OFI : le plasma comme milieu amplificateur

L'idée de départ de cette expérience proposée par Ph. Zeitoun est de réaliser un schéma d'amplification d'impulsion chirpée (CPA en anglais) pour le rayonnement XUV. Dans un premier temps, il faut démontrer que nous pouvons amplifier une raie dans le milieu plasma obtenu par ionisation par le champ [42]. Cette expérience pionnière est le fruit de collaborations avec de nombreux laboratoires : le Centro de Fisica dos Plasmas (Lisbonne, Portugal), le CEA/DAM, le LIXAM, le LULI et le CEA/IRAMIS.

La raie laser X est produite à partir de l'interaction d'un faisceau laser provenant de la chaîne 100 TW (1J, 10<sup>17</sup> W/cm<sup>2</sup>) et d'une cellule remplie de krypton. La longueur d'onde de la raie est égale à 32,8 nm pour ce gaz. Ce milieu laser peut devenir un milieu amplificateur si on injecte une harmonique à la même longueur d'onde. Les harmoniques sont générées dans l'argon à partir d'un deuxième faisceau indépendant provenant du même laser (20 mJ, 10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup>). Seule l'harmonique 25 du faisceau fondamental présente une longueur d'onde proche de celle du laser X (cf Figure 3.9). Afin d'optimiser l'injection de cette harmonique dans le milieu amplificateur, il faut ajuster sa longueur d'onde centrale sur celle de la raie laser. Pour cela, on impose une dérive de fréquence sur le laser de pompe en faisant varier la distance entre les deux réseaux du compresseur (l'explication physique de ce phénomène est détaillée dans l'annexe). La largeur spectrale de cette harmonique est 200 fois plus importante que celle de la raie laser. Il faut aussi s'assurer de la bonne synchronisation des deux sources et un bon recouvrement spatial dans le milieu amplificateur.



Figure 3.9 : Schéma de l'expérience d'injection d'harmoniques dans le plasma amplificateur : les harmoniques sont générées dans une cellule remplie d'Argon à l'aide d'un premier faisceau IR (20mJ, 30fs). Elles sont ensuite focalisées par un miroir torique dans le plasma amplificateur obtenu par interaction d'un laser très intense (1J, 30fs,  $I > 10^{17}$ W/cm<sup>2</sup>) avec du krypton. La ligne à retard permet de synchroniser les deux faisceaux. On observe les images des spectres avant et après amplification de l'harmonique 25.

Lorsque l'intensité d'injection est faible par rapport à l'intensité de saturation de la raie laser, on peut gagner un facteur d'amplification de l'harmonique égal à 200 impliquant une énergie en sortie de l'ordre de 0,5  $\mu$ J à 1  $\mu$ J [14]. L'harmonique amplifiée présente une largeur en longueur d'onde à mi-hauteur de 2 10<sup>-12</sup> m, correspondant à une durée de 5 ps à la limite de Fourier [43].

L'intérêt de cette nouvelle source XUV est que l'on peut atteindre des intensités supérieures à  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> à une courte longueur d'onde de l'ordre de 10 nm si on la focalise à la limite de diffraction (tache focale de 0,1 µm). Les développements futurs concerneront la durée des impulsions [44].

#### 3.3.5 Contrôle optimal

Je présente ici les résultats obtenus dans le cadre de la thèse d'O. Boyko [45] que j'ai coencadrée. Nous recherchons toujours à optimiser notre source. Dans ce cadre, noua avons utilisé deux types de dispositifs : et un filtre acousto-optique programmable (Dazzler<sup>™</sup>) [46] et un miroir adaptatif BIM31 [47].

Une première expérience de contrôle du profil transverse de l'intensité au niveau du plan focal a permis de démontrer l'utilité de ce dispositif pour la génération d'harmoniques. De plus, le filtre, placé en début de chaîne laser, permet de modifier l'amplitude et la phase spectrales du faisceau infrarouge. Ce dispositif sera utilisé lors de l'expérience visant à modifier le profil temporel de l'impulsion IR et diminuer la durée de cette impulsion. Le contrôle de la longueur d'onde des harmoniques émise est possible en utilisant un tel filtre [48]. Je vais montrer que les résultats des optimisations s'expliquent par le contrôle de l'accord de phase transitoire [8-10]. Nous disposons aussi d'un miroir adaptatif en sortie de chaîne laser. Ce miroir permet la correction du front d'onde du laser fondamental et donc de la forme du volume focal où se situe la cellule de génération.

#### 3.3.5.1 Contrôle de la phase spectrale du laser infrarouge

Le contrôle de la phase spectrale du laser IR est primordial si l'on veut contrôler le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé. En effet, il a été démontré que plus la durée de l'impulsion fondamentale est courte, plus l'ordre maximal des harmoniques est grand à cause des effets non adiabatiques sur l'ionisation tunnel [49].

Nous pouvons contrôler de manière active l'amplitude et la phase spectrale du laser de génération à l'aide du filtre acousto-optique programmable et d'un algorithme d'optimisation (algorithme génétique).



Figure 3.10 : Profils temporels mesurés par le SPIDER correspondant à l'impulsion en limite de Fourier (ligne épaisse, tirets), l'impulsion superrésolue (ligne continue, FWHM = 19 fs) ; l'impulsion calculée à partir du spectre expérimental et d'un masque théorique (ligne fine, tirets).

Le filtre acousto-optique programmable (Dazzler) est placé entre l'étireur et l'amplificateur régénératif de notre chaîne CPA (Chiped Pulse Amplification). Les différents éléments de la chaîne laser modifient quelque peu la phase spectrale imposée par le Dazzler (la chaîne est quasi-linéaire : la valeur de la phase non-linéaire B ou intégrale B est négligeable). L'amplitude et la phase du laser sont mesurées à l'aide d'un SPIDER (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction) placé après le compresseur [50]. Nous avons observé une différence sur la phase mesurée et la phase imposée au Dazzler mais la correction de phase spectrale a permis d'obtenir une phase quasi-plate (de l'ordre de 0.05 rad) en fin de chaîne après trois itérations. Ensuite, nous avons appliqué différents masques de phase afin de diminuer la durée des impulsions du laser IR.

Nous avons montré qu'il était possible d'étendre dans le domaine temporel le concept de super-résolution communément développée pour la microscopie. En appliquant un masque de phase temporelle de forme exponentielle décroissante, nous avons mesuré une diminution d'un facteur 2/3 de la durée sans modification de la largeur spectrale du laser [51]. L'intérêt de cette méthode est que la durée de l'impulsion peut être plus courte que la durée imposée par la limite de Fourier, comme on peut le voir sur la Figure 3.10. En contrepartie, il se forme des bandes latérales temporelles comprenant environ 40 % de l'énergie du laser. Néanmoins, la durée de l'impulsion a été diminuée de **30 fs à 19 fs** ce qui est très intéressant pour la génération d'harmoniques.

#### 3.3.5.2 Optimisation par contrôle actif de la phase spectrale des harmoniques

Forts de ces résultats, nous avons utilisé le Dazzler pour augmenter le flux de photons des harmoniques. Nous avons mis au point un programme d'algorithme génétique qui permet d'optimiser le flux d'une harmonique donnée après quelques itérations. Le spectre des harmoniques générées dans la cellule de gaz est mesuré à l'aide d'une caméra CCD XUV. Les spectres obtenus sont comparés à un spectre de référence vers lequel l'algorithme génétique doit converger. Les

paramètres de contrôle de l'algorithme sont deux coefficients du développement de Taylor de la phase spectrale du laser IR autour de la fréquence moyenne, ainsi que dix coefficients provenant de l'interpolation de la phase spectrale. La phase spectrale obtenue est ensuite imposée au Dazzler. Un nouveau spectre est alors mesuré et est comparé au spectre de référence. Nous mesurons à l'aide du SPIDER les profils temporels des impulsions pour différents diamètres du diaphragme inséré sur le trajet du laser avant la lentille de focalisation (cf Figure 3.11).



Figure 3.11 : Profils temporels de l'intensité laser correspondant aux impulsions issues de l'optimisation  $\Phi$ =16 mm (courbe verte),  $\Phi$ =18,5 mm (courbe bleue),  $\Phi$ =20 mm (courbe rouge) ; l'impulsion laser avant les optimisations (courbe noire).

Par cette technique, le flux de photons est augmenté **d'un facteur 3 pour l'harmonique 25**. L'optimum n'est pas obtenu pour une impulsion étroite mais pour une impulsion dont le front avant est moins abrupt. Plus le diamètre du diaphragme augmente, plus la pente s'adoucit. Ce résultat contre-intuitif est bien expliqué par le fait que l'accord de phase transitoire est optimisé dans ce cas [5,8,9]. En effet, une trop grande densité de puissance (ou intensité) dégrade l'accord de phase à cause de l'ionisation trop importante. Il faut alors élargir l'impulsion au niveau du front avant pour diminuer cette ionisation.

#### 3.3.5.3 Contrôle actif de la phase spatiale pour l'optimisation de la ligne harmonique

Nous avons aussi utilisé un miroir déformable, couplé à l'analyseur de front d'onde Shack-Hartmann pour optimiser le flux des harmoniques. Nous avons utilisé le même algorithme génétique, décrit précédemment : les paramètres de contrôle sont les valeurs de tension à appliquer aux actionneurs piezo-électriques du miroir déformable. P. Villoresi *et al.* [52] et D. Yoshitomi *et al.* [53] ont démontré la possibilité d'augmenter le signal harmonique à l'aide du miroir déformable. Nous avons reproduit leurs expériences pour les harmoniques élevées générées dans le Néon et dans l'Argon.

Pour les harmoniques très élevées autour de l'ordre 43 (générées dans le Néon), nous **avons augmenté le signal d'un facteur 3**. La distorsion de la phase spatiale mesurée par l'analyseur de front d'onde Shack-Hartmann est de  $\lambda/17$  rms alors qu'elle est de  $\lambda/5$  avant optimisation ( $\lambda = 0,81$  µm). Nous avons alors démontré une très bonne correction de front d'onde permettant d'augmenter l'énergie dans la tache focale du laser IR et de diminuer la taille de la tache focale. Dans ce cas, l'intensité du laser IR est plus importante, permettant de générer plus de photons harmoniques.


Figure 3.12 : Le signal harmonique généré dans l'Argon intégré pour chaque ordre (figure correspondante à une cellule de génération placée à z = 2 mm après le plan focal).

Pour les harmoniques autour de l'ordre 25, générées dans l'Argon, nous avons démontré que le signal harmonique est aussi **multiplié par un facteur 3** (cf Figure 3.12) [9,45]. La mesure de la distorsion de la phase donne une valeur plus grande qu'avant optimisation, avec encore plus d'astigmatisme. La tache focale correspondante est alors plus grande suivant l'axe de propagation, correspondant à une plus grande zone de Rayleigh. Nous avons aussi démontré que l'accord de phase est amélioré. Les harmoniques sont alors générées plus efficacement.

### 3.3.6 Conclusion

En conclusion, nous pouvons obtenir un flux de photons plus important en contrôlant le champ du laser IR, ou en ajoutant un deuxième faisceau laser à la fréquence double. Les expériences futures ont retenu le schéma  $\omega/2\omega$  plus simple à mettre en œuvre que les deux techniques de contrôle optimal. De plus, nous pouvons atteindre des signaux harmoniques à des longueurs d'onde plus courtes avec une efficacité suffisante pour les applications [54].

### 3.4 Optimisation de la focalisation des harmoniques d'ordre élevé

#### 3.4.1 Introduction

Nous cherchons à optimiser la focalisation des harmoniques. De part leur faible longueur d'onde, nous ne pouvons pas utiliser des lentilles. Les optiques de focalisation que nous devons employer doivent être utilisées en réflexion. Elles sont traitées spécifiquement pour une gamme de longueur d'onde donnée [55]. De plus, nous devons travailler avec des impulsions femtosecondes, voire attosecondes. Les optiques multicouches généralement utilisées pour le domaine XUV apportent des distorsions temporelles [56]. Il faut alors utiliser des optiques adaptées :

- miroir torique
- miroir parabolique hors axe

#### 3.4.2 Focalisation par un miroir torique

Nous avons mesuré la taille de la tache focale des six harmoniques générées dans une cellule remplie d'Argon (H17 à H27) en focalisant ces faisceaux sur une cible constituée d'un cristal de YAG :Ce à l'aide d'un miroir torique. Nous acquérons cette fluorescence du matériau à l'aide d'une caméra CCD visible (à 550 nm). La calibration de la caméra à l'aide d'une grille dont les dimensions ont été mesurées au microscope électronique nous permet de mesurer la taille de la

tache focale. Elle est de l'ordre de 3 µm, ce qui est proche de la limite de diffraction compte tenu des aberrations importantes dues au miroir torique utilisé dans notre configuration expérimentale. Nous observons sur la Figure 3.13 la forme d'aigrette de la tache focale XUV, forme typique provenant de la coma introduite par le miroir torique [15].



Figure 3.13 : Image de la tache focale XUV visualisée à l'aide de la fluorescence du cristal de YAG, obtenue après focalisation avec un miroir torique.

L'énergie disponible dans la tache focale est alors réduite, il convient d'utiliser un autre dispositif optique de focalisation.

# 3.4.3 Focalisation par un miroir parabolique hors axe

Nous avons alors testé la focalisation par un miroir parabolique hors axe, de longueur focale égale à 70 mm. Les harmoniques sont générées dans une cellule remplie d'argon. Le faisceau harmonique est réfléchi par le miroir parabolique sur une partie du miroir polie à  $\lambda$ /50 sur lequel est déposée une couche de Chrome (Cr), élément souvent utilisé pour les miroirs XUV [55].



Figure 3.14 : Focalisation du faisceau XUV par un miroir parabolique hors axe.

La tache focale est mesurée de la même façon que pour le miroir torique. A l'aide de la fluorescence sur le cristal YAG:Ce et d'une caméra CCD visible de grande dynamique, nous avons mesuré une tache focale de 2.5 µm de diamètre de bien meilleure qualité (cf Figure 3.14). L'énergie dans la tache représente 80% de l'énergie incidente, ce qui conduit à des intensités focalisées sur cible de l'ordre de **10**<sup>14</sup> **W/cm**<sup>2</sup> si on considère un train d'impulsions attosecondes [2].



*Figure* 3.15 : *Tache focale XUV obtenue par focalisation des harmoniques par un miroir parabolique hors axe* 

Cette valeur, très prometteuse, est comparable aux intensités obtenues sur synchrotron pour la même gamme de longueur d'onde. Elle permettra plusieurs applications utilisant les harmoniques comme source cohérente de rayonnement XUV telles que l'étude du mouvement électronique dans l'atome, étude des transitions électroniques dans les molécules, l'optique non-linéaire dans le domaine XUV, ablation laser...

### 3.4.4 Contrôle du front d'onde harmonique par miroir déformable

y

Au LOA, nous avons développé un analyseur de front d'onde Hartmann [57] fonctionnant dans le domaine spectral XUV, en collaboration avec la société Imagine Optic et l'équipe de M. Idir du synchrotron SOLEIL. Cet analyseur permet de mesurer les fronts d'onde des harmoniques d'ordre élevé. Des expériences préliminaires ont montré que la distorsion de front d'onde reproduit celle du laser IR : la phase spatiale des harmoniques présente de l'astigmatisme comme celle du laser excitateur. De plus, elle dépend très peu des différents paramètres de génération.

Nous avons réalisé une expérience de contrôle de la phase spatiale des harmoniques en modifiant le front d'onde du laser IR, à l'aide d'un miroir déformable. Dans un premier temps, nous corrigeons le front d'onde du faisceau IR jusqu'à des distorsions de  $\lambda/7$  rms ( $\lambda = 800$  nm). Le front d'ondes des harmoniques mesuré après correction reste très distordu. En appliquant la boucle de rétroaction ente le miroir déformable et l'analyseur de front d'onde Shack-Hartmann (utilisé pour la mesure du front d'onde IR) avec un degré croissant d'astigmatisme, nous avons démontré que les distorsions du front d'onde du faisceau harmonique suivent celles du faisceau IR. Néanmoins le meilleur front d'onde XUV obtenu n'est pas mesuré pour une distorsion minimale du front d'onde IR. Nous avons mesuré une correction de distorsion de  $\lambda/7$  rms avec  $\lambda = 32$  nm [16,17].



*Figure 3.16 : (a) mesure de la phase spatiale de l'harmonique 25 (32 nm) par l'analyseur de front d'onde Hartmann et (b) reconstruction de la tache focale XUV correspondante.* 

La figure 3.16 (a) montre la mesure de la phase spatiale de l'harmonique 25 (à 32 nm), démontrant un astigmatisme résiduel. Le logiciel permet de reconstruire directement la tache focale XUV correspondante (figure 3.16 (b)). Cette valeur de dispersion permet de montrer que nous pouvons mesurer des défauts de surface avec une meilleure précision qu'avec des rayonnements à plus grande longueur d'onde. La source basée sur la génération d'harmoniques élevées est donc un bon candidat pour la métrologie des optiques XUV.

### 3.4.5 Conclusion

Tous ces développements expérimentaux permettent d'obtenir une source cohérente de photons XUV pour les applications.

### 3.5 Expérience d'application de la source harmonique à plus courte longueur d'onde

J'aborde maintenant une expérience d'application des harmoniques d'ordre élevé comme source XUV cohérente : l'imagerie dynamique de domaines magnétiques d'échantillon de Cobalt excités par laser femtoseconde. Cette expérience fait l'objet d'une collaboration entre l'équipe de Jan Lüning du Laboratoire de Physique Chimie – Rayonnement Matière (UMR 7614), l'équipe de Hamed Merdji au Service des Photons Atomes et Molécules/CEA Saclay et notre équipe, dans le cadre d'un projet soutenu par l'ANR (FEMTO-X-MAG) et le RTRA Triangle de la Physique (IMMAGE). J'ai participé à d'autres expériences d'application de la source harmonique [22-25]. J'ai choisi de ne développer que cette expérience car elle donne lieu à une collaboration pérenne entre ces équipes et que cette recherche continue même après mon départ du LOA.

Ce projet repose sur l'expertise de notre équipe dans l'imagerie de structures submicrométriques à l'aide de rayonnement harmonique [58]. Des expériences précédentes ont aussi démontré l'intérêt du rayonnement harmonique pour sonder les processus dynamiques à une échelle temporelle inégalée [23].

L'intérêt de cette étude est de comprendre la dynamique femtoseconde de retournement des spins lorsque l'échantillon est soumis à un champ laser femtoseconde [59-61]. Une première expérience de démonstration a été réalisée par l'équipe de H. Kapteyn et M. Murnane à Boulder (USA) sur des échantillons de Fer et Nickel [60].

Le champ laser d'excitation et le champ laser de génération des harmoniques proviennent du même système : laser Ti:Sa délivrant les impulsions IR d'environ 40 fs de durée, de quelques mJ d'énergie à 1 kHz de taux de répétition. Ceci assure la synchronisation entre l'excitation et la sonde harmonique. L'échantillon de Cobalt à étudier présente un seuil d'absorption M à 60 eV (20 nm). Avec la source harmonique générée dans le néon, nous pouvons atteindre cette longueur d'onde. Dans un premier temps, nous générons l'harmonique H39 à 20 nm seulement à l'aide du faisceau IR.

Dans un premier temps, nous avons démontré que le signal de l'harmonique H39 avait atteint la valeur nécessaire pour cette application. Des mesures réalisées à l'aide d'une caméra CCD fonctionnant dans le domaine XUV montrent que le signal à 60 eV est 50 fois plus faible qu'à 40 eV (harmonique 25 générée dans l'argon).

Pour obtenir une polarisation circulaire, nous ne pouvons pas simplement rendre le faisceau IR de génération de polarisation circulaire. En effet, il a été démontré que dans cette configuration, le signal harmonique chutait drastiquement dès lors que la polarisation n'était plus linaire [62]. Nous avons alors développé un dispositif comportant quatre miroirs en or. La réflexion sur chaque miroir permet de retarder une composante de polarisation par rapport à l'autre. Suivant l'angle d'incidence et l'angle de polarisation entrante, nous pouvons obtenir une polarisation elliptique, proche d'une polarisation circulaire. Des mesures de la polarisation en sortie du dispositif sont très

prometteuses et ont montré que nous pouvons obtenir 85% de polarisation circulaire avec 4,4 % de transmission du faisceau harmonique H39 (générée dans le Néon) après réflexion sur les 4 miroirs [21]. Nous avons aussi montré expérimentalement que les harmoniques plus basses aussi générées dans le Néon (H31 et H33) peuvent être polarisées circulairement à 100 % mais la transmission est légèrement plus faible (environ 3%). Ultérieurement, la méthode de génération à deux couleurs ( $\omega/2\omega$ ) décrite précédemment a permis d'augmenter le signal de cette harmonique. De façon surprenante, il est aussi possible contrôler la polarisation avec ce simple schéma [63]. Avec ce dispositif, nous pouvons atteindre un flux d'énergie de l'ordre de 30 nJ/s en sortie de polariseur, ce qui est suffisant pour cette application.



Figure 3.17 : Mesures du signal de l'harmonique 39 en fonction de l'angle  $\alpha$  entre la polarisation des harmoniques avant le polariseur (imprimée sur le champ IR avec une lame demi-onde) et l'axe horizontal pour différents angles  $\alpha$  (angle de l'analyseur par rapport à l'axe horizontal) sans (a) et avec (b) le polariseur constitué des 4 miroirs. Ces courbes montrent qu'avec le polariseur, les deux courbes pour  $\alpha = 45^{\circ}$  et 135°, sont presque superposées démontrant que la polarisation est quasicirculaire ( $\sigma$  + et  $\sigma$ -) (figure extraite de [21]).

Ce projet s'articule en quatre axes :

- Optimisation de la source harmonique à 60 eV, correspondant à l'harmonique d'ordre 39
- Obtention de la polarisation circulaire et mesures polarimétriques
- Imagerie des domaines magnétiques
- Expérience Pompe-Sonde et imagerie dynamique

Au moment où j'ai quitté le LOA, nous avions démontré que le signal de l'harmonique H39 avait atteint la valeur nécessaire pour cette application. Des mesures réalisées à l'aide d'une caméra CCD fonctionnant dans le domaine XUV montrent que le signal à 60 eV est 50 fois plus faible qu'à 40 eV (harmonique 25 générée dans l'argon).

Cette expérience s'inscrit dans la continuité de l'expertise de l'équipe sur le développement de source XUV basée sur la génération d'harmonique. Mes compétences acquises sur la théorie des harmoniques d'ordre élevé sont mises à profit lors des expériences améliorant la source ou utilisant la source XUV.

### **3.6 Conclusion**

Un travail s'écoulant sur une dizaine d'année a permis d'optimiser la source XUV : c'est forcément un travail d'équipe de part la complexité de mise en œuvre des expériences. Chacun contribue aux résultats, soit en participant aux expériences très longues (parfois la nuit), soit en modélisant les effets physiques observés. J'ai contribué à ces expériences et aux modélisations, surtout en ce qui concerne les harmoniques « anormales », le contrôle de la focalisation et le contrôle optimal des harmoniques. Les études et les résultats sur développement de la source ont été décrits dans 25 publications et présentés oralement dans 12 conférences.

Il faut noter que la communauté des « harmoniciens » recherche aussi à optimiser la source en terme de durée des impulsions XUV, en utilisant des lasers de plus courtes durées d'impulsion (5 à 10 fs) et avec une stabilisation de la phase de la porteuse par rapport à l'enveloppe de l'impulsion (dite CEP pour "Carrier Envelope Phase") [64].

Au final, nous disposons d'une source cohérente XUV avec un contrôle de la gamme spectrale, dépendant de l'atome de génération, la polarisation (linéaire ou circulaire), le nombre de photons sur cible ainsi que la qualité de la focalisation. L'expertise de notre équipe repose sur l'optimisation de la source pour les expériences pompe-sonde, qui requièrent la synchronisation du laser d'excitation (IR) et la sonde XUV [23]. La mise en œuvre de ces expériences est facilitée par le fait que ces deux sources proviennent du même laser. Le contrôle de la polarisation est aussi primordial pour certaines applications [54].

#### Références

- [1] S. Kazamias, F. Weihe, D. Douillet, C. Valentin, T. Planchon, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, and Ph. Balcou, *High order harmonic generation optimisation with an apertured laser beam*, Eur. Phys. J. D 21, pp 353-359 (2002)
- [2] S. Kazamias, D. Douillet, C. Valentin, Th. Lefrou, G. Grillon, G. Mullot, F. Augé, P. Mercère, Ph. Zeitoun, and Ph. Balcou, *Optimization of the focused flux of high harmonics.*, Eur. Phys. J. D 26, 47 (2003)
- [3] S. Kazamias, D. Douillet, F. Weihe, C. Valentin, A. Rousse, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, and Ph. Balcou, *Global Optimization of High Harmonic Generation.*, Phys. Rev. Lett. **90**, 193901 (2003)
- [4] S. Kazamias, D. Douillet, C. Valentin, F. Weihe, F. Auge, Th. Lefrou, G. Grillon, S. Sebban, Ph. Balcou, Observation of high contrast coherence fringes in high order harmonic generation., Phys. Rev. A 68, 033819 (2003)
- [5] Sophie Kazamias, *Optimisation d'une ssource d'harmoniques d'ordres élevés pour l'optique non-linéaire dans l'extrême UV.*, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique (2003)
- [6] C. Valentin, S. Kazamias, D. Douillet, G. Grillon, T. Lefrou, F. Augé, S. Sebban, and P. Balcou, *Experimental observation of anomalous high harmonics at low intensities.*, Appl. Phys. B 78, pp 845.849 (2004)
- [7] C. Valentin, S. Kazamias, D. Douillet, G. Grillon, Th. Lefrou, F. Augé, M. Lewenstein, J.F. Wyart, S. Sebban and Ph. Balcou, *Anomalous high.order harmonic generation*, Journal of Physics B: Atomic Molecular and Optical Physics **37**, pp 2661-2675 (2004)
- [8] Boyko O., Planchon T.A., Valentin C., Douillet D., Reitze D., Kazamias S., Sebban S., Balcou P., Spectral tailoring of high harmonic generation by adaptative methods., Laser Physics 15, pp 616.619 (2005)
- [9] C. Valentin, O. Boyko, E. Papalazarou, G. Rey, B. Mercier, L. Antonucci, P. Balcou, *Optimization of High Harmonic Generation by Genetic Algorithm.*, Acta Physica Hungarica A) Heavy Ion Physics **26**, 335 (2006)
- [10] O. Boyko, C. Valentin, B. Mercier, Ch. Coquelet, V. Pascal, E. Papalazarou, G. Rey and Ph. Balcou, *Systematic study of high harmonic control by temporal pulse shaping of laser pulses: major mechanisms of optimization*, Phys. Rev. A **76**, 063811 (2007)
- [11] G Lambert, J Gautier, C P Hauri, Ph Zeitoun, C Valentin, T Marchenko, F Tissandier, J Ph Goddet, M Ribiere, G Rey et al., An optimized kHz two-colour high harmonic source for seeding free-electron lasers and plasma-based soft x-ray lasers, New Jour. of Phys. 11, 083033 (2009)
- [12] G. Lambert, F. Tissandier, J. Gautier, C. P. Hauri, P. Zeitoun, C. Valentin, T. Marchenko, J..P. Goddet, M. Ribière, A. Sardinha, M. Fajardo, F. Hamouda, G. Maynard, G. Rey and S. Sebban, *Aberration free high harmonic source generated with a two colour field.*, Eur. Phys. Lett. **89**, 24001 (2010)

- [13] G. Lambert, J. Gautier, C.P. Hauri, F. Tissandier, C. Valentin, A. Barszczak Sardinha, M. Fajardo, T. Marchenko, J.Ph. Goddet, M. Ribiere, G. Rey, S. Sebban and Ph. Zeitoun, An intense kHz and aberration free two colour high harmonic source for seeding FEL and XRL., X Ray Lasers 2010, Springer Proceedings in Physics 136, 203-208 (2011)
- [14] Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, Ph. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lachèze.Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A.S. Morlens, J. P. Rousseau, and C. Valentin, A high.intensity highly coherent soft X.ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam., Nature 431, pp 426-429 (2004)
- [15] C. Valentin, D. Douillet, S. Kazamias, Th. Lefrou, G. Grillon, F. Augé, G. Mullot, Ph. Balcou, P. Mercère, and Ph. Zeitoun, *Imaging and quality assessment of high harmonic focal spots*, Opt. Lett. 28, 1049.1051 (2003)
- [16] C. Valentin, J. Gautier, J.-Ph. Goddet, Ch. Hauri, T. Marchenko, E. Papalazarou, G. Rey, S. Sebban, et al., High order harmonic wave fronts generated with controlled astigmatic infrared laser., J. Opt. Soc. Am. B25, B161 (2008)
- [17] J. Gautier, Ph. Zeitoun, A.-S. Morlens, G. Rey, C. Valentin, E. Papalarazou, Ch. Hauri, J.-Ph. Goddet, S. Sebban, *et al.*, *Optimization of the wave front of high order harmonics.*, Eur. Phys. J. D 48, 459–463 (2008)
- [18] P. Johnsson, R. Lopez-Martens, S. Kazamias, J. Mauritsson, C. Valentin, T. Remetter, K. Varju, M. B. Gaarde, Y. Mairesse, H. Wabnitz, P. Salieres, Ph. Balcou, K. J. Schafer, and A. L'Huillier, *Attosecond Electron Wave Packet Dynamics in Strong Laser Fields*, Phys. Rev. Lett. **95**, 013001 (2005)
- [19] P. Johnsson, K. Varju, T. Remetter, E. Gustafsson, J. Mauritsson, R. Lopez-Martens, S. Kazamias, C. Valentin, Ph. Balcou, M. B. Gaarde, K. J. Schafer, and A. L'Huillier, *Trains of attosecond electron wave packets*, J. Mod. Opt., **53**, 233-245 (2006)
- [20] Anne-Sophie Morlens, Philippe Balcou, Philippe Zeitoun, Constance Valentin, Vincent Laude, Sophie Kazamias, *Compression of attosecond harmonic pulses by extreme-ultraviolet chirped mirrors.*, Opt. Lett. **30**, 1554 (2005)
- [21] Boris Vodungbo, Anna Barszczak Sardinha, Julien Gautier, Guillaume Lambert, Constance Valentin, Magali Lozano, Grégory Iaquaniello, Franck Delmotte, Stéphane Sebban, Jan Lüning, Philippe Zeitoun, Polarization control of high order harmonics in the EUV photon energy range., Optics Express 19, 4346 (2011)
- [22] O. Guyétand, M. Gisselbrecht, A. Huetz, P. Agostini, R. Taïeb, V. Véniard, A. Maquet, L. Antonucci, O. Boyko, C. Valentin, and D. Douillet, *Multicolour above-threshold ionization of helium: quantum interference effects in angular distributions.*, Journal of Physics B: Atomic Molecular and Optical Physics **38**, L357 (2005)
- [23] E. Papalazarou, D. Boschetto, J. Gautier, T. Garl, C. Valentin, G. Rey, Ph. Zeitoun, A. Rousse, Ph. Balcou, and M. Marsi, Probing coherently excited optical phonons by extreme ultraviolet radiation with femtosecond time resolution, Appl. Phys. Lett. **93**, 041114 (2008); E. Papalazarou, D. Boschetto, J. Gautier, C. Valentin, M. Marsi, Ph. Zeitoun, and Ph. Balcou, Probing coherent phonon by Extreme Ultraviolet radiation based on high-order harmonic generation.,Ultrafast Phenomena XVI, Springer Series in Chemical Physics **92**, 301 (2009)

- [24] J. Chalupský, L. Juha, V. Hájková, J. Cihelka, L. Vyšín, J. Gautier, J. Hajdu, S. P. Hau-Riege, M. Jurek, J. Krzywinski, R. A. London, E. Papalazarou, J. B. Pelka, G. Rey, S. Sebban, R. Sobierajski, N. Stojanovic, K. Tiedtke, S. Toleikis, T. Tschentscher, C. Valentin, H. Wabnitz, and P. Zeitoun, *Non-thermal desorption/ablation of molecular solids induced by ultra-short soft x-ray pulses.*, Optics Express **17**, 208 (2009)
- [25] J. Chalupský, L. Juha, V. Hájková, and J. Cihelka, L. Vysin, J. Gautier, J. Hajdu, S. P. Hau-Riege, M. Jurek and J. Krzywinski, Ri. A. London, E. Papalazarou, J. B. Pelka, G. Rey and S. Sebban, R. Sobierajski, N. Stojanovic, K. Tiedtke, S. Toleikis, and T. Tschentscher, C. Valentin, H. Wabnitz, P. Zeitoun, *Response of molecular solids to ultra-intense femtosecond soft x-ray pulses*. Proc. SPIE, Vol. **7361**, 736108 (2009)
- [26] M. Schnürer, Z. Cheng, M. Hentschel, G. Tempea, P. Kálmán, T. Brabec, and F. Krausz, Absorption-Limited Generation of Coherent Ultrashort Soft-X-Ray Pulses., Phys. Rev. Lett. 83, 722 (1999)
- [27] C. G. Durfee, III, A. R. Rundquist, S. Backus, C. Herne, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Phase Matching of High-Order Harmonics in Hollow Waveguides.*, Phys. Rev. Lett. 83, 2187 (1999)
- [28] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mével, Ch. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin, and P. Agostini, *Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases: Model and Experiment*, Phys. Rev. Lett. **82**, 1668 (1999)
- [29] E. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, *Generation of 10-μJ coherent extremeultraviolet light by use of high-order harmonics.*, Phys. Rev. A **66**, 021802 (R) (2002)
- [30] J.-F. Hergott, M. Kovacev, H. Merdji, C. Hubert, Y. Mairesse, E. Jean, P. Breger, P. Agostini, B. Carré, and P. Salières, *Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range.*, Phys. Rev. A **66**, 021801 (R) (2002)
- [31] M. Lewenstein, P. Salières, and A. L'Huillier, *Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation.*, Phys. Rev. A **52**, 4747 (1995)
- [32] C. Valentin, S. Kazamias, D. Douillet, T.Lefrou, F. Auge-Rochereau, et al., Étude de la génération d'harmoniques anormales d'ordre élevé à basse intensité., J. de Phys. IV 127, pp.181-185 (2005)
- [33] Schafer, K. J., Gaarde, M. B., Heinrich, A., Biegert, J. and Keller, U. *Strong Field Quantum Path Control Using Attosecond Pulse Trains.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 23003 (2004)
- [34] M. B. Gaarde, K. J. Schafer, A. Heinrich, J. Biegert, and U. Keller, *Large enhancement of macroscopic yield in attosecond pulse train–assisted harmonic generation.*, Phys. Rev. A 72, 013411 (2005)
- [35] F. Brizuela, C. M. Heyl, P. Rudawski, D. Kroon, L. Rading, J. M. Dahlström, J. Mauritsson, P. Johnsson, C. L. Arnold and A. L'Huillier, *Efficient high-order harmonic generation boosted by below-threshold harmonics.*, Scientific Rep. **3**, 1410 (2013)
- [36] I J Kim, C M Kim, H T Kim, G H Lee, Y S Lee, J Y Park, D J Cho, and C H Nam, *Highly efficient high-harmonic generation in an orthogonally polarized two-color laser field*. Phys. Rev. Lett. **94**, 243901 (2005)

- [37] J. Mauritsson, P. Johnsson, E. Gustafsson, A. L'Huillier, K. J. Schafer, and M. B. Gaarde, Attosecond Pulse Trains Generated Using Two Color Laser Fields., Phys. Rev. Lett. 97, 013001 (2006)
- [38] G. Lambert, T. Hara, D. Garzella, T. Tanikawa, M. Labat, B. Carré, et al., Injection of harmonics generated in gas in a free electron laser providing intense and coherent extreme ultraviolet light., Nat. Phys. 4, 889 (2008)
- [39] G. Lambert, T. Hara, M. Labat, T. Tanikawa, Y. Tanaka, M. Yabashi, D. Garzella, B. Carré and M. E. Couprie, *Seed level requirement for improving the temporal coherence of a Free Electron Laser*, Eur. Phys. Lett. **88**, 54002 (2009)
- [40] J. Ph. Goddet, S. Sebban, A. S. Morlens, J. Gautier, J. Ph. Rousseau, F. Burgy, Ph. Zeitoun, C. Valentin, *et al.*, *Demonstration of a spatial filtering amplifier for high.order harmonics.*, Opt. Lett. **32**, 1498 (2007) ; J. Ph. Goddet, S. Sebban, Ph. Zeitoun, J. Gautier, C. Valentin, F. Tissandier, T. Marchenko, G. Lambert, *et al.*, *Spatial Filtering of High Order Harmonics by an OFI Plasma Amplifier*, Proceedings in Physics **130**, 153 (2009)
- [41] G. Lambert, B. Vodungbo, J. Gautier, B. Mahieu, V. Malka, S. Sebban, P. Zeitoun, J. Luning *et al., Towards enabling femtosecond helicity-dependent spectroscopy with high-harmonic sources*, Nat. Commun. 6:6167 doi: 10.1038/ncomms7167 (2015)
- [42] S. Sebban, T. Mocek, D. Ros, L. Upcraft, Ph. Balcou, R. Haroutunian, G. Grillon, B. Rus, A. Klisnick, A. Carillon, G. Jamelot, C. Valentin, et al., Demonstration of a Ni-Like Kr Optical-Field-Ionization Collisional Soft X-Ray Laser at 32.8 nm, Phys. Rev. Lett. 89, 253901 (2002)
- [43] F. Tissandier, S. Sebban, M. Ribière, J. Gautier, Ph. Zeitoun, G. Lambert, A. Barszczak Sardinha, J.-Ph. Goddet, F. Burgy, T. Lefrou, C. Valentin, and A. Rousse, *Observation of spectral gain narrowing in a high-order harmonic seeded soft-x-ray amplifier*, Phys. Rev A 81, 063833 (2010)
- [44] A. Depresseux, E. Oliva, J.Gautier, F.Tissandier, J.Nejdl *et al.*, *Table-top femtosecond soft X-ray laser by collisional ionization gating*, Nat. Photon. **9**, 817 (2015)
- [45] Olga Boyko, *Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordre élevé par contrôle actif du laser générateur.*, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique (2006)
- [46] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, Ch. Spielmann, P. Tournois, Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter: pulse compression and shaping, Opt. Lett. 25, 575 (2000); http://www.fastlite.com/en/ar824665-823529-Dazzler.html?Cookie=set
- [47] https://www.cilas.com/sites/default/files/public/media/panes/cilas\_adaptive\_optics.pdf
- [48] D. H. Reitze, S. Kazamias, F. Weihe, G. Mullot, D. Douillet, F. Augé, O. Albert, et al., Enhancement of High Order Harmonic Generation at Tuned Wavelengths Via Adaptive Control, Optics Lett. 29, 86-88 (2004)
- [49] Ch. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnürer, C. Kan, M. Lenzner, P. Wobrauschek, F. Krausz, Generation of Coherent X-rays in the Water Window Using 5-Femtosecond Laser Pulses, Science 278, 661 (1997)

- [50] C. Dorrer, B. de Beauvoir, C. Le Blanc, S. Ranc, J-P. Rousseau, P. Rousseau, J-P. Chambaret, and F. Salin, Single-shot real-time characterization of chirped-pulse amplification systems by spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction, Opt. Lett. 24 (22), 1644-1646 (1999)
- [51] O. Boyko, C. Valentin, G. Rey, L. Antonucci, Ph. Balcou, *Temporal superresolution of ultrashort laser pulses*, Opt. Express **13**, 8222 (2005)
- [52] P. Villoresi, S. Bonora, M. Pascolini, L. Poletto, G. Tondello, C. Vozzi, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, and S. De Silvestri, *Optimization of high-order harmonic generation by adaptive control of a sub-10-fs pulse wave front.*, Opt. Lett. **29**, 207 (2004)
- [53] D. Yoshitomi, J. Nees, N. Miyamoto, T. Sekikawa, T. Kanai, G. Mourou, S. Watanabe, *Phase-matched enhancements of high-harmonic soft X-rays by adaptive wave-front control with a genetic algorithm.*, Appl. Phys. B 78, 275–280 (2004)
- [54] B. Vodungbo, J. Gautier, G. Lambert, A. Barszczak Sardinha, M. Lozano, S. Sebban, M. Ducousso, W.Boutu *et al.*, *Laser-induced ultrafast demagnetization in the presence of a nanoscale magnetic domain network.*, Nat. Commun. **3**, 999 (2012)
- [55] Franck Delmotte, *Couches minces et optiques multicouches dans le domaine spectral XUV (1 nm à 60 nm)*, Habilitation à Diriger des Rercherches de l'université Paris-Sud (2010)
- [56] C. Bourassin-Bouchet, *Optiques pour les impulsions attosecondes*, thèse de doctorat de l'université Paris-Sud (2011)
- [57] Pascal Mercère, Philippe Zeitoun, Mourad Idir, Sébastien Le Pape, Denis Douillet, Xavier Levecq, Guillaume Dovillaire, Samuel Bucourt, Kenneth A. Goldberg, Patrick P. Naulleau, and Senajith Rekawa, *Hartmann wave-front measurement at 13.4 nm with*  $\lambda_{EUV}/120$  accuracy, Opt. Lett. **28**, 1534 (2003)
- [58] Anne-Sophie Morlens, Julien Gautier, Gilles Rey, Philippe Zeitoun, Jean-Pascal Caumes, Marylène Kos-Rosset, Hamed Merdji, Sophie Kazamias, Kevin Cassou, Marta Fajardo, *Submicrometer digital in-line holographic microscopy at 32 nm with high-order harmonics*. Opt. Lett. **31**, pp 3095-3097 (2006)
- [59] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, *Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel*, Phys. Rev. Lett. **76**, 4250 (1996)
- [60] Chan La-O-Vorakiat, Mark Siemens, Margaret M. Murnane, Henry C. Kapteyn, Stefan Mathias, Martin Aeschlimann, Patrik Grychtol, Roman Adam, Claus M. Schneider, Justin M. Shaw, Hans Nembach, and T. J. Silva, Ultrafast Demagnetization Dynamics at the M Edges of Magnetic Elements Observed Using a Tabletop High-Harmonic Soft X-Ray Source, Phys. Rev. Lett. 103, 257402 (1999)
- [61] B. Koopmans, M. van Kampen, J. T. Kohlhepp, and W. J. M. de Jonge, *Ultrafast Magneto-Optics in Nickel: Magnetism or Optics?*, Phys. Rev. Lett. **85**, 844 (2000)
- [62] K.S. Budil, P. Salières, Anne L'Huillier, T. Ditmire, M.D. Perry, *Influence of ellepticity on harmonic generation*, Phys. Rev. A **48**, R3437 (1993)

- [63] S. Stremoukhov, A. Andreev, B. Vodungbo, P. Salières, B. Mahieu, and G. Lambert, *Origin of ellipticity of high-order harmonics generated by a two-color laser field in the cross-polarized configuration*, Phys. Rev. A **94**, 013855 (2016)
- [64] F. Krausz and M. Ivanov, Attosecond physics, Rev. Mod. Phys. 81, 163–234 (2009)

# Chapitre 4 : Génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les fibres kagomé

### 4.1 Introduction

Compte-tenu de mon expertise dans la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les cellules de gaz, un de mes objectifs en arrant au PhLAM après ma mutation était de générer ces harmoniques dans les fibres à cœur creux dites kagomé remplies de gaz rare. Le but est d'augmenter le signal harmonique par rapport à une génération en espace libre en augmentant la longueur d'interaction, qui ne sera plus limitée par la focalisation du faisceau laser et donc de la distance de Rayleigh. Une expérience de démonstration a été réalisée par l'équipe d'U. Keller à Zürich [1] en collaboration avec F. Benabid. Elle montre que l'on peut générer jusqu'à l'harmonique 13 dans le xénon à partir d'un laser IR femtoseconde ( $\lambda$  = 800 nm). Néanmoins l'efficacité de conversion mesurée est extrêmement faible (de l'ordre de 10<sup>-9</sup>) en comparaison des valeurs communément mesurées (quelques 10<sup>-5</sup> pour l'harmonique 25 générée dans l'argon). Plusieurs facteurs peuvent limiter le signal, c'est pourquoi une étude théorique de la génération d'harmoniques dans les fibres a été pour moi très importante pour comprendre cette limitation. Malheureusement, je n'ai pas encore pu réaliser l'expérience prévue en collaboration avec le Centre Lasers Intenses et Applications (CELIA, Bordeaux), faute de temps.

Depuis quelques années, plusieurs expériences de génération d'harmoniques d'ordre élevé ont été réalisées à l'aide de capillaires creux [2-5]. Les expériences récentes ont démontré une efficacité de génération importante même pour les ordres élevés. D'autres développements ont été réalisés dans les fibres à cœur creux microstructurées et les fibres kagomé mais sans génération d'harmoniques [6-10]. Je souhaite donc démontrer les avantages d'utiliser les fibres kagomé pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

Dans ce chapitre, j'expose les étapes pour bien comprendre les limitations du signal harmonique généré dans une fibre à cœur creux remplie de gaz rare. Dans un premier temps, je rappelle les conditions de guidage dans un capillaire creux et dans une fibre kagomé. Dans un deuxième temps, je développe la théorie de l'accord de phase des harmoniques générées dans une fibre kagomé. Finalement, je liste les difficultés à surmonter pour la réalisation d'une éventuelle expérience avant de conclure.

### 4.2 L'intérêt de la fibre kagomé par rapport au capillaire pour le guidage

Dans un capillaire, l'indice du cœur est plus faible que l'indice de la gaine : on se retrouve dans les conditions d'un anti-guide. Il a été démontré que seuls les modes hybrides  $HE_{mn}$  sont guidés [8]. Après résolution de l'équation caractéristique (continuité des champs aux interfaces), la constante de propagation des modes est alors donné par :

$$\beta_{mn} \approx \frac{2 \pi}{\lambda} \left[ n - \frac{1}{2} \left( \frac{u_{mn}}{k r} \right)^2 \right]$$
(4.1)

où n est l'indice du milieu à l'intérieur du capillaire (proche de 1 pour un gaz), u<sub>mn</sub> = n-ième racine de l'équation  $J_{m-1}(u_{mn}) = 0$  où  $J_{m-1}$  est la fonction de Bessel d'ordre m-1, r, le rayon du capillaire et k = 2 π/λ. Les pertes (absorption des parois en silice) sont données par :

$$\alpha \approx \frac{(u_{mn})^2 v}{4\pi^2} \frac{\lambda^2}{r^3} \qquad v = \frac{\frac{1}{2} \left( n_{Si}^2 + 1 \right)}{\sqrt{n_{Si}^2 - 1}}$$
(4.2)

49

Nous voyons que les pertes sont d'autant plus importantes que le rayon du capillaire est petit. Elles peuvent atteindre 50 dB/m pour un diamètre de 60 µm et sont supérieures à 100 dB/m pour un diamètre de 50 µm, ce qui limite la longueur des capillaires pour le guidage du rayonnement laser de génération.

Le principe de guidage dans une fibre Kagomé est bien plus complexe : il faut tenir compte de la structure de la gaine. Il a été démontré que les pertes sont importantes seulement lorsque la longueur d'onde est résonante avec les ponts de silice [11]. Les avantages d'utiliser ce type de guide pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé sont multiples : par rapport aux fibres microstructurées à cœur creux (guidage par Bande Interdite Photonique), les plages de longueur d'onde de guidage sont beaucoup plus étendues. Les pertes sont beaucoup plus faibles (< dB/m) [12]. De plus, l'indice effectif est décrit par un modèle analytique simple, développé par Marcatili et Schmelzer [13] pour les capillaires creux. Par la suite, nous prendrons la dispersion du capillaire pour calculer l'accord de phase (cf partie 4.4).

Nous nous intéresserons au mode fondamental  $HE_{11}$ , polarisé linéairement. Néanmoins des couplages avec les modes d'ordre supérieurs peuvent se produire, soit par injection de puissance de ces modes à l'entrée de la fibre, soit par interaction avec le gaz. Des battements existent entre ces modes, et l'intensité est alors modulée suivant l'axe de propagation de la fibre. Il est alors possible d'en tirer avantage pour exacerber le quasi-accord de phase [6,14], pour atteindre des harmoniques d'ordre très élevé générées avec des ions  $Ar^+$  permettant d'atteindr la fenêtre de l'eau (2-4 nm) [15].

#### 4.3 Simulations : accord de phase des harmoniques

D'après la théorie de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz, les facteurs qui peuvent limiter le signal sont le désaccord de phase entre la polarisation induite par le laser générateur et les harmoniques et l'absorption du rayonnement XUV par le gaz lui-même. De plus, un troisième facteur limitant peut apparaître dès que l'on propage le laser générateur dans une fibre : le recouvrement très faible entre le mode guidé du fondamental et les modes guidés des harmoniques.

#### 4.3.1 Hypothèses de calcul

Pour bien comprendre les mécanismes mis en jeu, il faut alors calculer le signal en tenant compte de ces trois problématiques. Pour cela, je me suis basée sur les développements d'E. Constant [16] et utilisés par S. Kazamias-Moucan [17], transposés dans le cas d'un faisceau laser de pompe guidé dans une fibre à cœur creux [18].

On suppose que les harmoniques générées se propagent principalement sur l'axe longitudinal de la fibre et que la taille du faisceau harmonique est toujours plus faible que celle du mode du laser générateur, avec une divergence plus faible : on néglige l'absorption des harmoniques par les ponts de silice.

Par contre, pour des ordres harmoniques peu élevés (inférieur à 11), il n'y a pas de guidage. Il s'ensuit que le recouvrement des modes n'est pas très important. En effet, même pour l'harmonique 3, P. St J. Russell et son équipe ont démontré que le recouvrement spatial des modes doit être contrôlé afin d'augmenter l'efficacité de conversion [8]. Pour des harmoniques d'ordre plus élevé, l'indice de réfraction de la silice pour une longueur d'onde inférieure à 70.8 nm est inférieur à 1. Sur la figure 4.1, l'indice et le coefficient d'absorption sont représentés en fonction de la longueur d'onde (10-60 nm). Les traits verticaux correspondent aux différents harmoiques impaires du laser fondamental à 800 nm. On voit sur cette figure que l'absorption du rayonnement XUV par la silice est très importante [19,20].

L'accord de phase fait intervenir les indices de réfraction de la pompe et de l'harmonique considérée. Il faut tenir compte de plusieurs termes [18] : la dispersion du gaz, la dispersion du guide, la dispersion des électrons créés lors de la génération d'harmonique d'ordre élevé. Il ne faut pas oublier la phase atomique accumulée par l'onde harmonique lors du processus de génération (cf chapitre 2 et annexe 2). Tous ces effets sont dynamiques : le calcul de l'accord de phase repose alors sur une simulation spatio-temporelle décrite dans différentes thèses [17,18,21]. Le coefficient d'absorption du rayonnement XUV par le gaz générateur est mesuré et calculé à l'aide du site web du Center for X-Ray Optics [22] : ce coefficient dépend de l'ordre de l'harmonique, de la pression du gaz et du type de gaz générateur.



*Figure 4.1 : Indice et coefficient d'absorption de la silice aux longueurs d'onde couvertes par les sources usuelles XUV (zoom de la courbe extraite de [19]).* 

Pour bien comprendre l'effet des différents paramètres, je vais détailler dans la prochaine partie les développements théoriques pour calculer l'accord de phase. Plusieurs étapes de calcul sont nécessaires pour valider les résultats obtenus.

#### 4.3.2 Accord de phase

On se propose de calculer l'accord de phase longitudinal (suivant l'axe de propagation). D'après la thèse de S. Kazamias-Moucan, une description 1D est suffisante pour comprendre les phénomènes observés.

On peut écrire :

$$\delta \vec{k} = \vec{k}_q - q\vec{k}_1 - \vec{K}_{at} \tag{4.3}$$

où  $k_q$  correspond au vecteur d'onde de l'harmonique q,  $k_l$ , le vecteur d'onde du fondamental et  $K_{at}$ , le vecteur d'onde correspondant à la phase du dipôle atomique (gradient de la phase atomique). La condition d'accord de phase est  $\delta k = 0$ . Le guidage dans la fibre impose le mode fondamental quasigaussien pour la pompe : si on considère que seul ce mode est guidé, il n'y a pas de gradient de densité de puissance (ou intensité) suivant la direction longitudinale (z). Vu que la phase atomique dépend de cette intensité (cf annexe 2), le gradient de la phase atomique est nul suivant la direction longitudinale ( $K_{at} = 0$ ). On prend en compte la dispersion chromatique pour les deux longueurs d'onde, ainsi que la dispersion dans un capillaire.

La dispersion dans la fibre pour le fondamental est donnée par :

$$n^{mn}(\lambda) \approx 1 + \left(\delta_{Ar}(\lambda) - \frac{n_e}{n_c(\lambda)}\right) \frac{p}{2p_0} - \frac{u_{mn}^2}{2k^2a^2}$$

$$(4.4)$$

La dispersion pour une HH d'ordre q est donnée par :

$$n^{m'n'}(q\lambda) \approx 1 + \left(\delta_{Ar}(\lambda/q) - \frac{n_e}{q^2 n_c(\lambda)}\right) \frac{p}{2 p_0} - \frac{u_{m'n'}^2}{2 q^2 k^2 a_q^2}$$
(4.5)

où p = pression du gaz,  $p_0$  = pression de référence (= 1bar),  $n_c(\lambda)$  = densité critique du plasma donnée par :

$$n_c = \frac{\left(\varepsilon_0 m_e \omega_0^2\right)}{e^2} \tag{4.6}$$

où  $\varepsilon_0$  = permittivité électrique du vide (8.85 10<sup>-12</sup> SI), e = charge de l'électron (1.6 10<sup>-19</sup> C) et  $\omega_0$  = pulsation du fondamental = 2  $\pi$  c/ $\lambda$ .

Dans les équations 4.4 et 4.5, on tient compte de la dispersion atomique du gaz  $\delta_{Ar}(\lambda=800 \text{ nm})$ [23] et  $\delta_{Ar}(\lambda/q)$  [22], de la dispersion électronique  $n_e/n_c$  avec  $n_e$  = densité électronique et  $n_c(\lambda)$  = densité critique à la longueur d'onde  $\lambda$  et de la dispersion du guide où a est le rayon équivalent du mode fondamental pour la pompe (rayon du guide) et  $a_q$  est le rayon équivalent pour l'harmonique d'ordre q. Par contre, on ne tient pas compte de l'effet Kerr optique  $(n_2 I)$  car pour la densité de puissance requise pour la génération d'harmoniques (1-2  $10^{14} \text{ W/cm}^2$ ), cet effet est négligeable par rapport aux autres contributions. Dans la thèse de S. Daboussi, les deux derniers termes de l'équation 4.5 ne sont pas pris en compte. En effet, nous pouvons négliger la dispersion électronique à la longueur d'onde harmonique  $\lambda/q$  par rapport aux autres termes. En ce qui concerne la dispersion du guide à  $\lambda/q$ , il conviendra de vérifier a posteriori si ce terme est déterminant ou non pour l'accord de phase.

On en déduit l'expression de l'accord de phase :

$$\delta k(t,r,z) = q \frac{2\pi}{\lambda} \Big[ n^{m'n'}(q\lambda) - n^{mn}(\lambda) \Big]$$
(4.7)

Remarque : on a supposé que le désaccord de phase transverse était négligeable par rapport au désaccord de phase longitudinal (équations A2.8 et A2.9 de l'annexe 2). Le seul terme à prendre en compte pour la phase transverse est le terme dû au gradient d'intensité provenant de la phase du dipôle atomique, définie dans l'annexe 2 ( $\phi_{at}$  (r,z,t) = - $\alpha$  I(r,z,t)). Cette phase atomique correspond au déphasage accumulé lors du passage de l'électron dans le continuum avant recombinaison. Pour le mode fondamental de la pompe guidé (EH<sub>11</sub>), le gradient transverse de l'intensité est faible :  $\delta$ k transverse ~ 10<sup>-8</sup>  $\delta$ k longitudinal (sauf quand la différence de dispersion  $\delta$ n = 0). Ce terme est donc négligeable dans le cas d'un milieu guidant.

Dans le cas où il n'y a pas de couplage de mode (seul le mode fondamental est guidé) et pour une pression constante, on s'attend à obtenir un désaccord de phase indépendant de z, se rapprochant

ainsi de la condition de limite d'absorption exposée dans [16]. A partir de l'expression de l'accord de phase, il est possible de définir une longueur de cohérence  $L_c$  correspondant à la longueur à partir de laquelle le déphasage entre le champ fondamental et le dipôle harmonique est égal à  $\pi$ . Cette longueur de déphasage est définie par :

$$L_c = \frac{\pi}{\left|\delta k\right|} \tag{4.7}$$

Si le milieu générateur est plus long que  $L_c$ , le signal harmonique est considérablement réduit à cause des interférences destructives entre les dipôles atomiques générés à des positions différentes dans le guide d'onde. Dans le cas d'une fibre, on cherche à augmenter la longueur d'interaction jusqu'à plusieurs cm, voire 1m, et donc à minimiser le désaccord de phase  $\delta k$ .

Remarques : lors de l'ionisation, le nombre d'atomes neutres diminue. Dans la simulation, on calcule à chaque instant et spatialement le nombre d'atomes neutres et d'électrons. On ne tient donc pas compte du taux d'ionisation dans les équations de dispersion, comme dans les thèses [18,21]. On néglige ici l'effet Kerr optique. Néanmoins, des mesures récentes du coefficient non-linéaire d'ordre 3 pour l'Argon remettent en cause la valeur de  $n_2$  généralement admise [24]. Elle serait même quasiment dix fois plus grande. Aux intensités utilisées pour la génération d'HH, le terme d'effet Kerr ne serait plus négligeable.

# 4.3.3 Première étape : résultats pour les harmoniques basses (H3) et validation du modèle

Dans le cas de l'harmonique 3 générée dans l'argon, l'intensité I requise est relativement faible (I <  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>). Pour cette valeur de I, le gaz n'est pas ionisé et il n'y a pas d'électrons, la dispersion due aux électrons est donc nulle. Il ne reste plus que la dispersion atomique et la dispersion du guide. On trouve que l'accord de phase est nul lorsque le mode de la troisième harmonique est différent du mode (fondamental) pour la pompe, ce qui a été démontré expérimentalement par l'équipe de Russell [8].



Figure 4.2 : Longueur de cohérence (en mm) pour l'harmonique 3 en fonction de l'ordre de la fonction de Bessel et de la pression du gaz.

Sur la figure 4.2 est représentée la longueur de cohérence  $L_c$  en fonction de l'ordre de la fonction de Bessel correspondant à l'harmonique 3 et de la pression du gaz. Le maximum de longueur de cohérence (en rouge foncé) est obtenu pour l'ordre 4 de la fonction de Bessel, quelque soit la pression du gaz dans la fibre.

On observe sur la figure 4.3 qu'il en résulte un recouvrement de mode non optimal entre le mode fondamental pour la pompe  $J_0(u_{11}r/a)$  et le mode d'ordre supérieur pour l'harmonique 3  $J_4(u_{51}r/a_3)$ , de l'ordre de 45,6%, déterminé numériquement à partir de la formule suivante :

$$\tau = \frac{\left|\int J_0 \left(u_{11} \frac{r}{a}\right) J_4 \left(u_{51} \frac{r}{a_3}\right) r dr\right|^2}{\int \left|J_0 \left(u_{11} \frac{r}{a}\right)\right|^2 r dr \int \left|J_4 \left(u_{51} \frac{r}{a_3}\right)\right|^2 r dr}$$
(4.8)

où *a* est le rayon interne du capillaire et  $a_3$  est supposé égal à ce rayon.



Figure 4.3 : Coupe transverse du mode fondamental pour la pompe  $J_0(u_{11} r/a)$  et du mode pour la troisième harmonique  $J_4(u_{15} r/a_3)$  correspondant à l'accord de phase  $\delta k = 0$ .

Pour un recouvrement optimal, il faudrait que le champ harmonique soit émis sous forme de fonction de Bessel d'ordre 0. D'après la figure 4.2, ceci implique que la pression du gaz doit être très importante > 50 mbar. Effectivement, il a été démontré dans l'article de Russell *et al.*, que la pression du gaz qui permet d'obtenir le signal H3 est de l'ordre de 500 mbar. Par la suite, la même équipe a démontré une efficacité de conversion proche de 10% mais le rayonnement DUV (Deep UV) est obtenu par un autre mécanisme (couplage des solitons avec les ondes dispersives [9]).

#### 4.3.4 Deuxième étape : harmoniques d'ordre plus élevé H19

Pour générer les harmoniques d'ordre plus élevé dans l'argon, l'intensité requise est généralement  $I_0 = 1.5 \ 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Pour cette intensité, le taux d'ionisation des atomes d'Argon maximum est d'environ 0,21 % et intervient au maximum de l'impulsion. En tenant compte de l'ionisation lors du passage de l'impulsion dans le milieu, la dispersion électronique dépend du temps et l'accord de phase devient donc transitoire.

On cherche les valeurs optimales, correspondant à  $|\delta k|$  proche de 0, pour la pression p, le rayon et l'instant dans l'impulsion (t < 0 correspondant au front avant de l'impulsion). La valeur optimale de pression n'est pas forcément la même sur toute la durée de l'impulsion. Par exemple, on voit sur la figure 4.4 que dans le cas de H19, le minimum de  $|\delta k|$  est obtenu pour  $p \sim 10$  mbar en avant de l'impulsion et  $p \sim 2$  mbar sur le front arrière de l'impulsion lorsque l'on regarde sur l'axe de propagation (la composante radiale r = 0). Il faut alors retenir que la pression du gaz doit être faible pour obtenir un meilleur accord de phase.



Figure 4.4 : Désaccord de phase  $\delta k$  en fonction de la pression et du temps :  $\delta k = 0$  pour p ~10 mbar en avant de l'impulsion.

Dans le cas d'un milieu absorbant, on peut définir le flux, c'est-à-dire le nombre de photons émis sur l'axe par unité de temps et de surface par l'expression suivante [16] :

$$N_{out} \alpha |d_q|^2 \left| \int_{0}^{lmed} \exp\left(\frac{z - l_{med}}{2l_{abs}}\right) \exp\left(i\phi(t, \mathbf{r}, z)\right) dz \right|^2$$
(4.9)

où  $|d_q|$  est le dipôle atomique dépendant du temps par l'intermédiaire du champ électrique de l'impulsion et que l'on suppose constant suivant z. L'intégrale représente le facteur de phase  $F_q$  défini dans [16,17] :

$$F_{q}(t,r=0) = \left| \int_{0}^{lmed} \exp\left(\frac{z - l_{med}}{2 l_{abs}}\right) \exp\left(i\phi(t,r=0,z)\right) dz \right|^{2}$$
(4.10)

où  $l_{med}$  est la longueur du milieu générateur,  $l_{abs}$  est la longueur d'absorption définie dans l'annexe 2, z est la coordonnée suivant l'axe longitudinal (le zéro correspond à l'entrée de la fibre) et  $\Phi(t,r=0,z)$  est la phase spatio-temporelle de l'harmonique considérée en r = 0. Ce facteur tient compte de l'absorption du champ harmonique par le gaz par l'intermédiaire de la longueur d'absorption  $l_{abs}$ . Elle est définie comme la longueur de propagation au bout de laquelle le rayonnement harmonique est atténué d'un facteur 1/e. Cette valeur dépend de la pression du gaz et de l'ordre harmonique [17] et peut être déterminée à partir de la transmission du rayonnement XUV dans le gaz [22]. Elle est de l'ordre du mm pour H25 avec une pression de 30 mbar, et 10 fois plus grande pour une pression 6 fois plus faible. La phase  $\Phi(t,r,z)$  est en fait liée au déphasage introduit par le désaccord de phase (cf annexe 2). Elle est donnée par :

$$\boldsymbol{\phi}(t,r,z) = \delta k \left( t,r,z \right) z \tag{4.11}$$

où  $\delta k(t,r,z)$  est le désaccord de phase.

Ce facteur  $F_q(t,r=0)$ , représenté en fonction du temps, permet de visualiser directement les effets transitoires d'accord de phase, responsables du contrôle temporel du signal harmonique [25,26].



Figure 4.5 : Exemple pour H19 : la courbe bleue correspond à l'émission du dipôle normalisée : elle suit l'enveloppe de l'impulsion infrarouge à la puissance 5. La courbe rouge correspond au facteur d'accord de phase  $F_q(t,r=0)$  normalisé. Il est optimal en avant de l'impulsion.

Pour cet exemple, on représente sur la figure 4.5 le facteur d'accord de phase  $F_q(t,r=0)$  (en rouge) et le dipôle normalisé  $|d_q|^2$  (en tiret bleu) en fonction du temps pour l'harmonique H19 générée dans 30 mbar d'argon et longueur du milieu = 2mm . Le maximum du facteur d'accord de phase traduit l'instant où l'accord de phase est optimal, c'est-à-dire  $\delta k$  proche de 0. Il se produit en avant de l'impulsion lorsque l'intensité du dipôle induit est plutôt faible. Lorsque l'ionisation devient trrop importante (instant proche du maximum de l'impulsion), l'accord de phase est dégradé et le facteur  $F_q(t,r=0)$  diminue fortement. Le nombre de photons par unité de temps dépend de la synchronisation entre le facteur d'accord de phase et l'émission du dipôle. Le signal harmonique correspondant sera donc assez faible pour cet ordre harmonique. On peut comparer ce résultat à celui obtenu par S. Kazamias-Moucan [17] pour la configuration expérimentale de l'article de Durfee *et al.* [2].

### 4.3.5 Harmonique 25 générée dans l'Argon

Mon objectif est d'optimiser le signal harmonique H25 générée dans l'Argon. Ce signal harmonique est plus souvent étudié expérimentalement car il est plus intense [25].

En tenant compte de tous ces éléments, je peux simuler le signal harmonique en fonction des paramètres de génération (pression du gaz, intensité maximale du faisceau laser de pompe, rayon du guide). Lorsque l'accord de phase est vérifié et que l'absorption n'est pas trop forte, le signal harmonique se construit tout au long du milieu générateur. Sur la figure 4.6 est représenté le champ harmonique en échelle logarithmique en fonction de la longueur du milieu de génération et du temps pour une intensité maximale de 1.5 10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup> et une pression de 27.5 mbar. Pour cette pression et pour l'harmonique 25, la longueur d'absorption est de seulement 0.7 mm. Nous voyons sur cette figure que le signal harmonique se construit à l'aide de l'accord de phase tout au long de la longueur du milieu. Le signal harmonique est concentré en avant de l'impulsion (temps négatif) avant que l'ionisation ne soit trop importante et ne détruise le signal en modifiant l'indice du milieu et donc l'accord de phase.



Figure 4.6 : Construction du signal de l'harmonique 25 générée dans l'Argon (en échelle log) se propageant dans une fibre à cœur creux de 20 mm de long. On ne tient compte que du guidage du faisceau de pompe à 800 nm. Cette simulation tient compte de l'accord de phase transitoire à l'intensité maximale de 1.5  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> et de l'absorption par les atomes du gaz (pression = 27.5 mbar).

Dans le cas de H25 générée dans l'argon, j'ai calculé le facteur d'accord de phase  $F_q$  en fonction du temps et du rayon r par rapport au centre de la fibre pour différentes longueurs du milieu, puis je détermine la forme du signal en fonction du temps et du rayon, en calculant le flux harmonique N<sub>out</sub>. Entre 10 et 300 mm, il n'y a qu'un seul pic temporel. Pour des longueurs d'interaction plus grandes, le nombre de pics augmente (cf Figure 4.7).



Figure 4.7 : Flux d'harmonique ( $N_{out}$ ) en sortie de fibre en fonction du temps et du rayon pour différentes longueurs d'interaction (10, 300, 600 et 1000 mm).

J'ai comparé ces résultats avec une intensité différente  $I_0 = 1.6 \ 10^{14} \text{ W/cm}^2$  et une pression plus faible (4.35 mbar). Sur la figure 4.8, on observe que le signal intégré par rapport au temps se comporte différemment suivant la pression et l'intensité.



Figure 4.8 – Maximum du signal en fonction de la longueur de la fibre pour deux densités de puissance et pressions différentes : (a)  $I_0 = 1.5 \ 10^{14} \ W/cm^2$  et  $p = 27.5 \ mbar$ ; (b)  $I_0 = 1.6 \ 10^{14} \ W/cm^2$  et  $p = 4.35 \ mbar$ .

Ces exemples montrent que l'on peut trouver des paramètres pour l'accord de phase dans les fibres kagomé. Il serait intéressant de combiner cette étude avec les études réalisées pour les harmoniques générées avec un laser fibré [27].

# 4.4 Améliorations

Différents points restent à élucider pour bien comprendre la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les fibres :

1. la dispersion dans la fibre peut modifier la durée de l'impulsion qui se propage à l'intérieur. Des études approfondies ont été réalisées par l'équipe de Russell à Erlangen (Allemagne) [10]. Puisque l'on doit tenir compte des dispersions du gaz et des électrons qui dépendent de la pression en plus de celle du guide, une étude de la propagation des impulsions dans le milieu serait intéressante. Dans notre cas, il est prévu de guider sur de plus longues distances avec une plus faible pression.

2. dans le cas de la génération de rayonnement UV, l'équipe de Russell a montré qu'il fallait aussi tenir compte de la dispersion à la longueur d'onde d'émission qui va influencer la durée des impulsions dans l'UV. Il n'est pas mentionné de problème d'accord de vitesse de groupe alors qu'il intervient pour les effets non linéaires dans les fibres (sans gaz) dans le cas d'impulsions très courtes. On pourrait se demander ce qu'il en est pour les harmoniques d'ordre élevé et s'il y aurait un impact de ce désaccord sur l'efficacité de conversion.

3. le couplage entre le mode fondamental et les modes d'ordres supérieurs [21] dans la fibre peuvent perturber le processus de génération. Ce couplage intervient car le milieu gazeux perturbe la propagation des modes. Il faudrait s'assurer que ces couplages sont très faibles. Néanmoins dans le cas d'un capillaire, on peut profiter des battements longitudinaux entre modes tout au long du capillaire pour réaliser un quasi-accord de phase et générer des harmoniques d'ordre très élevé à partir d'ions d'argon [28].

4. le guidage des harmoniques est une question ouverte : l'indice de réfraction de la silice pure à la longueur d'onde des harmoniques (< 70 nm) est inférieur à 1 (cf figure 4.1). L'indice du milieu à la longueur d'onde des harmoniques est proche de 1. On pourrait penser que les harmoniques subissent un guidage par réflexion totale interne. Par contre, l'absorption des harmoniques par la

silice est très importante. Il faut alors s'assurer que le faisceau reste bien au centre de la fibre : il faut alors que la génération soit optimum sur l'axe de propagation correspondant à un accord de phase optimum en r = 0. On doit s'assurer que seul le mode fondamental est guidé pour obtenir un maximum d'intensité au centre de la fibre, là où sont générés les faisceaux harmoniques avec un ordre élevé. Pour cela, il faut limiter l'intensité pour éviter une trop forte ionisation et éviter les effets non-linéaires tels que l'effet Kerr. Dans le cas où la fibre est longue (1m, voire 5m), il faudrait étudier l'effet de la courbure de la fibre sur la propagation des faisceaux IR et XUV et sur la génération.

#### 4.5 Conclusions et Perspectives

En conclusion, les études d'accord de phase montrent qu'il est possible de générer efficacement les harmoniques d'ordre élevé dans une fibre sur de très grandes longueurs d'interaction par rapport à l'espace libre (en général,  $L_{med}$  de l'ordre de 1cm), voire même par rapport à un capillaire ( $L_{med}$  = quelques dizaines de cm). Les conditions de génération en limite d'absorption sont bien remplies ( $L_{coh} > 5 L_{abs}$  et  $L_{med} > 3 L_{abs}$  [16,17]). J'entreprendrai des simulations complémentaires dès que seront prévues les expériences qui j'espère donneront lieu à une ou plusieurs publications.

Plusieurs expériences ont été réalisées dans des capillaires ou des fibres creuses et ont montré une nette augmentation du signal pour des ordres plus élevé (et donc des longueurs d'onde plus courtes) [15]. Pour l'instant, aucune expérience de génération d'harmoniques n'a été réalisée avec une fibre kagomé. Nous avons vu dans la partie 4.2 que les propriétés de guidage dans une fibre kagomé sont plus appropriées que les fibres creuses ou les capillaires car les pertes sont plus faibles. Néanmoins, les modes d'ordre supérieurs sont guidés pour des tailles de cœur très importantes [29]. Une étude approndie du contenu modal de la fibre kagomé dédiée devra être entreprise à la longueur d'onde du laser de pompe.

Pour l'instant, l'utilisation des fibres kagomé, remplies de gaz rare à très forte pression ou d'air, a permis de comprimer les impulsions lasers ultra-courtes [30]. Les systèmes lasers fibrés Yb délivrant des impulsions fs deviennent alors des sources adéquates pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé [31]. Un système tout fibré de génération trouve alors sa place dans ce type de dispositif. Je reviendrai sur ce sujet dans le chapitre 6.

### Références

- [1] O.H. Heckl, C.R.E. Baer, C. Kränkel, S.V. Marchese, F. Schapper, M. Holler, T. Südmeyer, J.S. Robinson, J.W.G. Tisch, F. Couny, P. Light, F. Benabid and U. Keller, *High harmonic generation in a gas-filled hollow-core photonic crystal fiber*, Appl. Phys. B **97**, 369-373 (2009)
- [2] C. Durfee, A. Rundquist, S. Backus, C. Herne, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Phase Matching of High Order Harmonics in Hollow Waveguides*, Phys. Rev. Lett. **83**, 2187 (1999)
- [3] A.N. Naumov, A.M. Zheltikov, *Optical harmonic generation in hollow-core photonic-crystal fibres: analysis of optical losses and phase-matching conditions*, Quantum Electronics **32** (2), 129-134 (2002)
- [4] F. Ardana-Lamas, G. Lambert, A. Trisorio, B. Vodungbo, V. Malka, Ph. Zeitoun and C. P. Hauri, Spectral characterization of fully phase-matched high harmonics generated in a hollow waveguide for free-electron laser seeding, New Jour. Phys. **15**, 073040 (2013)
- [5] Kevin Cassou, Sameh Daboussi, Ondrej Hort, Olivier Guilbaud, Dominique Descamps, Stéphane Petit, Eric Mével, Eric Constant, and Sophie Kazamias, *Enhanced high harmonic generation driven by high-intensity laser in argon gas-filled hollow core waveguide*, Opt. Lett. **39**, 3770 (2014)
- [6] H.Ren, A.Nazarkin, J.Nold and P.St.J.Russell, *Quasi-phase-matched high harmonic generation in hollow core photonic crystal fibers*, Opt. Express **16** (21) 17052 (2008)
- [7] J. Nold, *Nonlinear femtosecond photonics in gas-filled hollow-core photonic crystal fibres*, Ph. D. dissertation, Friedrich-Alexander Universität Erlangen-Nürenberg (2011)
- [8] J. Nold, P. Hölzer, N.Y. Joly, G.K.L. Wong, A. Nazarkin, A. Podlipensky, M. Scharrer, and P. St.J. Russell, *Pressure-controlled phase matching to third harmonic in Ar-filled hollow-core photonic crystal fiber*, Opt. Lett. **35** (17), 2922 2924 (2010)
- [9] N.Y. Joly, J. Nold, W. Chang, P. Hölzer, A. Nazarkin, G.K.L. Wong, F. Biancalana, and P. St.J. Russell, Bright Spatially Coherent Wavelength-tunable Deep-UV Laser Source Using an Arfilled Photonic Crystal Fiber, Phys. Rev. Lett. 106, 203901 (2011)
- [10] F. Tani, J.C. Travers, and P. St.J. Russell, Multimode ultrafast nonlinear optics in optical waveguides: numerical modeling and experiments in kagomé photonic-crystal fiber, J. Opt. Soc. Am. B31 (2), 311-320 (2014)
- [11] G. J. Pearce, G. S. Wiederhecker, C. G. Poulton, S. Burger, and P. St. J. Russell, *Models for guidance in kagome-structured hollow-core photonic crystal fibres*, Opt. Express **15** (20), 12680 (2007)
- [12] Y. Y. Wang, N. V. Wheeler, F. Couny, P. J. Roberts, and F. Benabid, *Low loss broadband transmission in hypocycloid-core Kagome hollow-core photonic crystal fiber*, Opt. Lett. **36**, 669 (2011)
- [13] E.A.J. Marcatili and R.A. Schmelzer, Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers (long distance transmission in hollow dielectric and metallic circular waveguides, examining normal mode propagation), Bell Syst. Tech. J. 43, 1783 (1964)

- [14] E. A. Gibson, A. Paul, N. Wagner, R. Tobey, D. Gaudiosi, S. Backus, I. P. Christov, A. Aquila, E. M. Gullikson, D. T. Attwood, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Coherent soft x-ray generation in the water window with quasi-phase matching*, Science **302**, 95 (2003)
- [15] M. Zepf, B. Dromey, M. Landreman, P. Foster, and S.M. Hooker, *Bright Quasi-Phase-Matched Soft-X-Ray Harmonic Radiation from Argon Ions*, Phys. Rev. Lett. **99**,143901 (2007)
- [16] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mével, Ch. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin, and P. Agostini, *Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases: Model and Experiment*, Phys. Rev. Lett. **82**, 1668-1671 (1999)
- [17] S. Kazamias-Moucan, *Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordres élevés pour l'optique non-linéaire dans l'extrême UV*, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique (2003)
- [18] Sameh Daboussi, Accord de phase et quasi-accord de phase en génération d'harmoniques d'ordres élevés : effet de la pression et du guidage laser, Thèse de doctorat de l'Université Paris-Sud (2013)
- [19] Rei Kitamura, Laurent Pilon, and Miroslaw Jonasz, *Optical constants of silica glass from extreme ultraviolet to far infrared at near room temperature*, App. Opt. **46** (33), 8118 (2007)
- [20] F. Delmotte, Couches minces et optiques multicouches dans le domaine spectral XUV (1 nm à 60 nm), Habilitation à Diriger des Recherches, Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (2010)
- [21] Edward T.F. Rogers, *Modelling of capillary high harmonic generation*, Ph. D. of university of Southampton (2007)
- [22] site du CXRO : <u>http://henke.lbl.gov/optical\_constants/</u>
- [23] A. Börzsönyi, Z. Heiner, M. P. Kalashnikov, A. P. Kovács, and K. Osvay, *Dispersion measurement of inert gases and gas mixtures at 800 nm*, App. Opt. **47** (27), 4856 (2008)
- [24] Á. Börzsönyi, Z. Heiner, A.P. Kovács, M. P. Kalashnikov and K. Osvay, *Measurement of pressure dependent nonlinear refractive index of inert gases*, Opt. Express **18**, 25847 (2010)
- [25] Olga Boyko, *Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordre élevé par contrôle actif du laser générateur*, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique (2006)
- [26] O. Boyko, C. Valentin, B. Mercier, Ch. Coquelet, V. Pascal, E. Papalazarou, G. Rey and Ph. Balcou, Systematic study of high harmonic control by temporal pulse shaping of laser pulses: major mechanisms of optimization, Phys. Rev. A 76, 063811 (2007)
- [27] Amélie Cabasse, Guillaume Machinet, Antoine Dubrouil, Eric Cormier, and Eric Constant, *Optimization and phase matching of fiber-laser-driven high-order harmonic generation at high repetition rate*, Opt. Lett. **37**, 4618 (2012)
- [28] Kevin Cassou, Sameh Daboussi, Ondrej Hort, Olivier Guilbaud, Dominique Descamps, Stéphane Petit, Eric Mével, Eric Constant, and Sophie Kazamias, *Enhanced high harmonic generation driven by high-intensity laser in argon gas-filled hollow core waveguide*, Opt. Lett. **39**, 3770 (2014)

- [29] Th. D. Bradley, N.V. Wheeler, G.T. Jasion, D. Gray, J. Hayes, M.A. Gouvela, S. R. Dandoghchi, Y. Chen, F. Poletti, D. Richardson, and M. Petrovitch, *Modal content in hypocycloid Kagomé hollow core photonic crystal fibers*, Opt. Express 24, 15798 (2016)
- [30] Balciunas, T. et al., A strong-field driver in the single-cycle regime based on self-compression in a Kagome fibre, Nat. Commun. **6**:6117 doi: 10.1038/ncomms7117 (2015)
- [31] Florent Guichard, Achut Giree, Yoann Zaouter, Marc Hanna, Guillaume Machinet, Benoît Debord, Frédéric Gérôme, Pascal Dupriez, Frédéric Druon, Clemens Hönninger, Eric Mottay, Fetah Benabid, and Patrick Georges, *Nonlinear compression of high energy fiber amplifier pulses in air-filled hypocycloid-core Kagome fiber*, Opt. Express **23**, 7416 (2015)

# Chapitre 5 : Fibres à mode plat

### **5.1 Introduction**

Depuis mon arrivée dans l'équipe Photonique du PhLAM, je me suis investie dans les simulations de fibres microstructurées, qui délivrent un mode fondamental aplati. L'intérêt de ces fibres est qu'elles peuvent être intégrées dans des systèmes lasers, tels que le pilote du Laser Méga Joule (CEA/CESTA, Bordeaux), voire même des lasers à fibre industriels. Dans le cadre de la collaboration entre le CEA/CESTA et le PhLAM, nous avons mis en place un laboratoire commun SYLFE (SYstèmes Lasers Fibrés Énergétiques). Le partenariat entre les deux entités est aussi soutenu par l'ANR dans le cadre de l'Equipex FLUX (ANR-EQPX-0017) pour lequel je co-dirige cette thématique et par le Labex CEMPI (ANR-11-LABX-0007), par la Région Hauts-de-France à travers le CPER « Photonics for Society » et par la région Aquitaine à travers le projet CATHARE. Dans ce contexte, j'ai encadré deux stagiaires de Master2 : Pierre Gouriou en 2013 et Marlène Paris en 2016 et je co-encadre Pierre Gouriou qui soutiendra sa thèse début 2017.

Après avoir expliqué le contexte de l'étude et dressé l'état de l'art dans cette thématique, j'expliquerai le principe de fonctionnement de la fibre à mode plat. Je décrirai ensuite en détail les simulations effectuées afin de réaliser une fibre microstructurée monomode à mode plat. Je montrerai l'intérêt de réaliser des fibres effilées qui permettent de manipuler le profil transverse du mode. Forte de cette première réalisation fructueuse, je présenterai sur les simulations qui ont permis de concevoir une version de fibre à maintien de polarisation, en suivant la même stratégie que pour la première fibre. J'exposerai les résultats obtenus pour cette fibre, et les simulations mises en œuvre pour augmenter la biréfringence. Je décrirai ensuite les méthodes que nous souhaitons développer pour augmenter le diamètre du mode plat afin de pouvoir transporter plus de puissance dans ces fibres. Finalement, j'exposerai les différentes utilisations de nos fibres, que ça soit pour la chaîne pilote du LMJ que les tests de découpe par laser.

#### 5.2 Contexte et état de l'art

Dans le cadre de la collaboration avec le CEA-CESTA, l'équipe du laboratoire commun SYLFE souhaite fiabiliser le module de préamplification (PAM) (cf Figure 5.1) en proposant de remplacer les éléments optiques fonctionnant en espace libre par des fibres dédiées.



Figure 5.1 : Schéma du Laser MégaJoule : la source fibrée délivre un faisceau à 1053 nm avec une énergie de quelques nJ. L'impulsion nanoseconde en sortie est sculptée temporellement et spectralement. En sortie du module Préamplificateur (PAM) le faisceau laser présente un profil spatial aplati afin d'assurer une amplification efficace par les plaques de verre Néodyme utilisées pour amplifier jusqu'à 15-20 kJ. Les 8 x 22 faisceaux lasers sont focalisés sur la cible après avoir subi un triplage de fréquence [figure Florent Scol].

Dans le module PAM, la cavité régénérative permet d'atteindre une énergie de 30 mJ après laquelle est inséré un élément optique qui permet d'obtenir le profil transverse aplati [1]. Ce profil plat est primordial pour garantir une amplification efficace par les plaques de verre Néodyme. De plus, il faut que ce profil résulte d'un seul mode spatial pour assurer une meilleure conversion de fréquence. Néanmoins, afin de garantir la fiabilité du système, on cherche à éliminer par étape tous ces éléments jusqu'à atteindre l'énergie requise. Dans un premier temps, on souhaite atteindre une énergie de quelques centaines de µJ après deux étages d'amplification (cf Figure 5.2). Dans un deuxième temps, nous souhaitons atteindre une énergie de l'ordre du mJ.



Figure 5.2 : Schéma de deux étages d'amplification tout fibré : après la source fibrée délivrant une énergie de quelques nJ, un étage de préamplification dans une fibre dopée Yb permet d'obtenir une énergie de l'ordre du  $\mu$ J. Le deuxième étage d'amplification est composé d'une autre fibre dopée Yb avec un diamètre de mode plus important permettant de supporter plusieurs centaines de  $\mu$ J [figure Florent Scol].

Après ce deuxième étage, on cherche à obtenir un mode plat dans une fibre monomode avec une polarisation linéaire et stable. A terme nous cherchons à réaliser une fibre amplificatrice qui délivre un mode fondamental aplati avec une énergie de 1 mJ. Pour cela nous devrons augmenter le diamètre de mode des fibres, afin d'éviter d'endommager la face d'entrée de la fibre à cause d'une fluence trop élevée (pour des impulsions nanosecondes, à 1053 nm, le seuil d'endommagement de la silice est de l'ordre de quelques dizaines de J/cm<sup>2</sup> [2]).

Avant de débuter cette thématique au laboratoire, seulement quelques structures de fibres microstructurées ou non avaient été proposés afin d'obtenir un mode fondamental aplati [3-7]. Toutes ces propositions de structure sont basées sur l'idée de Ghatak *et al.* de contrôler le profil d'indice de la fibre tel qu'il impose un mode plat à une longueur d'onde donnée [8]. Toutes les structures de fibre proposées n'étaient pas réalisables par la technique "stack-and-draw" et donnaient lieu à des fibres légèrement multimodes, ce qui est source de problèmes pour les applications, de leur faible cohérence spatiale. Une seule réalisation expérimentale a été démontrée avec une fibre à saut d'indice [9] mais le profil du mode n'était pas tout à fait plat dû au fait qu'il est difficile de contrôler le profil d'indice avec une précision inférieure à 10<sup>-4</sup>.

### 5.3 Principe de fonctionnement de la fibre à mode plat

Il a été démontré que pour obtenir une répartition homogène d'intensité en sortie de fibre au lieu d'une répartition quasi-gaussienne, il faut entourer le cœur de la fibre par un anneau de plus haut indice [8]. L'indice de la gaine doit être inférieur à l'indice du cœur afin d'assurer le guidage par réflexion totale interne de la lumière dans le cœur. Le contraste d'indice, ainsi que l'épaisseur de l'anneau doivent être ajustés pour assurer un mode aplati à la longueur d'onde de travail (cf Figure 5.3). Pour une longueur d'onde plus courte, la lumière sera confinée dans l'anneau et pour une longueur d'onde plus grande, la répartition d'intensité sera quasi-gaussienne.



Figure 5.3 : Principe de fonctionnement de la fibre à mode fondamental aplati :  $n_{clad}$  correspond à l'indice de la gaine,  $n_{core}$  = indice du cœur et  $n_{ring}$  correspond à l'indice de l'anneau dopé. Le mode fondamental aplati est obtenu pour une longueur d'onde particulière, lorsque l'indice effectif du mode fondamental est égal à l'indice du cœur.

Afin de contrôler au mieux l'indice de la gaine, nous avons opté pour une gaine microstructurée air/silice.

### 5.4 Fibre microstructurée monomode à mode plat

Le cœur est composé de silice alors que l'anneau est composé de silice légèrement dopée en germanium. Comme expliqué au paragraphe précédent, cet anneau permet de contrôler le profil transverse d'intensité du mode se propageant dans la fibre. La gaine microstructurée est composée d'un réseau triangulaire de trous d'air dans une matrice de silice pure. Le pas du réseau, noté  $\Lambda$ , représente la distance entre deux trous successifs. J'ai effectué les premières simulations à l'aide de COMSOL Multiphysics® : elles ont permis d'optimiser l'épaisseur de l'anneau en fonction des différents paramètres opto-géométriques de la fibre (longueur d'onde, pas du réseau, rapport du diamètre des trous sur le pas du réseau d/ $\Lambda$  et contraste d'indice de l'anneau). Cette première étude a donné lieu à un brevet [10]. Ensuite, j'ai réalisé une étude paramétrique de l'impact des variations des différents paramètres sur la planéité du mode. Cette étude a permis de déterminer les contraintes de fabrication par la technique "stack-and-draw" (empilement et tirage en anglais).

#### 5.4.1 Contraintes de fabrication

Une des premières contraintes est de réaliser l'anneau : nous avons utilisé la technique de déposition extérieure de vapeur (Outside Vapor Deposition) qui permet de contrôler l'épaisseur et l'indice de l'anneau de silice dopée germanium. Par cette technique le contraste d'indice minimum que l'on peut réaliser est de 10<sup>-3</sup>. Ensuite, contrairement à Wang *et al*. [4,5], nous avons tenu compte de la méthode d'empilement des barreaux pour réaliser la gaine micro-structurée, ce qui impose un maximum pour le diamètre extérieur de l'anneau dopé ( $\Phi_{max} = (2\sqrt{3} - 1) \Lambda$ ).

D'après Saitoh *et al.* [11], le caractère infiniment monomode de notre fibre est préservé si le rapport diamètre des trous sur le pas du réseau (d/ $\Lambda$ ) est inférieur à 0.046 pour notre géométrie. La valeur minimale expérimentalement de d/ $\Lambda$  par la technique « stack-and-draw » est de 0.08 à cause du contrôle de la pression dans les capillaires lors du tirage de la fibre. De plus, les pertes par courbure sont d'autant plus importantes que le diamètre de trous est petit. Nous avons alors choisi d'utiliser un cœur avec un indice légèrement inférieur à celui de la silice pure pour éviter que le premier mode d'ordre supérieur ne soit guidé dans le cœur (cf partie 5.3.3). Sur la figure 5.4 (a) est représenté le profil d'inde transverse de la fibre à saut d'indice pour obtenir le mode fondamental plat :  $n_{core}$  correspond à l'indice du cœur,  $n_{ring}$ , l'indice de l'anneau et  $n_{clad}$ , l'indice de la gaine. On

démontre que le profil d'indice de la figure 5.4 (b) permet d'obtenir une fibre monomode délivrant un mode plat :  $\delta n_{core}$  correpond au contraste d'indice du cœur par rapport à l'indice de la gaine (silice pure),  $\delta n_{opt}$  le contraste d'indice de l'anneau par rapport à l'indice de la gaine,  $\Delta R$ , l'épaisseur de l'anneau,  $\Lambda$  le pas du réseau de la gaine et d, le diamètre des trous. Pour une fibre microstructurée, l'indice de la gaine équivalent est noté  $n_{FSM}$ .



Figure 5.4 : (a) Profil d'indice de la fibre à saut d'indice pour l'obtention du mode plat. (b) Profil d'indice de la fibre microstructurée air/silice : l'indice du cœur est légèrement inférieur à l'indice de la silice utilisée dans la gaine. Le contraste d'indice de l'anneau est donné par rapport à l'indice de la silice pure ( $\delta n_{opt}$ ). L'épaisseur de l'anneau  $\Delta R$  est ajustée afin d'obtenir le mode fondamental aplati à la longueur d'onde de travail (1053 nm).

Pour une gaine microstructurée, on peut calculer un indice équivalent ( $n_{FSM}$ ) pour la gaine correspondant à l'indice vu par la lumière à la longueur d'onde et pour un pas du réseau et un diamètre de trous donnés. Il correspondant à l'indice du premier mode guidé dans la gaine. Cette valeur est calculée par la méthode des ondes planes à l'aide d'un code réalisé au sein du laboratoire par Olivier Vanvincq.

Il faut bien comprendre que l'obtention du mode plat à la bonne longueur d'onde n'est pas triviale. Dans un premier temps, j'ai mené une étude systématique approfondie de simulation des modes guidés en fonction des paramètres (indice et épaisseur de l'anneau, pas du réseau, diamètre des trous...). On peut donner comme critère de mode plat la valeur de l'écart-type r.m.s en %:

$$\sigma_{rms} = \frac{\sqrt{\langle I^2(x,y) \rangle_{80\% \text{ surface}} - \langle I(x,y) \rangle_{80\% \text{ surface}}^2}}{\langle I(x,y) \rangle_{80\% \text{ surface}}}$$
(5.1)

où  $\langle I(x,y) \rangle_{80\% \ surface}$  correspond à la valeur moyenne de l'intensité du mode à calculée sur 80% de la surface du cœur (avec l'anneau). La figure 5.5 montre un diagramme de l'écart-type en fonction du contraste de l'anneau par rapport à l'indice du cœur et de l'épaisseur de l'anneau. Pour une valeur faible de  $\sigma_{rms}$  proche de 0.7%, le profil du mode est plat. Plus cette valeur augmente, plus le mode s'éloigne du profil plat : pour  $\sigma_{rms} = 6.4\%$ , si l'épaisseur et le contraste d'indice de l'anneau est trop faible, le mode est quasi-gaussien et pour  $\sigma_{rms} = 12.4$  %, si l'épaisseur et le contraste d'indice du l'anneau est trop grand, le mode s'approche d'un profil en anneau. J'ai démontré qu'il fallait contrôler l'indice et l'épaisseur de l'anneau à 10% près pour obtenir le mode plat [12]. Une autre façon de déterminer si le profil du mode est bien plat est de calculer l'indice effectif du mode. Si celui-ci est égal à l'indice du cœur, on se retrouve à la longueur d'onde pour laquelle le mode est bien plat. Il existe néanmoins d'autres façons de déterminer un facteur caractérisant ce mode : on peut citer le top-hat factor [13], qui pourrait être utilisé pour caractériser les profils expérimentaux. Cette méthode repose un calcul reposant sur l'étude de l'histogramme des énergies contenues dans l'image CCD du profil modal.



Figure 5.5 : Pourcentage de variation par rapport au mode plat en fonction du contraste d'indice et de l'épaisseur de l'anneau. Si les paramètres de fabrication restent dans la bande bleu foncé, on peut espérer obtenir un mode plat, tous les autres paramètres étant inchangés. A droite sont représentés les profils transverses du mode et l'écart-type r.m.s en %.

Deuxièmement, j'ai aussi montré que les conditions d'obtention du mode plat dépendaient drastiquement de l'indice du cœur [14]. Les conditions sur l'épaisseur de l'anneau sont modifiées de façon importante lorsque l'on fait varier le contraste d'indice du cœur par rapport à l'indice de la silice pure. Principalement, j'ai établi plusieurs relations entre les paramètres à partir des simulations qui se présentent sous cette forme :

$$\Delta R (\mu m) = A \left(\frac{d}{\Lambda}\right)^{\alpha} \left(\frac{\lambda_p}{\Lambda}\right)^{\beta} \frac{\lambda_p (\mu m)}{\delta n'_{opt}}$$
(5.2)

où *A* est une constante et  $\delta n'_{opt} = \delta n_{opt} - \delta n_{core}$ . Les variations typiques des paramètres dépendent de |  $\delta n_{core}$ |. Par exemple, pour  $\delta n_{core} = -6 \ 10^{-4}$ ,  $\delta n_{opt}$  varie de 1 à 5  $10^{-3}$ ,  $d/\Lambda$  de 0,12 à 0,2, le pas  $\Lambda$  de 5 à 8 µm,  $\lambda_p$  de 0,8 à 1,5 µm. En général, l'exposant  $\beta = 1$  pour tous le cas. L'exposant  $\alpha$  est d'autant plus grand que  $|\delta n_{core}|$  augmente.

Pour chaque cas, le produit épaisseur x contraste  $\delta n'_{opt}$  est constant. La longueur d'onde du mode plat  $\lambda_p$  dépend du pas avec un exposant 1/2 pour  $|\delta n_{core}|$  compris entre 0 et 410<sup>-4</sup> et diminue pour  $|\delta n_{core}|$  plus grand. Finalement, plus le contraste d'indice est important (en valeur absolue), plus l'épaisseur dépend du paramètre  $d/\Lambda$ . Ces relations sont déterminantes pour optimiser la fabrication de la fibre : tout d'abord, on impose un contraste d'indice pour l'anneau, ensuite on détermine l'épaisseur adéquate pour un pas  $\Lambda$  donné. Lors du tirage de la fibre on ajuste le rapport  $d/\Lambda$  afin d'obtenir une fibre monomode délivrant le mode à profil plat à la bonne longueur d'onde.

Troisièmement, il faut s'assurer que la fibre soit monomode, c'est à dire que les premiers modes d'ordre supérieurs ne soient pas guidés. Pour cela, il faut que l'indice effectif de ces modes soit inférieur à l'indice de la gaine  $n_{FSM}$ . Ceci se traduit par un diamètre de trous très faible pour un pas donné. Il faut alors ajuster la valeur de  $\delta n_{core}$  pour s'assurer que les indices effectifs soient inférieurs à  $n_{FSM}$ . Lorsque  $|\delta n_{core}|$  augmente, les indices effectifs des modes d'ordre supérieur ou peut l'observer sur la Figure 5.6 (a). On compare l'indice du premier mode d'ordre supérieur ou HOM1 (en rouge sur la figure) avec l'indice équivalent de la gaine (en pointillé rose). Cet indice est calculé pour les paramètres de la première fibre que nous avons réalisée réalisée : pour  $\Lambda = 5,4 \mu m$ ,  $d/\Lambda = 0,12$  et  $\lambda = 1,05 \mu m$ . Dans le cas de cette fibre, il faut descendre jusqu'à  $\delta n_{core} = -8 \ 10^{-4}$  pour atteindre la condition de monomodalité :  $n_{HOM} < n_{FSM}$ .



Figure 5.6 : (a) Indices effectifs du mode fondamental aplati (en bleu) et du premier mode d'ordre supérieur (en rouge) en fonction du contraste d'indice du cœur. La courbe rose en pointillée représente l'indice de la gaine  $n_{FSM}$ , calculé pour  $\Lambda = 5,4 \ \mu m$ ,  $d/\Lambda = 0,12$  et  $\lambda = 1,05 \ \mu m$ . (b) Pertes par confinement simulées pour le mode fondamental aplati (en bleu) et le premier mode d'ordre supérieur (en rouge).

En parallèle, j'ai calculé les pertes par confinement du mode fondamental ou FM (en bleu sur la figure 5.6 (b)) et du premier mode d'ordre supérieur (en rouge). Pour un contraste d'indice (en valeur absolue) supérieur à 6 10<sup>-4</sup>, les pertes par confinement de ce mode augmentent drastiquement à cause d'une résonance de ce mode avec un mode de gaine [14]. Comme nous le verrons plus loin, cette fibre présentera un comportement monomode pour une grande longueur de fibre de l'ordre de quelques mètres.

### 5.4.2 Réalisation expérimentale et caractérisation d'une fibre monomode à mode aplati

La réalisation expérimentale, basée sur mes résultats de simulation, est très concluante. D'après l'image de la fibre fabriquée (cf figure 5.7 (a)), mesurée par le microscope électronique à balayage, on peut déterminer les caractéristiques suivantes : un diamètre de cœur de 14 µm, un pas de 5,4 µm et d/A = 0,12. Nous avons aussi mesuré le profil transverse de la concentration en germanium par micro-sonde (Electron Probe Micro-Analysis en anglais) sur la canne de 4 mm avant fibrage. Par correspondance entre la concentration de dopant et l'indice, nous déterminons le contrast d'indice de l'anneau, égal à 5  $10^{-3}$ . Par homothétie, nous déterminons l'épaisseur de l'anneau, égale à 260 nm.



Figure 5.7 : (a) Image par microscope électronique à balayage de la fibre réalisée : en gris la silice, en blanc l'anneau de silice dopée Germanium et en noir les trous d'air. (b) Profil transverse de la concentration en Germanium dans l'anneau (mesuré par micro-sonde sur la canne avant fibrage).

Nous avons démontré que nous obtenons un profil aplati en sortie de fibre à la longueur d'onde d'intérêt (1053 nm) [14,15]. On voit sur la figure 5.8 que nous obtenons bien le mode à profil plat à 1050 nm. Le profil est quasi-gaussien pour une plus grande longueur d'onde (1650nm) et le profil est en anneau pour une plus courte longueur d'onde (650 nm). Le profil reste plat pour une gamme de longueur d'onde très large (200 nm autour de 1050 nm).



*Figure 5.8* : *Profils transverses expérimentaux du mode fondamental mesurés en sortie de fibre pour différentes longueur d'onde de 650 à 1650 nm (a) et de 950 à 1150 nm (b).* 

De plus, le caractère monomode du guidage a été démontré expérimentalement à l'aide la technique du S<sup>2</sup> [16], développée au CEA/CESTA par P. Calvet [17,18] (cf Figure 5.9). L'obtention du caractère monomode est bien contrôlée et expliquée par le léger contraste d'indice négatif du cœur par rapport à celui de la silice constituant la gaine. D'après les résultats de simulation, le mode d'ordre supérieur présente des pertes par confinement très importante pour un contraste d'indice négatif de **7.10**<sup>-4</sup> par rapport à la silice pure (cf figure 5.6 (b)). Les pertes par confinement simulées pour le mode fondamental correspondent à celles mesurées (0.23 dB/m) [14].



Figure 5.9 : Résultats de mesure  $S^2$  pour deux fibres à mode plat, injectée avec un décalage de 15 µm par rapport au centre. La première fibre guide au moins deux modes (b), ce qui correspond un battement dans le domaine temporel (courbe bleue). La seconde fibre est monomode (c) : il n'y a pas de battement (courbe rouge). A droite, la reconstruction des modes (en haut) à l'aide d'un traitement numérique décrit dans la Ref [18] est comparée aux résultats de simulation (en bas).

L'inconvénient majeur de cette fibre est qu'elle ne conserve pas la polarisation. Pour l'intégrer dans le montage amplificateur du CEA/CESTA (cf figure 5.2), cette fibre est alors coupée sous forme d'embout de quelques mm [19]. Même si la fibre n'est pas à maintien de polarisation, la

polarisation n'a pas le temps de tourner. Pour de si petites longueurs, la mesure S<sup>2</sup> montre que le premier HOM est présent mais avec un différentiel de pertes de -170 dB/m par rapport au mode fondamental. En plus du maintien de polarisation, l'avantage de l'embout est de pouvoir amplifier le signal en pompage contra-propagatif. Une fibre amplificatrice NKT, soudée à cet embout a permis d'atteindre une énergie de **100 \muJ avec un faisceau de forme aplatie**.

### 5.5 Effilage de la fibre

### 5.5.1 Intérêt de l'effilage

L'effilage permet de modifier la taille transverse des fibres tout en gardant le rapport homothétique des tailles des différents constituants. Le laboratoire est spécialiste de l'effilage, soit lors du tirage, soit à l'aide d'une soudeuse. L'effilage peut être utlisé pour augmenter la taille du mode tout en gardant un guidage monomode, ce que nous verrons au paragraphe 5.7. Dans notre cas, l'effilage permet de passer d'un profil gaussien vers un profil aplati, voire un profil en anneau. Ce dernier profil intéresse aussi les industriels de la découpe laser car il permet de découper des pièces plus précisément par trépanation [20]. Cette étude a fait l'objet d'un autre dépôt de brevet avec le CEA/CESTA [21].

### 5.5.2 Contrôle du profil spatial de l'intensité en sortie

On comprend bien à partir de la formule (5.2) que pour  $d/\Lambda$ ,  $\lambda_p$ , et  $\delta n'_{opt}$  constants, si on augmente le rayon de la fibre (et donc le pas), l'épaisseur de l'anneau sera trop grande pour obtenir le mode plat et on trouvera le mode en anneau. De même si on diminue le rayon, on trouvera un mode quasi-gaussien. Nous avons suivi ce principe pour réaliser une fibre effilée qui permet de modifier le profil du mode fondamental. En effet, lorsque l'on augmente la taille transverse de la fibre, le pas  $\Lambda$  de la structure de la gaine augmente de façon homothétique : on peut comprendre d'après la figure 5.9 que lorsque le rapport  $\Lambda/\lambda$  augmente, l'indice effectif du mode augmente. Pour un indice faible, le mode fondamental est de forme quasi-gaussienne. Lorsque l'indice effectif est égal à l'indice du cœur, le mode présente un profil plat, puis pour un indice plus grand, le mode présente un profil en anneau. On rappelle que le rapport  $d/\Lambda$  reste constant lors de l'effilage.



*Figure* 5.9 : *Indice effectif en fonction du rapport*  $\Lambda/\lambda$  *et profils du mode fondamental.* 

Lors de l'effilage, il peut se produire un couplage entre modes, suivant l'intégrale de recouvrement définie par :

$$C_{jl} = \frac{\left| \iint E_j E_l^i r \, dr \, d\theta \right|^2}{\iint |E_j|^2 r \, dr \, d\theta \, \iint |E_l|^2 r \, dr \, d\theta}$$
(5.3)

où  $E_i$  et  $E_l$  représentent les champs électriques des deux modes considérés.

Il faut alors s'assurer que l'augmentation du rayon par rapport à la longueur de la fibre effilée  $(d\rho/dz)$  soit assez douce pour éviter les couplages entre modes. J'ai vérifié que le critère d'adiabaticité défini dans [22] est bien vérifié dans le cas de la fibre fabriquée :

$$\frac{1}{\rho}\frac{d}{d}\frac{\rho}{z} << \frac{\beta_j - \beta_l}{\overline{C}_{jl}}$$
(5.4)

où  $\rho$  est le rayon du cœur, *z* la composante longitudinale,  $\beta_j$  et  $\beta_l$  les constantes de propagation ( $\beta = 2\pi/\lambda n_{eff}$ ) des modes et  $C_{jl}$  est le taux de couplage entre les modes (de même symétrie). Cette formule traduit que la variation du rayon du cœur doit rester assez faible pour éviter les couplages entre modes. On représente sur la figure 5.10 l'angle  $\Omega$  défini par :

$$\Omega\left(z\right) \approx \frac{\rho\left(z\right)}{z_{b}} \tag{5.5}$$

où  $z_b$  est la longueur de battement entre les modes, définie par  $2\pi/(\beta_j - \beta_l)$ , et  $\rho(z)$  le rayon du cœur. Lorsqe  $\Lambda$  augmente,  $\Omega$  diminue est reste très faible par rapport à 1.



*Figure* 5.10 : *variation de l'angle*  $\Omega$  *et rayon du cœur en fonction du pas du réseau.* 

La fibre effilée réalisée au laboratoire présente un cœur de diamètre initial = 12 µm (pour un pas initial de 4.88 µm),  $d/\Lambda$  = 0.21, un contraste d'indice de l'anneau = 4 10<sup>-3</sup> et une épaisseur initiale de l'anneau = 430 nm (Figure 5.11 (a)). Les valeurs finales sont 17.5µm, 7.13 µm et 630 nm respectivement (Figure 5.12 (a)). On vérifie bien que le rapport  $d/\Lambda$  est bien constant.

J'ai vérifié que pour ces valeurs de pas, on obtient bien le passage d'un mode quasi-gaussien (Figure 5.10 (b)) à un mode plat (Figure 5.12 (b)). Pour aller encore plus loin et obtenir un mode en anneau, il suffirait d'agrandir encore le diamètre du cœur jusqu'à 22 µm correspondant à un pas de 9 µm.



Figure 5.11 : (a) Image par microscope électronique à balayage (MEB) de la fibre effilée réalisée côté petit diamètre. (b) Profil transverse du mode simulé.



*Figure 5.12 : (a) Image par microscope électronique à balayage (MEB) de la fibre effilée réalisée côté gros diamètre. (b) Profil transverse du mode simulé.* 

Nous avons donc démontré l'intérêt de cette technique pour le contrôle du profil transverse du mode. Ce concept de fibre effilée sera mis à profit pour obtenir une fibre « monomode » à mode plat de plus grand diamètre de mode pour améliorer le couplage avec une fibre amplificatrice de diamètre de cœur égal à 40 µm. Cette stratégie sera détaillée dan la partie 5.7.

#### 5.6 Fibre à maintien de polarisation (PM)

Afin d'obtenir une fibre à maintien de polarisation, il faut introduire une brisure de symétrie cylindrique dans la fibre. Dans notre cas, il est plus judicieux d'introduire une biréfringence par des barreaux de contrainte situés sur un axe de part et d'autre du cœur. Les barreaux en silice dopée bore ont la particularité de subir la transition vitreuse à une température plus faible que la silice pure et d'avoir un coefficient d'expansion thermique très élevé par rapport à celui de la silice pure. Il s'ensuit que lorsque la fibre est refroidie après le tirage, les barreaux exercent une contrainte sur leur environnement. Par la propriété visco-élastique du verre, il en découle que l'indice de réfraction est modifié de façon différente suivant l'axe des plots et l'axe perpendiculaire à ces plots. Au final, on peut calculer une biréfringence induite par la contrainte.
J'ai utilisé un code de simulation COMSOL Multiphysics® afin de modéliser ces champs de contrainte. Ensuite, d'après les déformations d'indice, il est possible de calculer les différents modes guidés par la nouvelle structure. La biréfringence se traduit par une levée de dégénérescence des indices effectifs des modes. D'après les simulations nous avons défini une stratégie pour la nouvelle fibre à mode fondamental aplati et à maintien de polarisation, décrite en détail dans la référence [23] et dans la partie 5.6.2.

## 5.6.1 Simulation des contraintes et des modes guidés

La contrainte étant due aux plots de silice dopée bore, il faut d'abord déterminer le coefficient d'expansion thermique pour ces plots. Dans un premier temps, l'indice des plots de silice dopée bore est déterminé à partir de la valeur de concentration (en mol%) en oxyde de bore [24]. La valeur donnée par le constructeur est de 16 mol% (Heraeus). D'après cette valeur, le contraste d'indice des plots par rapport à la silice pure est =  $-7.6 \ 10^{-3}$ .



Figure 5.13 : Valeur absolue du contraste d'indice en fonction de la concentration en oxyde de Bore (mol%) d'après la figure 3 de la référence [24].

De même, en considérant une variation linéaire du coefficient d'expansion thermique  $\alpha_{SiB}$  en fonction de la concentration en oxyde de Bore, il est possible de déterminer sa valeur pour la concentration de 16 mol% :

$$\alpha_{SiB} = \left(1 - \frac{C}{100}\right) \alpha_{Si} + \frac{C}{100} \alpha_{B_2 O_3}$$
(5.6)

où C est la concentration en mol%,  $\alpha_{Si} = 5.4 \ 10^{-7} \ \text{K}^{-1}$  et  $\alpha_{B2O3} = 10^{-5} \ \text{K}^{-1}$  [25]. La valeur retenue pour les simulations est  $\alpha_{SiB} = 2.05 \ 10^{-6} \ \text{K}^{-1}$ .

Dans notre modèle, nous négligeons les contraintes mécaniques dues au tirage de la fibre, ainsi que les contraintes hydrostatiques par rapport aux contraintes thermiques. Comme on ne connaît pas l'historique des verres, on prend les mêmes paramètres visco-élastiques (coefficient de Poisson v = 0.17, module de Young E = 72 GPa,  $C_1 = 0.65 \ 10^{-12} \ m^2/N$ ) que l'on considère constants avec la température, et sont identiques à ceux de la silice pure pour tous les matériaux. Nous verrons par la suite que malgré ces simplifications du modèle, les résultats de simulation sont en accord avec les résultats expérimentaux. Le code de simulation permet de calculer les contraintes de Von-Mises et en déduire des profils d'indice différents suivant les axes x et y. La différence de ces profils permet de déterminer le profil de biréfringence de phase (Figure 5.15 (b)). Finalement les pertes par confinement sont calculées à l'aide d'une couche absorbante ou Perfectly Matched Layer (PML), particulièrement adaptée dans le cas où l'indice est anisotrope [26,27].

Remarque : même sans contrainte, c'est-à-dire avec le même coefficient d'expansion thermique pour tous les matériaux, les indices des matériaux sont modifiés par la formule :

$$\Delta n = C_1 \frac{E(1 - v)}{(1 + v)(1 - 2v)} \theta \,\alpha_{Si}$$
(5.7)

où  $\theta$  est la différence entre la température de transition du verre ( $T_g = 1275$  K) et la température ambiante ( $T_{ref} = 295$  K). On voit par cette formule que l'écart d'indice est proportionnel à cette différence de température, la pente déterminée par la formule étant égale à 1.75  $10^{-7}$  K<sup>-1</sup>. Si on calcule  $\Delta n$  à l'aide de la simulation on trouve une pente égale à 1.63  $10^{-7}$  K<sup>-1</sup> (d'après la Figure 5.14), légèrement différente du calcul analytique mais du même ordre de grandeur. Dans notre cas  $\theta$  = -980 K [28], ce qui correspond d'après la courbe à une différence d'indice de 1.77  $10^{-4}$ .



Figure 5.14 : Variation de l'indice de la silice en fonction de la température de transition du verre.

Dans la suite des simulations, les indices des matériaux sont majorés de cette valeur afin que l'on retrouve bien l'indice du cœur =  $n_{Si} - 6 \times 10^{-4}$  dans le cas où les coefficients d'expansion thermique sont égaux à celui de la silice (5.4  $10^{-7}$  K<sup>-1</sup>). Finalement, le profil d'indice de la fibre (sans contrainte) est donné par la figure 5.15(a) : le cœur est en silice, l'anneau en silice dopée Germanium, les trous d'air de la gaine présentent deux rapports  $d/\Lambda$  différents (0.08 et 0.3) et les plots de silice dopés bore sont placés de part et d'autre du cœur, suivant l'axe x.



Figure 5.15 : (a) Profil d'indice 2D de la fibre (simulé sans contrainte) : en orange, la gaine en silice pure, en jaune le cœur en silice avec un léger contraste d'indice (-6  $10^{-4}$ ) par rapport à la silice de la gaine, en bleu foncé les trous d'air et en bleu, les plots en silice dopée bore. (b) Profil 2D de biréfringence de phase simulé ( $n_x - n_y$ ).

A partir de ce profil de biréfringence, le code permet de calculer les modes guidés ainsi que les indices effectifs correspondant, notés  $n_{effx}$  et  $n_{effy}$ .

(a)



Figure 5.16 : (a) Profil transverse du mode fondamental avec une polarisation suivant x (a) et suivant y (b) ; en jaune, sont représentées les lignes de champ correspondant à la polarisation.

Pour comparer avec les résultats expérimentaux, on détermine la biréfringence de groupe  $B_g$  en ajustant la biréfringence de phase  $B_{\varphi}$  sur une variation linéaire, calculée pour cinq valeurs de longueurs d'onde autour de 1050 nm :

$$B_g = B - \lambda \frac{dB}{d\lambda}$$
(5.9)

Finalement, la valeur calculée donne  $B_g = 0.58 \ 10^{-4}$ , très proche de la valeur de biréfringence de phase, correspondant à la différence d'indices effectifs  $n_{effx}$  -  $n_{effy}$  (=0.61  $10^{-4}$ ).

#### 5.6.2 Réalisation et caractérisation de la fibre monomode à mode aplati et à maintien de polarisation

La fibre fabriquée et caractérisée par Pierre Gouriou présente les caractéristiques suivantes : diamètre de cœur de 14 µm, un contraste d'indice et une épaisseur d'anneau de 4 10<sup>-3</sup> et 285 nm respectivement, un pas de 5,7 µm et un rapport  $d/\Lambda = 0,08$  (cf Figure 5.17). La concentration en bore des barreaux de contrainte est de 16% wt, correspondant à un contraste d'indice de -7,6 10<sup>-3</sup> par rapport à la silice pure. Le diamètre des barreaux par rapport au pas sont  $d_{B}/\Lambda = 0,91$ . Les gros trous ( $d/\Lambda = 0,3$ ) permettent de jouer le même rôle que la couche de silice dopée fluor qui était présente dans la première fibre (cf partie 5.4). Le diamètre de mode mesuré à 1/e<sup>2</sup> est de 18,8 µm et les pertes par confinement de 0,1 dB/m ont été déterminées par la méthode de cut-back [23].



Figure 5.17 : (a) Image MEB de la fibre à maintien de polarisation : en blanc l'anneau en silice dopée Germanium, en noir, les trous d'air dans une matrice de silice en gris et en gris foncé les plots de silice dopée bore. (b1) profil 2D du mode fondamental, (b2) et (b3) Coupes transverses du mode fondamental suivant x et y.

De la même manière, la caractérisation des profils de mode a été réalisée par Florent Scol au CEA/ CESTA en utilisant la même méthode S<sup>2</sup>, améliorée par Benoit Sévigny [29] en ce qui concerne le traitement des données. Les profils du mode fondamental et des premiers modes d'ordre supérieur suivant une même polarisation sont représentés sur la figure 5.18.



*Figure 5.18 : Profil de modes déduit des mesures de battement entre mode fondamental et modes d'ordre supérieur. Les modes d'ordre supérieur présentent des puissances très faibles par rapport à celle du mode fondamental plat.* 

Les modes d'ordre supérieur existent mais leur puissance par rapport au mode fondamental est très faible (> -15 dB). On peut alors en déduire que notre fibre est **monomode** en pratique. Par ailleurs, nous avons aussi mesuré la **biréfringence de groupe** entre les deux modes fondamentaux en excitant les modes avec les deux polarisations à l'entrée de la fibre, soit par la méthode du spectre cannelé, soit par la méthode S<sup>2</sup>. La valeur mesurée est de **0,6 10<sup>-4</sup>**. La valeur issue des simulations donne aussi une biréfringence de groupe proche de 0,6 10<sup>-4</sup>, en accord avec les mesures. Pour cette fibre, nous sommes les pionniers et ces résultats sont très encourageants. Cette fibre a été intégrée avec succès dans la chaîne pilote du laser [30], et dans un prototype industriel [31].

# 5.6.3 Augmentation de la biréfringence

Nous avons vu que notre modèle permettait de rendre compte efficacement des résultats expérimentaux en ce qui concerne la biréfringence. Différentes structures de fibres ont été simulées afin d'augmenter la valeur de biréfringence [32,33] : nous pouvons rapprocher les plots et nous pouvons augmenter :

- le nombre de plots
- le diamètre des plots
- le pourcentage de dopage d'oxyde de bore

Dans le tableau 1, je présente la biréfringence calculée et le profil transverse du mode fondamental pour différentes configurations des plots en silice dopées bore, toute chose égale par ailleurs à la première configuration. Pour les deux premiers cas, les 12 plots de bore sont rapprochés d'une à deux couronnes. Pour le troisième cas, le dopage en bore est augmenté de 16 à 24 %. Pour le quatrième cas, le diamètre des plots par rapport au pas  $\Lambda$  est augmentée de 0.91 à 0.99 et finalement, le nombre de plots est doublé pour le dernier cas. Nous constations que lorsque les plots sont trop rapprochés (cas n°2), le profil du mode fondamental est trop déformé. J'ai vérifié que cette déformation était due à la différence d'indice entre la gaine avec les plots de silice dopée bore et la gaine avec les trous d'air, et non à cause de la biréfringence. En effet si on calcule l'indice équivalent  $n_{FSM}$  correspondant, ces indices sont très différents : 1.444405 et 1.449023 respectivement.

Configuration	Rapprochement	Rapprochement	Dopage 24	d/Λ = 0,99	2x12 plots
	d'une couronne	de 2 couronnes	mol%		
Biréfringence	0.98 10-4	1.00 10-4	0.97 10-4	0.76 10-4	1.08 10-4
	(λ = 1.017 μm)	(λ = 1.05 μm)	(λ = 1.05 μm)	(λ = 1.05	(λ = 1.045
				μm)	μm)
Déformation	Déformation	Grande	Peu de	Pas de	Peu de
		déformation	déformation	déformation	déformation
profil transverse Mode Fondamental				u <sup>3</sup>	

Tableau 1 : Résultats de simulation pour différentes structures de fibre.

D'après ces résultats, nous choisissons de combiner plusieurs configurations : 2 x 12 plots,  $d_B/\Lambda = 0.99$  et une concentration égale à 24 mol% (cf Figure 5.19), correspondant à un contraste d'indice par rapport à la silice pure de -10.2  $10^{-3}$  et un coeffcient d'expansion thermique de 28.5  $10^{-7}$  K<sup>-1</sup>. Pour cette configuration, la biréfringence atteint 2  $10^{-4}$ . Si on augmente encore le nombre de plots comme dans la référence [32], la déformation du profil est plus importante.



Figure 5.19 : Profil d'indice (a) et profil du mode plat (b) pour la configuration suivante : 2 x12 plots sur le 4<sup>è</sup>, 5<sup>è</sup> et 6<sup>è</sup> couronnes,  $d_{\rm P}/\Lambda = 0.99$  et une concentration de bore de 24 mol%.

Nous avons en main les stratégies pour augmenter la biréfringence. Néanmoins, la réalisation expérimentale de fibres à maintien de polarisation en présence de trous d'air très petits (< 0.5  $\mu$ m) est un vrai défi. Nous avons aussi réalisé des fibres toutes solide avec des plots de silice dopés Fluor, à la place des trous d'air. Les difficultés rencontrées pour obtenir une fibre monomode ne nous ont pas permis de continuer dans cette voie. Pourtant les simulations que j'ai réalisées stipulaient un comportement monomode. Des études expérimentales sont en cours pour comprendre la déformation du profil d'indice qui intervient lors du fibrage.

La prochaine étape du développement des fibres à mode plat est l'augmentation de l'aire effective pour pouvoir amplifier à de plus fortes énergies (cf partie 5.1).

## 5.7 Augmentation de l'aire effective du mode fondamental aplati

#### 5.7.1 Introduction

Nous cherchons à adapter la fibre amplificatrice de plus gros diamètre utilisé dans la chaine laser pilote du CEA (cf figure 5.1). Le diamètre de mode de cette fibre (NKT DC-200/40-PZ Yb) est de 30 µm. Il faut alors trouver une structure de fibre qui permette de coupler efficacement le mode sortant de la fibre amplificatrice avec notre fibre à mode aplati. En annexe 3, j'explique comment obtenir le meilleur coulage entre ces deux fibres.

Pour augmenter le diamètre de mode, il faut augmenter la taille du cœur, et donc le pas du réseau. Malheureusement le nombre de modes guidés augmentent de plus en plus au détriment de la qualité spatiale du faisceau en sortie de fibre. Nous devons mettre en place de nouvelles stratégies pour garder une fibre quasi-monomode tout en assurant un diamètre de mode satisfaisant.

Vu qu'il est difficile de fabriquer une fibre avec des trous assez petits pour garder une fibre monomode, il faut relâcher la contrainte sur l'indice effectif des premiers modes d'ordre supérieur par rapport à l'indice de la gaine microstructurée. On vise alors exacerber les pertes de ces modes par rapport à celles du mode fondamental tout en gardant des pertes pas trop élevées pour ce mode guidé. Pour ce faire, la stratégie la plus répandue est la délocalisation des modes d'ordre supérieur dans la gaine [34] : on impose des résonances entre les modes d'ordre supérieurs et des modes de gaine afin de favoriser leur fuite vers la gaine.

Cette stratégie a déjà été vérifiée au sein de notre équipe pour des fibres microstructurées toute solide, présentant alors un guidage par bande interdite : l'hétérostructuration de la gaine [35] a permis d'obtenir des diamètres de mode (MFD) de 40  $\mu$ m et la fibre de Bragg pixélisée [36,37] a dépassé les limites pour ce type de fibre (MFD de 100  $\mu$ m). Il est à noter que pour une fibre active, le recouvrement du mode fondamental avec le cœur dopé favorise le guidage de ce mode au détriment des modes d'ordre supérieur. Dans le cas de la fibre LCF (Leakage Channel Fiber) dopée Ytterbium (Yb) [38], le mode plat a été obtenu en contrôlant l'indice du cœur par rapport à l'indice de la gaine.

Pour la fibre à mode plat, nous avons alors décidé d'adopter ces deux stratégies : dans un premier temps, Pierre Gouriou a étudié une structure comportant des résonateurs inclus dans la gaine qui permettent de coupler les modes d'ordre supérieur (HOM) avec le mode d'ordre fondamental de ces mêmes résonateurs. Dans un deuxième temps, Marlène Paris, étudiante de M2, a simulé une fibre de Bragg pixélisée, décrites dans [36], en remplaçant les plots de silice dopée Germanium par des trous d'air. Finalement, je montrerai que l'effilage d'une fibre, monomode côté petit diamètre, nous permettra d'atteindre le seul mode aplati et guidé de MFD supérieur à 25 µm.

#### 5.7.2 Résonateurs dans une gaine à symétrie hexagonale

Pour coupler les HOM avec le mode fondamental des résonateurs, il faut que les indices effectifs de ces modes soient égaux. Dans une première étude, on cherche alors à optimiser ce couplage en calculant l'indice effectif du mode fondamental de résonateur de différentes géométries et en le comparant à l'indice effectif du premier mode d'ordre supérieur. Il faut aussi s'assurer que les pertes du FM des résonateurs sont assez importantes pour éviter que l'énergie ne se recouple dans les HOM.



Figure 5.20 : Résultast de l'étude sur le contenu modal de la fibre PM présentant des résonateurs dans sa gaine, avec le profil d'indice (sans la prise en compte des contraintes) en haut et le profil d'intensité 2D des modes en bas. FM1 et FM2 sont les deux modes fondamentaux, HOM1a à d, les premiers modes d'ordre supérieurs, MH1 et MH2 des modes qualifiés d'hybride avec de l'énergie dans les résonnateurs et dans le cœur de la fibre.

Nous voyons sur la figure 5.20 que seul le premier mode fondamental (FM1) ne se couple pas aux résonnateurs. Les autres modes subissent un couplage causant des pertes par confinement plus élevées. Néanmoins pour les deux premiers modes d'ordre supérieur, ces pertes, inférieures à 0.1 dB/m, ne sont pas suffisantes pour éviter leur guidage. Lorsque la fibre est courbée, les indices des matériaux sont modifiés sous la courbure et les indices effectifs des modes sont différents. Pierre Gouriou a aussi montré que si l'on courbe cette fibre dans la direction des plots de contrainte, les pertes par confinement des HOM sont fortement augmentées. La fibre ne guide que les deux modes fondamentaux, polarisés linéairement suivant l'axe des plots et l'axe perpendiculaire aux plots. Cette étude a permis de dégager une structure intéressante pour le couplage avec la fibre amplificatrice de NKT.

## 5.7.3 Hétérostructuration dans une gaine à symétrie cylindrique

En parallèle, Marlène Paris, étudiante de M2, a étudié la structure de fibre de Bragg pixélisée mais pour laquelle les plots de silice dopée Germanium sont remplacés par des trous d'air. Les premiers résultats ont montré qu'il était possible de trouver une configuration pour laquelle on maximise les pertes des modes supérieurs tout en gardant des pertes acceptables pour le mode fondamental mais seulement dans le cas d'un mode quasi-gaussien. La structure de la fibre est représentée sur la figure 2.22. Les dimensions optimums sont :

- R<sub>c</sub>= 15µm le rayon de la première couronne
- $d_{air}$ =4.6  $\mu m$
- $R_{c2}$ =26.5 µm rayon de la seconde couronne
- $N_1$ = 10 inclusions
- $N_2$ = 13 inclusions hétérostructurées en  $2\pi/8$

Pour ces paramètres, on obtient des pertes par confinement de 6.02 10<sup>-2</sup> dB/m pour le mode fondamental et 30 dB/m pour le premier HOM.



Figure 5.22 : Profil d'indice de la fibre de Bragg pixélisée air/silice, en rouge la silice pure et en bleu les trous d'air.

Néanmoins, dès qu'on veut obtenir un mode plat, l'indice du mode fondamental est modifié et la condition de résonance n'est plus vérifiée. Une étude numérique s'impose alors pour trouver la meilleure configuration. Il faudra valider cette structure avant une fabrication éventuelle.

# 5.7.4 Réalisations expérimentales de fibres à grand cœur

Plusieurs fibres comportant des résonnateurs mais sans plots de contrainte ont été réalisées mais les caractérisations ont montré que les modes d'ordre supérieurs sont guidés même avec une longueur de fibre de1,5 m.

Une autre approche a consisté à effiler une fibre en augmentant la taille transverse d'un facteur 2,23. Les dimensions en entrée et en sortie, exprimées en µm, sont résumées dans le tableau 2. Le rapport du diamètre des trous par rapport au pas est constant et il est de l'ordre de 0.09.

	Pas $\Lambda$	Diamètre cœur	Epaisseur anneau	Diamètre fibre
entrée	5.6	14.1	0.35	249
sortie	12.6	34.0	0.80	556

Tableau 2 : Dimensions transverses de la fibre effilée

En injectant la lumière laser de façon centrée du côté petit diamètre, on s'assure que seul le mode fondamental est bien injecté. A la sortie, nous n'observons que le mode fondamental, même si pour ces dimensions de cœur, les modes d'ordre supérieur peuvent être guidés. Il est alors plus facile de caractériser le profil spatial du mode fondamental. Sur la figure 5.23 est représenté le profil spatial en sortie de fibre, du côté gros diamètre pour plusieurs longueurs d'onde. Pour ces dimensions, nous observons que le mode est plat à  $\lambda = 1150$  nm au lieu de 1050 nm.



*Figure* 5.23 : *Profils transverses de sortie côté gros diamètre de la fibre en fonction de la longueur d'onde.* 

Pour obtenir le mode plat à la bonne longueur d'onde on coupe la fibre de 20 cm, puis de 40 cm et on mesure les profils en sortie à  $\lambda$  = 1050 nm.



Figure 5.23 : Profils transverses de sortie côté gros diamètre de la fibre à 1050 nm en coupant de 20cm, puis de 40 cm

Finalement, nous trouvons le mode plat à 1050 nm, ce qui nous permet de connaître la dimension transverse adéquate pour le couplage avec la fibre amplificatrice NKT de diamètre de mode de 30 µm.

# **5.8 Conclusion et perspectives**

En conclusion, par rapport à la génération d'harmoniques d'ordre élevé, le projet est plutôt technologique. Les simulations avec le logiciel COMSOL se sont avérées pertinentes pour prédire et comprendre les résultats des réalisations et de caractérisations des fibres fabriquées. Il existe une bonne synergie entre les modélisateurs et les expérimentateurs, ce qui a permis de réaliser les fibres souhaitées. Les résultats de ces études ont fait l'objet de 3 publications et de 10 présentations orales dans des conférences internationales. Avec deux brevets, ces recherches ont montré leur potentiel de valorisation auprès d'industriels comme par exemple la société Eolite à Bordeaux. Pour l'instant leur système laser de découpe utilise une fibre multimode conventionnelle, provoquant une perte de la cohérence spatiale du faisceau due aux différents modes guidés dans la fibre. La précision de la découpe, ou de la gravure laser, sera nettement augmentée avec une fibre qui délivre directement un mode plat.

Les études vont se poursuivre lors d'une thèse financée et se déroulant à l'université de Lille. Plusieurs voies seront testées pour connaître les avantages et les inconvénients des différentes stratégies exposées dans le paragraphe 5.7. De plus, nous souhaitons aussi doper le cœur de notre fibre pour amplifier directement dans la fibre Mode Plat. Le dopage du cœur en ions Ytterbium par voie sol-gel [39] est maintenant bien maîtrisé au laboratoire. Une autre technique est en cours d'étude afin d'améliorer le contrôle de l'indice du cœur, clé pour la réussite de l'élaboration de nos fibres.

## Références

- [1] A. Jolly, J-F. Gleyze, J. Luce, H. Coïc, and G. Deschaseaux, *Front-end sources of the LIL-LMJ fusion lasers: progress report and prospects, Opt. Eng.*, **42**, 1427 (2003)
- [2] B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, *Laser-Induced Damage in Dielectrics with Nanosecond to Subpicosecond Pulses*, Phys. Rev. Lett. **74**, 2248 (1995)
- [3] X. Lu, Q Zhou, J. Qiu, C. Zhu, and D. Fan, *Design guidelines and characteristics of beam-shaping microstructure optical fibers*, Opt. Commun. **259**, 636 (2006)
- [4] C. Wang, F. Zhang, Y. Lu, C. Liu, R. Geng, and T. Ning, *Photonic crystal fiber with a flattened fundamental mode for the fiber lasers*, Opt. Commun. **282**, 2232 (2009)
- [5] C. Wang, F. Zhang, Y. Lu, C. Liu, R. Geng, T. Ning, and S. Jian, Single mode operations in the large flattened mode optical fiber lasers and amplifiers, J. Opt. A: Pure Appl. Opt. 11, 065402 (2009)
- [6] J. K. Sahu, S. Yoo, A.J. Boyland, A. S. Webb, M. Kalita, J. N. Maran, Y. Jeong, J. Nilsson, W. A. Clarkson, and D. N. Payne, "Fiber design for high-power fiber lasers," Proc. SPIE **7195**, 719501 (2009)
- [7] N. N. Elkin, A. P. Napartovich, V. N. Troshchieva, and D. V. Vysotsky, "Modelling of large flattened mode area fiber lasers," Laser Physics **20**, 304-310 (2010).
- [8] A. K. Ghatak, I. C. Goya, and R. Jinda, "Design of waveguide refractive index profile to obtain flat modal field," Proc. SPIE **3666**, 40-44 (1999)
- [9] J. W. Dawson, R. J. Beach, I. Jovanovic, B. Wattelier, Z. M. Liao, S. A. Payne, and C. P. J. Barty, "Large flattened mode optical fiber for reduction of non-linear effects in optical fiber lasers," Proc. SPIE 5335, 132-139 (2004)
- [10] E. Hugonnot, L. Lago, A. Mussot, Y. Quiquempois, G. Bouwmans, L. Bigot, C. Valentin, *Fibre optique microstructurée à grand cœur et à mode fondamental aplati, et procédé de conception de celle-ci, application à la microfabrication par laser., dépôt FR 11 58356, Numéro de publication EP2758816 A1 (WO2013041533), date de priorité 20/09/2012, date de dépôt 18/09/2013, date de publication 30/07/2014*
- [11] Kunimasa Saitoh, Yukihiro Tsuchida, and Masanori Koshiba, and Niels Asger Mortensen, *Endlessly single-mode holey fibers: the influence of core design*, Opt. Express **13**, 10833 (2005)
- [12] Constance Valentin, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Marc Douay, Arnaud Mussot, Laure Lago, Pierre Calvet, and Emmanuel Hugonnot, *Flattened fundamental mode in microstructured fibers: design, realization and characterization.*, Proc. of SPIE Vol. 8426 84260J (2012)
- [13] C. Christian Abele, Jenifer L. Bums, George F. Caudle, Gary Klauminzer, *Specifying excimer beam uniformity*, SPIE Vol.1834 Laser Energy Distribution Profiles, 123 (1992)
- [14] Constance Valentin, Pierre Calvet, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Quentin Coulombier, Marc Douay, Karen Delplace, Arnaud Mussot, and Emmanuel Hugonnot,

Top-hat beam output of a single-mode microstructured optical fiber: Impact of core index depression. Opt. Express **21**, 23250 (2013)

- [15] Pierre Calvet, Constance Valentin, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Marc Douay, Arnaud Mussot and Emmanuel Hugonnot, *Top-hat beam output from a large mode area microstructured fiber for beam delivery.*, Proc. of SPIE Vol. **8433** 84330K (2012)
- [16] J. W. Nicholson, A. D. Yablon, S. Ramachandran, and S. Ghalmi, *Spatially and spectrally resolved imaging of modal content in large-mode-area fibers.*, Opt. Express 16, 7233 (2008); Duc Minh Nguyen, Stéphane Blin, Thanh Nam Nguyen, Sy Dat Le,Laurent Provino, Monique Thual, and Thierry Chartier, *Modal decomposition technique for multimode fibers.*, App. Opt. **51**, 450 (2012)
- [17] Pierre Calvet, Constance Valentin, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Marc Douay, Arnaud Mussot and Emmanuel Hugonnot, *Modal Content Measurement by the S<sup>2</sup> Method of a TopHat Beam Output Fiber.*, Advanced Solid-State Lasers Congress AM4A.40. (2013)
- [18] Pierre Calvet, Mise en forme spatiale dans une fibre optique microstructurée pour la réalisation d'amplificateurs lasers tout fibrés pour les pilotes des lasers de puissance, thèse de doctorat (2014)
- [19] Pierre Calvet, Constance Valentin, Pierre Gouriou, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Quentin Coulombier, Marc Douay, Rémi Habert, Karen Delplace, Arnaud Mussot, and Emmanuel Hugonnot, *Top-hat beam output with 100 μJ temporally shaped narrow-bandwidth nanosecond pulses from a linearly polarized all-fiber system.*, Opt. Lett. **39**, 4780 (2014)
- [20] Marti Duocastella and Craig B. Arnold, *Bessel and annular beams for materials processing*, Laser Photonics Rev. **6**, 607–621 (2012)
- [21] E. Hugonnot, C. Valentin, Y. Quiquempois, G. Bouwmans, L. Bigot, A. Mussot, Mise en forme spatiale par une fibre microstructurée effilée d'un mode de forme gaussienne vers une forme aplatie ou une forme en anneau., dépôt n° 12 52098, Numéro de publication EP 2823342 A1 (WO2013131877) date de priorité 8/03/2012, date de dépôt 5/03/2013, date de publication 14/01/2015
- [22] S. Laflamme, S. Lacroix, J. Bures, and X. Daxhelet, Understanding power leakage in tapered solid core microstructured fibers., Opt. Express, **15**, 387 (2007)
- [23] Pierre Gouriou, Florent Scol, Benoit Sevigny, Constance Valentin, Yves Quiquempois, Laurent Bigot, Rémi Habert, Andy Cassez, Olivier Vanvincq, Emmanuel Hugonnot, and Géraud Bouwmans, *Polarization maintaining single-mode fiber delivering a flat top intensity profile.*, Opt. Express 23, 32496 (2015)
- [24] C.R. Hammond, S.R. Norman, *Silica based binary glass systems- refractive index behaviour and composition in optical fibres*, Optical and Quantum Electronics, **9**, 399 (1977)
- [25] R. Guan, F. Zhu, Z. Gan, D. Huang and S. Liu, *Stress birefringence analysis of polarization maintaining optical fibers*, Optical Fiber Technology, **11**, 240–254 (2005)

- [26] F.L. Teixeira and W.C. Chew, Systematic derivation of anisotropic pml absorbing media in cylindrical and spherical coordinates, IEEE Microwave and guided wave letters, 7(11), 371– 373 (1997).
- [27] F.L. Teixeira and W.C. Chew, General closed-form pml constitutive tensors to match arbitrary bianisotropic and dispersive linear media, IEEE Microwave and guided wave letters, 8(6), 223– 225 (1998)
- [28] T. Schreiber, F. Röser, O. Schmidt, J. Limpert, R. Iliew, F. Lederer, A. Petersson, C. Jacobsen, K. P. Hansen, J. Broeng, A. Tünnermann, *Stress-induced single-polarization single-transverse mode photonic crystal fiber with low nonlinearity.*, Opt. Express 13, 7621 (2005)
- [29] Benoit Sévigny, Guillaume Le Cocq, Carmen Carina Castineiras Carrero, Constance Valentin, Pierre Sillard, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, and Yves Quiquempois, Advanced S2 Imaging: Application of Multivariate Statistical Analysis to Spatially and Spectrally Resolved Datasets, J. Light. Technol. 32, 4004 (2014)
- [30] Florent Scol, Pierre Gouriou, Arnaud Perrin, Jean-François Gleyze, Constance Valentin, Géraud Bouwmans, and Emmanuel Hugonnot, *All-fiber MOPA prototype with 100 μJ temporally-shaped nanosecond-pulse and spatially coherent top-hat beam output for largescale laser facility front end.*, CLEO 2016
- [31] J.-F. Gleyze, A. Perrin, P. Calvet, P. Gouriou, F. Scol, C. Valentin, G. Bouwmans, E. Lecren, E. Hugonnot, *Industrial mJ-class all-fiber front end with spatially coherent top-hat beam output used as seeder for high power laser.*, Proc. of SPIE Vol. 9513, 95130C (2015)
- [32] Pierre Gouriou, Florent Scol, Benoit Sevigny, Constance Valentin, Yves Quiquempois, Laurent Bigot, Rémi Habert, Andy Cassez, Olivier Vanvincq, Emmanuel Hugonnot and Geraud Bouwmans, *Top hat single-mode polarization maintaining fiber and polarizing numerical design*, Proc. of SPIE Vol. **9728**, 97281A (2016)
- [33] C. Valentin, P. Gouriou, F. Scol, B. Sevigny, Y. Quiquempois, L. Bigot, R. Habert, A.Cassez, O. Vanvincq, E. Hugonnot, and G. Bouwmans, *First realization of a birefringent flat-top single-mode fiber*, Proc. of SPIE Vol. **9886**, 988615 (2016)
- [34] J. Limpert, F. Stutzki, F. Jansen, H.-J. Otto, T. Eidam, C. Jauregui, and A. Tünnermann, *Yb-doped large-pitch fibres: effective single-mode operation based on higher-order mode delocalisation*, Light Sci. Appl. **1**, 8 (2012)
- [35] A. Baz, L. Bigot, G. Bouwmans, and Y. Quiquempois, *Single-mode, large mode area, solid-core photonic bandgap fiber with hetero-structured cladding*, J. Light. Technol. **31**, 830 (2013)
- [36] J.-P. Yehouessi, A. Baz, L. Bigot, G. Bouwmans, O. Vanvincq, M. Douay, and Y. Quiquempois, Design and realization of flexible very large mode area pixelated Bragg fibers., Opt. Lett. 40, 363 (2015)
- [37] Jean-Paul Yehouessi, Olivier Vanvincq, Andy Cassez, Marc Douay, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, and Laurent Bigot, *Extreme large mode area in single-mode pixelated Bragg fiber*, Opt. Express **24**, 4761 (2016)
- [38] Fanting Kong, Guancheng Gu, Thomas W. Hawkins, Joshua Parsons, Maxwell Jones, Christopher Dunn, Monica T. Kalichevsky-Dong, Kanxian Wei, Bryce Samson, and Liang

Dong, *Flat-top mode from a 50 µm-core Yb-doped leakage channel fiber.*, Opt. Express **21**, 32371 (2013)

[39] Hicham El Hamzaoui, Laurent Bigot, Géraud Bouwmans, Igor Razdobreev, Mohamed Bouazaoui, and Bruno Capoen, *From molecular precursors in solution to microstructured optical fiber: a Sol-gel polymeric route.*, Opt. Mat. Express **1**, 235 (2011)

# **Chapitre 6 : Conclusion générale et perspectives**

## 6.1 Conclusion générale

Dans un souci de clarté, notre équipe du LOA a choisi de concevoir et d'utiliser des codes de simulation implémentés en interne permettant d'interpréter les résultats expérimentaux. La première étude à laquelle j'étais confrontée en arrivant au LOA a bien montré que l'interaction d'une impulsion ultra-intense et ultra-courte avec les atomes du gaz avait un impact non négligeable sur la forme temporelle des impulsions, ainsi que la phase temporelle (chapitre 2 et annexe 1). A chaque degré d'ionisation, le code de simulation que j'ai utilisé prévoyait un creux dans l'enveloppe de l'impulsion. Néanmoins les intensités requises pour une forte ionisation sont trop importantes pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé et on suppose que l'impulsion laser IR est peu modifiée après passage dans la cellule de génération. La plupart des développements théoriques développés dans les années 1990 permettent de comprendre les résultats sauf pour notre expérience de génération anormale. J'ai cherché à développer d'autres théories (double ionisation, ...) mais il semblerait que le double plateau serait dû à la génération d'harmoniques en présence des harmoniques d'ordre plus bas qui sont réabsorbées par le gaz. Une première étude théorique que j'ai menée montre que le signal harmonique au niveau microscopique est augmenté de 4 ordres de grandeur par rapport à la génération avec le laser IR seul (chapitre 3 et annexe 2).

L'optimisation de la source XUV en termes de flux a été un travail fastidieux, qui a mobilisé une partie de l'équipe pendant plusieurs années (chapitre 3) :

- tout d'abord l'optimisation par la géométrie de l'interaction (volume focal, position de la cellule de gaz par rapport au plan focal, pression du gaz, intensité du faisceau IR)

- ensuite l'optimisation à l'aide de deux dispositifs complémentaires : le Dazzler qui agit sur la phase spectrale et un miroir déformable qui agit sur la phase spatiale du faisceau IR. On retiendra qu'il est possible d'augmenter le signal des harmoniques proches de H25 encore d'un facteur proche de 10.

Finalement, la génération par deux couleurs ( $\omega$  et 2 $\omega$ ) a permis d'optimiser le signal pour de plus courtes longueurs d'onde. Nous avons opté pour un dispositif simple où le faisceau doublé est collinéaire au faisceau IR et est focalisé par la même lentille dans la cellule de gaz. Le recouvrement temporel des 2 impulsions est préservé en prenant un cristal doubleur assez fin (100 µm d'épaisseur). Par contre les polarisations sont croisées. Il s'avérera que cette configuration permettra de produire des harmoniques avec une polarisation circulaire, utile pour l'expérience de dicroisme magnétique dans des films minces de Cobalt et de Nickel [1]. Cette expérience d'application consiste à étudier la démagnétisation ultrarapide de ces échantillons, excités par un rayonnement IR. B. Vodungbo *et al.* ont démontré que cette démagnétisation s'opérait au niveau des nano-domaines magnétiques (de quelques dizaines de nm), ces observations n'étant possible que qu'avec une source cohérente délivrant des impulsions ultra-courtes telle que les HH.

Toutes les expériences d'optimisation peuvent être interprétées à l'aide d'un code de simulation Matlab qui tient compte de l'accord de phase transitoire suivant l'axe de propagation (code 1D). En effet lors du passage de l'impulsion ultra-courte et ultra-intense dans la cellule, les atomes du gaz s'ionisent au fur et à mesure que l'enveloppe de l'impulsion pénètre dans le gaz. Le processus d'ionisation tunnel fait accroître le nombre d'électrons dans la cellule de gaz. Nous avons vu que l'accord de phase dépendait du nombre d'électrons et donc on comprend bien que l'accord de phase dépend du temps. Les paramètres suivants interviennent dans le calcul de l'accord de phase (annexe 2) :

- l'intensité du faisceau IR et le nombre d'électrons, obtenus par ionisation tunnel

- la pression du gaz et le nombre d'atomes neutres

- la géométrie du volume focal : la phase atomique et le gradient d'intensité, ainsi que le gradient de

- la phase de Gouy (pour un faisceau gaussien)

Grâce à ces outils développés dans notre groupe et que j'ai améliorés au fil du temps, nous avons réussi à comprendre les différents processus qui permettent l'optimisation du signal harmonique. L'interaction entre les expériences et les simulations est en grande partie responsable de la réussite des optimisations. J'ai adapté ce code pour la génération d'harmoniques dans les fibres optiques (chapitre 4).

Ces optimisations ont permis différentes expériences d'applications telles que la détection de phonons optiques dans le Bismuth [2] ou l'ablation de PMMA [3]. La première expérience est basée sur la détection de rayonnement XUV réfléchi par un échantillon de Bismuth, excité par un rayonnement IR. L'intérêt de cette expérience est de sonder une zone non accessible dans la première zone de Brillouin par d'autres rayonnements (visible, IR ou X). Le coefficient de réflexion dépend de la structure du cristal du Bismuth en surface. La deuxième expérience consiste à étudier l'impact de la focalisation d'un rayonnement XUV sur un échantillon de PMMA, suivant le temps d'irradiation. Cette étude permet de mesurer le seuil de dommage du PMMA dans ce domaine spectral. A terme d'autres échantillons seront irradiés afin de connaître les seuils de dommage dans cette gamme spectrale pour les optiques XUV.

L'optique XUV est aussi une discipline en plein essor : la collaboration avec l'équipe de F. Delmotte du LCFIO a été très fructueuse pour la conception et la réalisation de miroir XUV large bande autour de 32 nm (H25). La collaboration avec la société Imagine Optic et l'équipe de M. Idir au synchrotron SOLEIL a été déterminante pour concevoir un senseur Hartmann pour les XUV. Par des mesures combinées de front d'onde IR et de front d'onde XUV, nous avons pu montrer que la qualité du front d'onde du faisceau fondamental influençait directement celui du faisceau harmonique (chapitre 3). Pour expliquer les effets de la phase spatiale (ou aberrations) du laser fondamental sur la phase spatiale des harmoniques, j'avais débuté l'écriture d'un code 3D de simulation pour la propagation des harmoniques (annexe 2). Ce code pourrait être finalisé si besoin.

Les harmoniques d'ordre élevées sont émises sous forme de trains d'impulsions attosecondes (10<sup>-18</sup> s). La caractérisation temporelle de ces impulsions attosecondes demande une compréhension très profonde du processus de génération des harmoniques. Plusieurs expériences d'attophysique ont été réalisées en collaboration entre notre équipe et l'équipe d'A. L'Huillier à Lund (Suède) et celle de B. Carré au CEA/IRAMIS dans la cadre d'XTRA.

J'ai laissé de côté les expériences concernant le laser X – OFI. Ce sont des expériences utilisant un laser d'une centaine de TW (1J, 30 fs), l'intensité su cible devant atteindre 10<sup>17</sup> W/cm<sup>2</sup>. Pour cette thématique, j'ai effectué des simulations pour calculer la température électronique pour une intensité donnée. En ce qui concerne toute la physique de l'interaction du plasma avec le laser, G. Maynart du LPGP a développé un code qui permet d'expliquer la dynamique de l'amplification d'une harmonique dans le plasma.

Après ma mutation au PhLAM, le changement de thématique m'a stimulée dans de nouveaux axes de recherche. Je me suis principalement impliquée dans la collaboration avec le CEA/CESTA sur les fibres microstructurées délivrant un mode transverse aplati.

J'effectue les simulations à l'aide du logiciel COMSOL Multiphysics, associé au logiciel Matlab : j'ai adapté des codes existant. Ce logiciel permet de calculer les modes propres guidés dans la fibre (valeurs et vecteurs propres de l'équation de Helmholtz). Les pertes par confinement sont définies grâce à une couche absorbante d'épaisseur et de coefficient d'absorption choisis judicieusement.

Le design optimal pour les fibres mode plat repose sur des études paramétriques : épaisseur ( $\Delta R$ ) et contraste d'indice de l'anneau ( $\delta n_{ring}$ ) pour différents pas du réseau ( $\Lambda$ ), rapport diamètre sur pas (d/ $\Lambda$ ), indice du cœur ( $\delta n_{core}$ ), longueur d'onde ( $\lambda$ ). Ce travail, très fastidieux, m'a permis de dégager des formules empiriques pour connaître l'épaisseur optimale en fonction des autres paramètres.

Pour chaque réalisation, des simulations en amont permettent de déterminer la meilleure configuration pour l'anneau de haut indice, le nombre de couronnes, la taille des trous par rapport à la taille du pas du réseau... Après chaque tirage, on choisit la meilleure fibre par rapport aux specifications du CEA et je détermine finement les caractéristiques (MFD, pertes, biréfringence...) à l'aide des simulations.

En conclusion, mes différents changements de thématiques m'ont permis d'avoir plus de recul sur les différents sujets et de trouver des interactions entre les différents domaines. A l'aide de mes connaissances, je souhaite proposer plusieurs perspectives pour les années à venir.

# **6.2** Perspectives

En combinant les compétences et les connaissances aquises pendant ces années, je souhaite développer de nouvelles sources XUV, basées sur la génération d'harmonique, plus fiables et plus compactes.

#### 6.2.1 Source harmonique haute cadence

Usuellement, le laser générateur est un laser solide Ti:Sa : la cadence des impulsions est limitée par les effets thermiques dans le cristal Ti:Sa, qui peuvent dégrader la qualité spatiale du faisceau. La cadence des lasers à fibre peut atteindre plusieurs MHz car le milieu laser est distribué sur toute la longueur de la fibre émettrice. Il a été démontré qu'il est possible de générer des harmoniques d'ordre élevé en utilisant une source laser fibrée Yb [4-7]. On peut aussi générer les harmoniques directement dans la cavité laser [8-10]. Une expérience récente a même permis d'atteindre 250 MHz [11].

En injectant un laser délivrant une intensité de l'ordre de 10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup> dans une fibre kagomé remplie de gaz rare à très faible pression, mes simulations ont montré que le signal harmonique est limité seulement par l'absorption. Dans un premier temps, il faudrait valider le concept avec un laser Ti:Sa et une fibre kagomé du commerce [12]. Dans un second temps, il serait intéressant d'étudier les harmoniques générées à l'aide d'un laser fibré, d'intensité proche de 10<sup>14</sup>W/cm<sup>2</sup>, injecté dans une fibre kagomé dédiée.

Les applications à plus haute cadence sont multiples : on peut citer ces trois exemples : la double photo-ionisation d'atomes de gaz rare par champ IR et XUV et étudier ainsi les coïncidences de double ionisation [13], la spectroscopie de précision car les harmoniques sont générées sous forme de peigne de fréquence, avec une cadence de 100 kHz à plus de 100 MHz [10], permettant de sonder des transitions entre niveaux métastables, de largeur très fine [8,9]. L'injection des harmoniques dans le Laser à Electron Libre assure une meilleure cohérence temporelle [14,15].

#### 6.2.1 Impulsion attoseconde unique

Il est admis que le rayonnement harmonique se présente sous forme d'un train d'impulsions attosecondes (1 as =  $10^{-18}$  s). Si on veut obtenir une seule impulsion attoseconde, il faut soit un laser de pompe de durée inférieure à deux cycles optiques ( $T_c$ = 2,67 fs) et une phase stabilisée [16], soit réaliser une porte temporelle de l'ordre de la femtoseconde. Cette porte peut agir soit sur le processus de génération [17] (cf E. Constant et E. Mével en collaboration avec M. Nisoli à Milan), soit sur le processus d'accord de phase entre le laser fondamental et les harmoniques [18].

Comme expliqué dans l'annexe 2 et dans le chapitre 4, l'accord de phase est transitoire car il dépend de la densité électronique qui varie au cours du temps. Si le profil spatial transverse du laser générateur est plat, toutes les harmoniques subissent la même porte temporelle d'accord de phase et sont donc émises dans le même cycle laser : il en résulte une seule impulsion attoseconde. Ceci se traduit par un spectre d'harmoniques continu.

Une première expérience réalisée au LOA a montré que le spectre obtenu dans le cas d'un profil « top-hat » au niveau de la cellule de génération s'apparente à un quasi-continuum [19]. Des mesures complémentaires devront être réalisées pour vérifier que le quasi-continuum observé n'est pas dû à la défocalisation des harmoniques au niveau de la caméra CCD XUV. D'autres expériences ont été réalisées depuis : une au CEA/IRAMIS (Saclay) [20], une au CELIA (Bordeaux) [21,22]. Pour oberver le phénomène d'émission d'une impulsion attoseconde unique, il faudrait que le profil plat soit constant sur une longueur de génération plus importante que celle obtenue lors de ces expériences [22].

J'ai démontré que les fibres Mode Plat présentées au chapitre 5 sont tout à fait adaptées pour les lasers ultracourts car la plage spectrale sur laquelle le mode est plat est d'environ 200 nm [23]. Il serait intéressant de combiner les travaux sur l'obtention du mode plat dans un embout [24] pour les lasers de puissance et ces travaux de génération d'harmoniques.

# Références

- [1] B. Vodungbo, J. Gautier, G. Lambert, A. Barszczak Sardinha, M. Lozano, S. Sebban, M. Ducousso, W.Boutu *et al.*, *Laser-induced ultrafast demagnetization in the presence of a nanoscale magnetic domain network.*, Nat. Commun. **3**, 999 (2012)
- [2] E. Papalazarou, D. Boschetto, J. Gautier, T. Garl, C. Valentin, G. Rey, Ph. Zeitoun, A. Rousse, Ph. Balcou, and M. Marsi, *Probing coherently excited optical phonons by extreme ultraviolet radiation with femtosecond time resolution*, Appl. Phys. Lett. **93**, 041114 (2008)
- [3] J. Chalupský, L. Juha, V. Hájková, J. Cihelka, L. Vyšín, J. Gautier, J. Hajdu, S. P. Hau-Riege, M. Jurek, J. Krzywinski, R. A. London, E. Papalazarou, J. B. Pelka, G. Rey, S. Sebban, R. Sobierajski, N. Stojanovic, K. Tiedtke, S. Toleikis, T. Tschentscher, C. Valentin, H. Wabnitz, and P. Zeitoun, *Non-thermal desorption/ablation of molecular solids induced by ultra-short soft x-ray pulses.*, Optics Express 17, 208 (2009)
- [4] J. Boullet, Y. Zaouter, J. Limpert, S. Petit, Y. Mairesse, B. Fabre, J. Higuet, E. Mevel, E. Constant, and E. Cormier, *High-order harmonic generation at a MegaHertz-level repetition rate directly driven by an ytterbium-doped-fiber chirped-pulse amplification system*, Opt. Lett. 34 (9), 1489-1491 (2009)
- [5] Amélie Cabasse, Guillaume Machinet, Antoine Dubrouil, Eric Cormier, and Eric Constant, Optimization and phase matching of fiber-laser-driven high-order harmonic generation at high repetition rate, Opt. Lett. 37, 4618 (2012)
- [6] A. Cabasse, Ch. Hazera, L. Quintard, E. Cormier, S. Petit and E. Constant, *Collection and spectral control of high-order harmonics generated with a 50W high repetition rate Ytterbium femtosecond laser system*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **49**, 085601 (2016)
- [7] Jan Rothhardt, Steffen Hädrich, Yariv Shamir, Maxim Tschnernajew, Robert Klas *et al.*, *High-repetition-rate and high-photon-flux 70 eV high-harmonic source for coincidence ion imaging of gas-phase molecules*, ArchivX (2016)
- [8] Christoph Gohle, Thomas Udem, Maximilian Herrmann, Jens Rauschenberger, Ronald Holzwarth, Hans A. Schuessler, Ferenc Krausz & Theodor W. Hänsch, *A frequency comb in the extreme ultraviolet*, Nature **436**, 234 (2005)
- [9] R. Jason Jones, Kevin D. Moll, Michael J. Thorpe, and Jun Ye, *Phase-Coherent Frequency Combs in the Vacuum Ultraviolet via High-Harmonic Generation inside a Femtosecond Enhancement Cavity*, Phys. Rev. Lett. **94**, 193201 (2005)
- [10] I. Hartl, T. R. Schibli, A. Marcinkevicius, D. C. Yost, D. D. Hudson, M. E. Fermann, and Jun Ye, *Cavity-enhanced similariton Yb-fiber laser frequency comb: 3 10<sub>14</sub> W/cm<sup>2</sup> peak intensity at 136 MHz.*, Opt. Lett. **32**, (2007)
- [11] H. Carstens, M. Högner, T. Saule, S. Holzberger *et al.*, *High-harmonic generation at 250 MHz with photon energies exceeding 100 eV*, Optica **3**, 366 (2016)
- [12] GloPhotonics : <u>http://www.glophotonics.fr/index.php/product-2.html</u>
- [13] O. Guyétand, M. Gisselbrecht, A. Huetz, P. Agostini, R. Taïeb, V. Véniard, A. Maquet, L. Antonucci, O. Boyko, C. Valentin, and D. Douillet, *Multicolour above-threshold ionization of*

*helium: quantum interference effects in angular distributions.*, Journal of Physics B: Atomic Molecular and Optical Physics **38**, L357 (2005)

- [14] Guillaume Lambert, *Harmoniques cohérentes du Laser à Electrons Libres générées à partir d'harmoniques produites dans les gaz sur le prototype de l'accélérateur SCSS*, thèse de doctorat de l'Université Paris-Sud (2008)
- [15] G. Lambert, T. Hara, D. Garzella, T. Tanikawa, M. Labat, B. Carre, H. Kitamura, T. Shintake, M. Bougeard, S. Inoue, Y. Tanaka, P. Salieres, H. Merdji, O. Chubar, O. Gobert, K. Tahara, M-E. Couprie, *Injection of harmonics generated in gas in a free-electron laser providing intense and coherent extreme-ultraviolet light*, Nat. Phys. 4, 296 (2008)
- [16] A L Cavalieri, E Goulielmakis1, B Horvath1, W Helml, M Schultze, M Fieß, V Pervak, L Veisz V S Yakovlev, M Uiberacker, A Apolonski, F Krausz and R Kienberger, *Intense 1.5-cycle near infrared laser waveforms and their use for the generation of ultra-broadband soft-x-ray harmonic continua*, N. Jour. Phys. 9, 242 (2007)
- [17] I. J. Sola, E. Mével, L. Elouga, E. Constant, V. Strelkov, L. Poletto, P. Villoresi, E. Benedetti, J.-P. Caumes, S. Stagira, C. Vozzi, G. Sansone and M. Nisoli, *Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating*, Nat. Phys. 2, 319 (2006)
- [18] V V Strelkov, E Mével and E Constant, *Generation of isolated attosecond pulses by spatial shaping of a femtosecond laser beam*, New Jour. of Phys. **10**, 083040 (2008) et références in
- [19] O. Boyko, D. Reitze, S. Kazamias, T.A. Planchon, C. Valentin et Ph. Balcou, *Optimisation de la génération d'harmoniques d'ordre élevé à l'aide d'une optique adaptative et d'un modulateur acousto-optique*, J. Phys. IV France **127**, 99–103 (2005)
- [20] W. Boutu, T. Auguste, O. Boyko, I. Sola, Ph. Balcou, L. Binazon, O. Gobert, H. Merdji, C. Valentin, E. Constant, E. Mével, and B. Carré, *High-order-harmonic generation in gas with a flat-top laser beam*, Phys. Rev. A 84, 063406 (2011)
- [21] A. Dubrouil, Y. Mairesse, B. Fabre, D. Descamps, S. Petit, E. Mével, and E. Constant, *Controlling high harmonics generation by spatial shaping of high-energy femtosecond beam*, Opt. Lett. **36**, 2486 (2011)
- [22] E. Constant, A. Dubrouil, O. Hort, S. Petit, D. Descamps and E. Mével, *Spatial shaping of intense femtosecond beams for the generation of high-energy attosecond pulses*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 45, 074018 (2012)
- [23] Constance Valentin, Pierre Calvet, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Quentin Coulombier, Marc Douay, Karen Delplace, Arnaud Mussot, and Emmanuel Hugonnot, *Top-hat beam output of a single-mode microstructured optical fiber: Impact of core index depression*, Optics Express 21, 23250 (2013)
- [24] Pierre Calvet, Constance Valentin, Pierre Gouriou, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Quentin Coulombier, Marc Douay, Rémi Habert, Karen Delplace, Arnaud Mussot, and Emmanuel Hugonnot, *Top-hat beam output with 100 μJ temporally shaped narrow-bandwidth nanosecond pulses from a linearly polarized all-fiber system*, Opt. Lett. **39**, 4780 (2014)

# Annexe 1 : Propagation d'un champ intense dans un gaz rare

Cette annexe regroupe les codes de propagation d'un champ électrique laser et d'une impulsion harmonique dans un milieu gazeux, ionisé ou partiellement ionisé. La résolution des équations de Maxwell pour un milieu homogène et isotrope, avec terme source permet d'obtenir une bonne description des résultats expérimentaux.

### **A1.1 Introduction**

L'interaction d'un champ laser intense avec un gaz conduit à une ionisation totale ou partielle du milieu gazeux. Les électrons libérés contribuent à modifier la propagation du faisceau laser luimême.

Je décrirai dans un premier temps les différents régimes d'ionisation et l'effet des électrons sur la propagation du champ. Je présenterai ensuite l'équation de propagation du champ laser dans un milieu homogène, isotrope et ionisé. Les résultats du code de calcul seront ensuite comparés à des résultats expérimentaux pour des intensités de l'ordre de 10<sup>16</sup> W/cm<sup>2</sup>. Enfin, je présenterai le code de propagation d'un faisceau harmonique dans le milieu ionisé avec un terme source.

#### A1.2 L'ionisation et ses effets sur la propagation des impulsions laser

Pour des éclairements de l'ordre de  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> à  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, le champ électrique du laser est proche, voire supérieur au champ coulombien qui lie un électron de la couche supérieure au noyau. Par la suite, je ne considérerai que les atomes de gaz rares tels que l'Argon, Xénon, Krypton ou Néon. Ces atomes présentent une couche électronique pleine ; ainsi, le potentiel de première ionisation est élevé (de 12.6 eV pour le Xénon à 21 eV pour le Néon). Ils sont alors utilisés pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé car nous verrons dans l'annexe 2 que l'ordre de coupure dépend de ce potentiel d'ionisation *Ip*.

Je m'intéresserai ici à l'ionisation par effet tunnel et à l'ionisation par suppression de barrière. Le paramètre important pour l'ionisation par le champ laser est le paramètre de Keldysh [1] :

$$\gamma = \frac{I_p}{2U_p} \text{ avec } U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2}$$
(A1.1)

où  $I_p$  est le potentiel d'ionisation et  $U_p$  est le potentiel pondéromoteur correspondant à l'énergie cinétique de l'électron acquise dans le champ laser.

#### Ionisation tunnel

Lorsque l'éclairement du champ laser atteint 10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup> pour un champ laser à 800 nm, le paramètre de Keldysh est proche de 1. Dans ce cas, la barrière de potentiel est abaissée telle que la probabilité d'ionisation tunnel est non négligeable (cf Figure A1.1). L'électron est ionisé directement. Les taux d'ionisation sont maintenant bien connus et suivent la théorie développée par ADK [2]. Par la suite, j'utiliserai les taux ADK définis dans l'article [3] par :

$$W_{ADK} = \sqrt{\frac{3 n F}{\pi Z^3} \frac{F D^2}{8 \pi Z}} \left( -\frac{2 Z^3}{3 n F} \right)$$
(A1.2)

Où  $n^* = \frac{Z}{\sqrt{2I_p}}$  est le défaut quantique et  $D = \left(\frac{4 \ e \ Z^3}{F \ n^4}\right)^n$  avec Z = charge de l'ion produit et F le

champ électrique. Toutes les grandeurs sont en unité atomique : l'unité d'énergie est deux fois le potentiel d'ionisation de l'hydrogène (27.2 eV), l'unité de champ électrique est le champ coulombien dans l'atome de Bohr (=  $5.14 \ 10^{11} \ V/m$ ), l'u.a. de temps =  $2.41 \ 10^{-17} \ s$ .



*Figure A1.1 : Abaissement de la barrière de potentiel : le champ coulombien V(x) est modifié par le champ électrique du faisceau laser.* 

#### Ionisation par suppression de barrière (BSI)

Dans le cas où l'éclairement laser est tel que la barrière de potentiel est complètement supprimée, ce régime est appelé ionisation par suppression de barrière. L'éclairement limite pour chaque degré d'ionisation est donné par :

$$I_{BSI} = 3.810^9 \frac{I_p^4}{Z^2}$$
(A1.3)

où  $I_p$  est le potentiel d'ionisation pour chaque degré et Z, le nombre de charges de l'ion formé. La probabilité d'ionisation est proche de 1 : tous les atomes sont ionisés. Pour la première ionisation de l'atome d'Argon,  $I_{BSI} = 2.3 \ 10^{14} \text{ W/cm}^2$ .

Nous allons maintenant nous focaliser sur deux exemples basés sur l'ionisation tunnel : la génération d'harmonique d'ordre élevé et le laser X par ionisation par le champ ou OFI (Optical Field ionisation). Pour les deux cas, je décrirai les effets de l'ionisation sur la propagation et sur l'impulsion du champ laser.

#### A1.3 Propagation dans un milieu ionisé

#### A1.3.1 Hypothèses

Le milieu gazeux étant homogène et isotrope, nous pouvons considérer que les grandeurs sont représentées par un scalaire. Nous supposerons que le champ électrique du faisceau laser se propage suivant l'axe z sous la forme d'une onde plane. Il peut par ailleurs être polarisé linéairement pour la génération d'harmoniques et circulaire pour le laser X. Par ailleurs les enveloppes temporelle et spatiale sont gaussiennes. Lors de la propagation, le milieu s'ionise, il faut alors tenir compte du courant de charge (dû au déplacement des électrons dans le plasma). Le champ électrique induit aussi une polarisation linéaire. De plus, pour des intensités très importantes, il faut introduire les effets non linéaires tels que l'effet Kerr optique. Cet effet est introduit par le terme de polarisation non-linéaire. Nous rappelons que pour des gaz monoatomiques, contrairement à l'air, seul l'effet Kerr instantané est pris en compte.

Le champ électromagnétique correspond au champ électrique du laser et au champ magnétique associé. Ce champ électrique oscille à une fréquence centrale  $\omega$  correspondant à la longueur d'onde de 800 nm. On suppose que le profil temporel est gaussien avec une largeur à mi-hauteur de 35 fs, correspondant à 13 périodes optiques (T = 2.7 fs). Pour des éclairements de 10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup> à 10<sup>17</sup> W/cm<sup>2</sup>, l'amplitude du champ électrique varie de 2,7 10<sup>10</sup> V/m à 8,7 10<sup>11</sup> V/m. Par

comparaison, le champ électrique correspondant au champ coulombien pour l'atome d'Argon est de 4,2  $10^{10}$  V/m.

### A1.3.2 Equation de dispersion

L'indice de réfraction tient compte de la dispersion dans le milieu gazeux partiellement ionisé. La dispersion électronique est donnée par l'indice  $n_{elec}$  dans un plasma. Cet indice dépend de la densité d'électrons et de la fréquence du laser. La dispersion due aux atomes est proportionnelle au nombre d'atomes neutres lors du passage de l'impulsion et dépend de l'atome considéré. Enfin, nous devons aussi considérer la dispersion due à l'effet Kerr.

Cette équation s'écrit alors :  $k = n\omega/c$  où n est l'indice de réfraction total du milieu qui s'écrit :

$$n = n_0 + \Delta n = n_0 + n_{elec} + n_{at} \tag{A1.4}$$

où  $n_0$  est proche de 1,  $n_{elec}$  est la contribution électronique,  $n_{at}$  est la contribution des atomes et le dernier terme la contribution de l'effet Kerr optique, qui devient non négligeable pour des éclairements *I* supérieurs à  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.

## A1.3.3 Equation de propagation

L'équation de propagation du champ électrique laser est basée sur les équations de Maxwell :

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2}$$
(A1.5)

où  $P_{NL}$  représente la polarisation non-linéaire. Nous ne tenons pas compte de la variation temporelle de la densité électronique car elle varie très peu pendant le pas de temps considéré (inférieur à la fs). On ne tient pas non plus en compte la force pondéromotrice s'exerçant sur les électrons.

En supposant la propagation du champ suivant l'axe z, on peut écrire :

$$E(r, z, t) = u(r, z, t) \exp[-i(\omega_0 t - k_0 z)]$$
(A1.6)

D'où, on obtient pour u :

$$\left(\nabla_{perp}^{2} + \frac{\partial^{2}}{\partial z^{2}} + 2ik_{0}\frac{\partial}{\partial z} - k_{0}^{2}\right)u - \frac{n_{0}^{2}}{c^{2}}\left(\frac{\partial^{2}}{\partial t^{2}} - 2i\omega_{0}\frac{\partial}{\partial t} - \omega_{0}^{2}\right)u = termes \ NL$$
(A1.7)

Dans notre cas, l'approximation de l'enveloppe lentement variable est vérifiée car la durée de l'impulsion est grande par rapport à la période :

$$\left|\frac{\partial^2 u}{\partial t^2}\right| << \omega_0 \left|\frac{\partial u}{\partial t}\right| \tag{A1.8}$$

L'approximation paraxiale est aussi vérifiée car la focalisation du faisceau laser dans le milieu est douce :

$$\left| \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right| << k_0 \left| \frac{\partial u}{\partial z} \right| . \tag{A1.9}$$

Pour  $\Delta n \ll 1$ , on obtient :  $n^2 = (n_0 + \Delta n)^2 \approx n_0^2 + 2 n_0 \Delta n$ . En tenant compte de l'équation de dispersion, on obtient en négligeant les effets non-linéaires :

$$\left(\nabla_{perp}^{2} + 2ik_{0}\frac{\partial}{\partial z}\right)u + 2i\omega_{0}\frac{n_{0}^{2}}{c^{2}}\frac{\partial u}{\partial t} = 0$$
(A1.10)

Enfin nous supposerons que la dispersion de vitesse de groupe est faible, elle ne varie ni spatialement et ni temporellement. Il est alors possible d'introduire un temps effectif dans l'équation de propagation :  $S = t - \frac{z}{v_g}$ . En tenant compte des termes non linéaires, l'équation finale devient :

$$\left(\nabla_{perp}^{2} + 2i\frac{k_{0}n_{0}}{c}\frac{\partial}{\partial\varsigma}\right)u + 2\omega_{0}^{2}\frac{n_{0}\Delta n}{c^{2}}u = 0$$
(A1.11)  
où  $\Delta n = -\frac{n_{e}}{2n_{c}} + \frac{\delta n_{at}}{N_{1atm}} + \frac{1}{2}\varepsilon_{0}n_{2}|u|^{2}$ 

 $n_e$  = densité électronique,  $n_c$  = densité critique du plasma à 800nm,  $\delta n_{at}$  = dispersion atomique.

La résolution de cette équation n'est pas possible analytiquement. Il faut alors proposer une résolution numérique afin de calculer le champ électrique en tout point de l'espace et du temps.

# A1.3.4 Méthode numérique de résolution des équations

Le code développé au LOA et que j'ai amélioré est basé sur la méthode de différences finies implicite de type Crank-Nicholson [4].

Le champ de l'impulsion est découpé en tranches temporelles que nous propageons successivement dans un milieu discrétisé en espace. La méthode Crank-Nicholson permet de calculer le terme transverse de la diffraction. Chaque tranche temporelle se propage indépendamment dans l'espace. Cependant, elle prend en compte la réponse non-linéaire du milieu généré par les tranches temporelles précédentes et par elle-même.

Dans notre géométrie, la symétrie cylindrique est conservée tout au long de la propagation : la discrétisation dans l'espace est alors seulement à deux dimensions (suivant r et z).

L'évolution spatiale de l'enveloppe  $u(r,z,\zeta)$  du champ électrique se met sous la forme :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r} + 2i\frac{k_0 n_0}{c}\frac{\partial}{\partial \varsigma}\right)u$$
(A1.12)

La discrétisation du champ électrique sur un maillage spatial  $\Delta r$ ,  $\Delta z$  pour un temps fixé s'écrit :  $u_n^m = u(n \Delta r, m \Delta z, \varsigma)$ 

Les dérivées de l'équation deviennent :

$$\frac{\partial u}{\partial z} = \frac{1}{\Delta z} \left( u_n^{m+1} - u_n^m \right)$$

$$\frac{\partial u}{\partial r} = \frac{1}{4 \Delta r} \left( u_{n+1}^{m+1} - u_{n-1}^{m+1} + u_{n+1}^m - u_{n-1}^m \right)$$
(A1.13)

$$\frac{\partial^2 u}{\partial r^2} = \frac{1}{2 \Delta r^2} \left( u_{n+1}^{m+1} - 2 u_n^{m+1} + u_{n-1}^{m+1} + u_{n+1}^m - 2 u_n^m + u_{n-1}^m \right)$$

La divergence en r = 0 est remplacée par :

$$L_{r} u = \frac{1}{4\Delta r^{2}} (u_{2}^{m} - u_{1}^{m})$$
(A1.14)

Les contributions de non-linéarité  $\Delta n$  s'écrivent :

$$\Delta n u = \frac{1}{2} \left( \Delta n_n^{m+1} u_n^{m+1} + \Delta n_n^m u_n^m \right)$$
(A1.15)

Cette équation peut se mettre sous la forme A U = F avec U le vecteur de composantes  $u_0^{m+1}$ ,  $u_1^{m+1}$ , ...,  $u_{NR}^{m+1}$ 

Il faut tenir compte des variations spatiale et temporelle des espèces ioniques et du nombre d'électrons au fur et à mesure de la propagation car elles modifient le terme non-linéaire. A chaque pas de temps, on calcule alors ces grandeurs à travers la résolution du système d'équations suivant :

$$\frac{\partial N_0}{\partial t} = -W_0(t)N_0(t)$$

$$\frac{\partial N_1}{\partial t} = -W_1(t)N_1(t) + W_0(t)N_0(t)$$

$$\frac{\partial Ni}{\partial t} = -W_i(t)N_i(t) + W_{i-1}(t)N_{i-1}(t)$$
(A1.16)

Les taux  $W_i$  sont les taux ADK introduits précédemment au paragraphe A1.2.1. Le champ électrique utilisé pour le calcul des taux d'ionisation est une moyenne pondéré entre un champ connu et le champ estimé à la maille suivante (suivant z).

En sortie de code, nous avons accès à l'amplitude et à la phase du champ électrique en fonction du temps à la sortie de la cellule de génération et en champ lointain (en utilisant une transformée de Hankel). Ce code a permis de rendre compte des résultats d'une expérience réalisée au LOA par Fréderik Weihe *et al.* en 2000, et présentée dans le chapitre 2.

#### A1.4 Présentation du programme 3D pour la propagation des harmoniques d'ordre élevé

Dans cette partie, je présente le dernier code que j'ai commencé à développer au LOA. Le but de ce code est de simuler la propagation des faisceaux harmoniques dans le cas où on tient compte des aberrations spatiales des faisceaux IR et harmoniques. Des expériences de mesure de front d'onde des deux faisceaux ont été entreprises et partiellement analysées (elles sont présentées dans le chapitre 3). Dans la référence [7], nous avons démontré que le front d'onde des faisceaux harmoniques dépendait de celui du faisceau fondamental.

#### <u>A1.4.1 Introduction – position du problème : pourquoi 3D</u>

Le code développé par A. L'Huillier au CEA/SPAM (IRAMIS) dans les années 1990 pour la simulation de la propagation d'une harmonique dans le gaz générateur est basé sur le même principe que pour champ laser fondamental. La symétrie reste cylindrique et donc un programme 2D est suffisant.

Dans notre cas, le front d'onde du faisceau IR n'est plus plat et il faut tenir compte des aberrations spatiales du faisceau harmonique. Connaissant le front d'onde du laser IR, mesuré par le senseur Shack-Hartmann, nous pouvons calculer dans un premier temps le champ électrique du laser suivant les trois coordonnées de l'espace dans le milieu gazeux. Ensuite, nous pouvons calculer le dipôle induit par ce champ. Pour une harmonique donnée, par exemple H25, on peut approximer le dipôle par une fonction de l'intensité du laser : *I*<sup>5</sup>. La phase du dipôle est introduite dans le terme de phase spatiale du champ harmonique :  $\varphi = -\alpha I$ . Finalement, ce terme correspond à la polarisation induite, qui est alors le terme source pour le faisceau harmonique.

Dans le développement qui suit, nous supposerons que chaque faisceau harmonique se propage indépendamment l'un de l'autre : nous négligeons tout couplage entre harmoniques.

# A1.4.2 Equation de propagation

Nous écrivons de nouveau les équations de Maxwell avec un terme source. Pour une longueur d'onde de 32 nm, correspondant à l'harmonique 25 du laser fondamental, la densité critique du plasma est très fortement augmentée : nous pouvons alors négliger la dispersion électronique. La dispersion atomique à cette longueur d'onde est aussi négligeable, ainsi que l'effet Kerr optique. Par contre, il faut tenir compte de l'absorption de l'harmonique par le gaz. La transmission par une tranche de gaz d'épaisseur donnée à 32 nm est donnée sur le site du CXRO [5].

$$\nabla^{2} \vec{E} - \frac{1}{c^{2}} \frac{\partial^{2} \vec{E}}{\partial t^{2}} = i\mu_{0} \varepsilon_{0} \omega \frac{n_{e}}{n_{c}} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \mu_{0} \frac{\partial^{2} \vec{P}}{\partial t^{2}}$$
(A1.17)

Le premier terme de droite correspond au courant dû aux électrons lorsque le milieu est partiellement ionisé. Le deuxième terme de droite, appelé aussi terme source s'écrit alors comme la somme de la polarisation linéaire et la polarisation non-linéaire, qui est responsable de la génération d'harmoniques. Cette polarisation non-linéaire est directement reliée au dipôle atomique calculé au chapitre suivant. Ce terme dépend aussi de la densité d'atomes neutres dans la cellule de gaz.

$$P_{NL}(x,y,z,t) = N_0(x,y,z,t) d_{at}(x,y,z,t) \exp\left[i\left(k_q z - q\omega t\right)\right]$$
(A1.18)

La contribution linéaire est donnée par  $\chi_q E_q(x, y, z, t)$  où  $\chi_q$  est la susceptibilité d'ordre 1 pour l'harmonique q. Cette valeur peut être complexe, la valeur imaginaire correspondant à l'absorption. On écrit le champ électrique et la polarisation sous la forme :

$$E(x, y, z, t) = \frac{1}{2} \left[ u(x, y, z, t) \exp[i(k_q z - q\omega t)] + c.c. \right]$$

$$P(x, y, z, t) = \varepsilon_0 \frac{1}{2} \left[ v(x, y, z, t) \exp[i(k_{pol} z - \omega t)] + c.c. \right]$$
(A1.19)

Le champ harmonique oscille beaucoup plus vite que le champ fondamental, tout en gardant une durée d'impulsion importante par rapport à la période : l'approximation de l'enveloppe lentement variable est alors vérifiée. De plus, il a été démontré que la divergence des harmoniques est deux fois plus faible que celle du faisceau fondamental, l'approximation paraxiale est aussi vérifiée :

$$2i\left[k_{q}c^{2}\frac{\partial u}{\partial z}+\omega\frac{\partial u}{\partial t}\right]+c^{2}\frac{\partial^{2} u}{\partial t^{2}}-\omega^{2}\frac{n_{e}}{n_{c}}u=-\left[2i\omega\frac{\partial v}{\partial t}+\omega^{2}v\right]\exp\left[i\Delta kz\right]$$
(A1.20)

où  $\Delta k$  correspond au terme d'accord de phase entre le champ harmonique et la polarisation induite.

Ce terme s'écrit :

$$\Delta k = q \ \omega \ n(q\omega) - q \left(\frac{\partial \Phi}{\partial z} + n(\omega)\frac{\omega}{c}\right) - \alpha_i \frac{\partial I}{\partial z}$$
(A1.21)

où  $\Phi$  est la phase spatiale du faisceau fondamental. Nous reviendrons sur l'accord de phase dans l'annexe 2.

#### A1.4.3 Maillage et développements numériques

Le problème considéré n'a plus de symétrie cylindrique, il faut alors utiliser un maillage suivant x et y pour les dimensions transverses. Les aberrations du faisceau IR peuvent être implémentées par une formule analytique par un polynôme de Zernike dans un premier temps. Ensuite, il sera possible d'utiliser directement le fichier de phase spatiale, couplée à l'intensité mesurée par le senseur de front d'onde Shack-Hartmann (voir chapitre 3). La répartition spatiale du champ dans la cellule de génération sera alors calculée à partir de ces fichiers, et en tenant compte de la propagation.

L'équation finale après simplification est donne par :

-

$$2i\left[k_{q}c^{2}\frac{\partial u}{\partial z}+\omega\frac{\partial u}{\partial t}\left(1-\frac{1}{2}\frac{n_{e}}{n_{c}}\right)\right]+c^{2}\frac{\partial^{2} u}{\partial t^{2}}=\omega^{2}\frac{n_{e}}{n_{c}}u-\left[2i\omega\frac{\partial v}{\partial t}+\omega^{2}v\right]\exp[i\Delta k\,z]$$

#### (A1.22)

On considère que la dispersion de vitesse de groupe pour le champ IR et le champ harmonique est négligeable (dispersion due au gaz). On se place alors dans le repère lié à la vitesse de groupe : t -> t' = t - z/c, z ->z' = z. Ce qui permet de simplifier l'équation :

$$2i\left[\frac{c}{\omega}\frac{\partial u}{\partial z'}\right] + \frac{c^2}{\omega^2}\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} - \frac{n_e}{n_c}u = -\left[2i\frac{1}{\omega}\frac{\partial v}{\partial t'} + v\right]\exp[i\Delta k z']$$

(A1.23)

Ensuite, on normalise par  $\eta = \omega z'/c$  et  $\tau = \omega t'$ . L'équation devient alors :

$$2i\frac{\partial u}{\partial \eta} + \nabla_{perp}^{2}u - \frac{n_{e}}{n_{c}}u = -\left[v + 2i\frac{\partial v}{\partial \tau}\right] \exp\left[i\frac{\Delta k}{k_{q}}\eta\right]$$
(A1.24)
$$\nabla_{perp}^{2}u = \frac{c^{2}}{\omega^{2}}\left(\frac{\partial^{2}u}{\partial x^{2}} + \frac{\partial^{2}u}{\partial y^{2}}\right) = \left(\frac{\partial^{2}u}{\partial \tilde{x}^{2}} + \frac{\partial^{2}u}{\partial \tilde{y}^{2}}\right) \quad \text{et} \quad \Delta k.z' = \frac{c\Delta k}{\omega}\frac{z'\omega}{c} = \frac{\Delta k}{k_{q}}\eta$$

Finalement, en négligeant dans un premier temps  $\left| \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial \tau} \right| << |\mathbf{v}|$ , on obtient :

$$2i\frac{\partial u}{\partial \zeta} + \nabla_{perp}^{2} \mathbf{u} - \frac{n_{e}}{n_{c}} u = -v \exp\left[i\frac{\Delta k}{k_{q}}\eta\right]$$
(A1.25)

Nous suivons aussi le développement des dérivées par le schéma de Crank-Nicholson implicite avec  $u_{l,m,n} = u(l\Delta\eta, m\Delta\widetilde{x}, n\Delta\widetilde{y})$  où  $\Delta\widetilde{x} = d\widetilde{x}/\lambda_0$ ,  $\Delta\widetilde{x}$  et  $\Delta\widetilde{y}$  représentant alors le pas d'espace dans chacune des dimensions transverses x et y normalisées à  $\lambda_0$  ( $\lambda_0/2\pi$ ).

Les dérivées premières s'écrivent :

$$u_{x} = \frac{1}{4\Delta x} \left( u_{l+1,m+1,n} - u_{l+1,m-1,n} + u_{l,m+1,n} - u_{l,m-1,n} \right)$$
$$u_{y} = \frac{1}{4\Delta y} \left( u_{l+1,m,n+1} - u_{l+1,m,n-1} + u_{l,m,n+1} - u_{l,m,n-1} \right)$$
$$u_{z} = \frac{1}{\Delta z} \left( u_{l+1,m,n} - u_{l,m,n} \right)$$

Et les dérivées secondes :

$$u_{xx} = \frac{1}{2 \Delta x^{2}} \left( u_{l+1,m+1,n} - 2 u_{l+1,m,n} + u_{l+1,m-1,n} + u_{l,m+1,n} - 2 u_{l,m,n} + u_{l,m-1,n} \right)$$
$$u_{yy} = \frac{1}{2 \Delta y^{2}} \left( u_{l+1,m,n+1} - 2 u_{l+1,m,n} + u_{l+1,m,n-1} + u_{l,m,n+1} - 2 u_{l,m,n} + u_{l,m,n-1} \right)$$

Pour t donné, on obtient alors l'équation suivante :

$$\frac{1}{\Delta \zeta} \left( u_{l+1,m,n} - u_{l,m,n} \right) + \frac{i}{4} \left( \frac{n_{e,l+1}}{n_c} u_{l+1,m,n} + \frac{n_{e,l}}{n_c} u_{l,m,n} \right)$$
$$\frac{-i}{4} \left[ \frac{1}{\Delta x^2} \left( u_{l+1,m+1,n} - 2 u_{l+1,m,n} + u_{l+1,m-1,n} + u_{l,m+1,n} - 2 u_{l,m,n} + u_{l,m-1,n} \right) \right]$$
$$\dot{c} \frac{-i}{4} \left[ \frac{1}{\Delta y^2} \left( u_{l+1,m,n+1} - 2 u_{l+1,m,n} + u_{l+1,m,n-1} + u_{l,m,n+1} - 2 u_{l,m,n} + u_{l,m,n-1} \right) \right] = \frac{i}{2} v e^{i \frac{\Delta k}{k_q} \eta}$$

où  $n_{e,l}$  et  $n_{e,l+1}$  représentent la densité d'électrons libres aux pas  $\eta$  et  $\eta + d\eta$ .

#### A1.4.4 Résultats préliminaires

Dans un premier temps, il faut vérifier la validité du modèle. On résout l'équation sans second membre (pas de polarisation induite) et on vérifie que l'on obtient bien la propagation d'un faisceau gaussien.

Remarque : pour l'instant nous n'avons pas modélisé les pertes par absorption du faisceau harmonique.

## A1.5 Conclusion

Au terme de cette annexe, nous avons une vue d'ensemble de la propagation d'un champ électromagnétique dans un milieu ionisé. L'approche numérique est rendue nécessaire à cause des effets non linéaires qui interviennent dans la description du milieu. Néanmoins, les effets de dispersion de vitesse de groupe étant négligeables, il est possible de calculer le champ électrique pour une tranche temporelle (pas de couplage entre les différentes tranches). La déformation de l'impulsion est alors seulement due aux effets non linéaires et de l'ionisation. En ce qui concerne le front d'onde des harmoniques, nous verrons au chapitre 3 que malgré la traversée du milieu, l'effet d'accord de phase de la polarisation induite et le champ harmonique joue peu sur le front d'onde.

## Références

- [1] L.V. Keldysh, *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*, Sov. Phys. JETP **20** 1307-1314 (1965)
- [2] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. Krainov, *Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electric field*, Sov. Phys. JETP, **64**, 1191 (1986)
- [3] F. A. Ilkov, J. E. Decker and S. L. Chin, *Ionization of atoms in the tunnelling regime with experimental evidence using Hg atoms*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **25**, 4005-4020 (1992)
- [4] A. Börzsönyi, Z. Heiner, M. P. Kalashnikov, A. P. Kovács, and K. Osvay, Dispersion measurement of inert gases and gas mixtures at 800 nm, App. Opt. 47, 4856 (2008)
- [5] Thiab R Taha, Mark I Ablowitz, Analytical and numerical aspects of certain nonlinear evolution equations. II. Numerical, nonlinear Schrödinger equation, Journal of Computational Physics, 55, (2) 203-230 (1984)
- [5] site du CXRO : http://henke.lbl.gov/optical\_constants/
- [6] C. Valentin, F. Weihe, Sophie Kazamias, R. Haroutunian, S. Sebban, et al., Mesure de la dynamique couplée de propagation et d'ionisation d'une impulsion laser Application au laser X-OFI ou à la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Journal de Physique IV (Proceedings) 108, pp.109 112 (2003)
- [7] C. Valentin, J. Gautier, J.-Ph. Goddet, Ch. Hauri, T. Marchenko, E. Papalazarou, G. Rey, S. Sebban, *et al.*, *High order harmonic wave fronts generated with controlled astigmatic infrared laser.*, J. Opt. Soc. Am. **B25**, B161 (2008); J. Gautier, Ph. Zeitoun, A.-.S. Morlens, G. Rey, C. Valentin, E. Papalarazou, Ch. Hauri, J.-Ph. Goddet, S. Sebban, *et al.*, *Optimization of the wave front of high order harmonics.*, Eur. Phys. J. D **48**, 459–463 (2008)

# Annexe 2 : Théorie des harmoniques d'ordre élevé

# **A2.1 Introduction**

La théorie des harmoniques d'ordre élevé a été développée dans le milieu des années 1990. Les modèles utilisés permettent de décrire les résultats expérimentaux reportés dans plusieurs thèses et articles [1-3], comme le plateau (cf fig A2.2), la dépendance des signaux harmoniques en fonction de l'éclairement laser...

### A2.2 Rappels sur le modèle à 3 étapes et Lewenstein : chemins quantiques

Pour des intensités de l'ordre de 10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup>, le traitement perturbatif n'est plus valable. Afin de rendre compte des résultats expérimentaux, les théoriciens ont développé le modèle dit à trois étapes. Ce traitement est semi-classique, c'est à dire que la description du mouvement électronique dans le continuum est classique [4,5].

Lors de l'interaction du champ laser, le potentiel coulombien de l'atome est fortement perturbé (cf Figure A2.1). La barrière de potentiel s'abaisse pour le maximum du champ. Un électron de la couche externe a une probabilité non négligeable de passer dans le continuum par effet tunnel (étape 1) ; L'électron est ensuite accéléré par le champ laser. Lorsque le champ laser change de signe, l'électron est accéléré vers son noyau parent (étape 2). Finalement, l'électron se recombine avec son ion parent : il y a alors émission de flash de lumière (étape 3). Ce phénomène se répète toutes les <sup>1</sup>/<sub>2</sub> périodes du laser générateur, et pour des raisons de symétrie du potentiel atomique, on comprend bien que dans le domaine spectral, on retrouve les harmoniques impaires de la fréquence initiale.



Figure A2.1 Description du modèle à trois étapes (figure extraite de [?]).

Pour les ordres bas, le traitement perturbatif suffit. Pour les ordres plus élevés, on démontre que le signal est à peu près constant, correspondant à un plateau (cf Figure A2.2). Finalement, le signal chute au delà d'un certain ordre appelé ordre de coupure  $N_{cu}$ . Cet ordre de coupure est donné par la loi de coupure :  $N_{cu} \hbar \omega = I_p + 3.17 U_p$ . L'énergie pondéromotrice  $U_p$  correspond à l'énergie cinétique maximale acquise par l'électron dans le continuum d'énergie.

Comme cette énergie dépend de l'éclairement du champ laser d'après l'équation A1.1, l'ordre de coupure dépend aussi de l'éclairement comme on peut le voir sur la figure A2.2.



Figure A2.2 : Signaux typiques d'harmoniques d'ordre élevé (figure extraite de [1]).

Le modèle de Lewenstein [6] consiste à calculer le dipôle atomique induit par l'interaction avec le champ laser par un calcul quantique.. Il faut alors calculer l'élément de matrice du dipôle entre l'état fondamental et les états du continuum. Chaque terme de l'équation décrite dans l'article rend compte des différentes étapes du processus. Le premier terme correspond au champ électrique du laser; Le deuxième représente la recombinaison de l'électron avec son ion parent; le troisième l'ionisation. Le terme de phase correspondant à la phase accumulée par l'électron dans le continuum est très important pour les phénomènes observés lors de la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

Lewensetein *et al.* a démontré par un développement de point selle (saddle-point method) que **seules deux trajectoires électroniques** contribuent au signal de la même harmonique. Des interférences quantiques peuvent alors se produire. A l'éclairement de coupure, c'est-à-dire l'éclairement pour lequel l'ordre de l'harmonique considéré est  $N_{cu}$ , il n'existe qu'une seule trajectoire. Finalement, le modèle de Lewenstein permet d'écrire le dipôle sous la forme de deux contributions. La phase se met simplement sous la forme –  $\alpha I$  où I est l'éclairement du laser [7]. On montre que l'amplitude du dipôle est une puissance de l'éclairement. L'exposant p dépend de l'ordre harmonique et de l'atome considérés :

 $d \propto I^p \exp(-\alpha I)$ 

(A2.1)

L'approximation de champ fort utilisée dans ce calcul peut être contournée en développant un modèle plus complet, décrit dans la partie suivante.

# A2.3 Calcul du dipôle atomique par résolution TDSE 1D

La résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps (TDSE) permet de calculer l'évolution temporelle de la fonction d'onde de l'électron dans le continuum en tenant compte de l'interaction avec le champ laser mais aussi du potentiel coulombien. Vu que la polarisation du faisceau laser est linéaire, un traitement 1D est suffisant. Le code a été développé par Valérie Véniard (Laboratoire de Chimie Physique - Matière et Rayonnement). Je l'ai ensuite modifié pour l'adapter à notre configuration expérimentale.

L'Hamiltonien total tient compte du potentiel coulombien V(x), ainsi que de l'énergie cinétique (impulsion p) en présence du champ électrique du laser (potentiel vecteur A) :

$$H = V(x) + (p - A)^2$$
(A2.2)

L'évolution de la fonction d'onde est donnée par :  $\Phi(t + dt) = \Phi(t) \exp(-iH dt)$  que l'on peut écrire

$$\Phi(t+dt) = \Phi(t) \exp\left(-\frac{iV(x) dt}{2}\right) \exp\left(-i(p-A)^2 dt\right) \exp\left(-\frac{iV(x) dt}{2}\right)$$
(A2.3)

Pour chaque exponentielle, il est souhaitable de faire le calcul dans l'espace des positions pour les termes en x et dans l'espace des impulsions pour les termes en p. A chaque étape, nous devons calculer la Transformée de Fourier. Le champ rayonné par le dipôle est en fait proportionnel à l'accélération du dipôle. Par le théorème d'Ehrenfest, l'élément de matrice de l'accélération est donnée par :

$$\langle \Phi | a | \Phi \rangle = - \langle \Phi | \frac{\partial V}{\partial x} | \Phi \rangle$$
 (A2.4)

En calculant la Transformée de Fourier, nous retrouvons le spectre.

Dans ce formalisme, nous avons considéré que seul un électron était actif, c'est-à-dire que l'on néglige les corrélations avec les autres électrons de la même couche électronique. Ce modèle est valable si la probabilité de multiples recollisions des électrons avec le noyau parent est faible. Lorsque ces corrélations deviennent prépondérantes, il faudrait développer un code basé sur la théorie de fonctionnelle de la densité dépendante du temps (TD DFT), par exemple dans le cas d'harmoniques générées dans les agrégats [8].

Le champ électrique du laser est en fait représenté par le potentiel vecteur associé A : celui-ci peut être de forme trapézoïdal ou gaussien. On peut aussi lui donner une forme temporelle expérimentale mesurée à l'aide du SPIDER (cf chapitre 2). La durée des impulsions est de plusieurs cycles optiques (12  $T_c$  où  $T_c = 2.67$  fs). Il est possible aussi de contrôler la phase du champ électrique par rapport à la porteuse.

#### A2.4 Calcul de la phase du dipôle : désintrication des chemins quantiques

Comme nous l'avons vu dans la partie A2.2, le dipôle atomique peut se mettre sous la forme :  $d = |d| \exp(-\alpha I)$ 

Pour des intensités modérées, utilisées pour la génération d'harmoniques, le formalisme de Lewenstein montre qu'il existe deux chemins quantiques qui contribuent au signal. Le dipôle atomique se met sous la forme :

$$d = |d_1| \exp(-\alpha_1 I) + |d_2| \exp(-\alpha_2 I)$$
(A2.5)

Je vais montrer que pour une intensité plus importante, il apparaît un nouveau couple de chemins quantiques. Ces chemins correspondent aux trajectoires des électrons qui ont subi une recollision au voisinage de leur ion parent et ne se recombinent qu'un cycle plus tard par rapport aux trajectoires sans recollision. La phase du dipôle atomique est proportionnelle à l'intensité du champ laser. Les coefficients  $\alpha_i$  dépendent du temps de passage dans le continuum. Plus cette durée est longue, plus la phase est importante. Elle peut atteindre plusieurs dizaines de radians. Nous verrons dans la partie A2.5 quelles conséquences cette phase implique sur la propagation des harmoniques dans le milieu gazeux.

Comme décrit par Ph. Balcou *et al.* [9], si nous connaissons la phase totale du dipôle pour une harmonique donnée en fonction de l'intensité, nous pouvons calculer les coefficients  $\alpha_i$ . Pour obtenir une bonne résolution sur ces valeurs, nous appliquons la TF définie par :

$$d_{q,I_0}(\alpha) = \int d_q(I) \exp(i\alpha I)^2 G(I,I_0)$$
(A2.6)

avec une fenêtre glissante  $G(I, I_0)$ . La forme de cette fenêtre est généralement une sinusoïde. Sur la figure A2.3, nous montrons le résultat de ce calcul pour l'harmonique 45 générée dans le néon.



*Figure A2.3 : Amplitude du dipôle correspondant à l'harmonique 45 générée dans le Néon pour des éclairements I variables. On voit clairement un chemin quantique prédominant.* 

Pour une intensité de 6  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, les maxima donnent les valeurs des  $\alpha_i$ :  $\alpha_i = 3 \ 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$  $\alpha_2 = 26 \ 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$ Nous voyons que pour cet éclairement, il apparaît d'autres pics corresp

Nous voyons que pour cet éclairement, il apparaît d'autres pics correspondant à des phases accumulées plus importantes :

 $\alpha_3 = 39.5 \ 10^{-14} \ \mathrm{cm}^2 \ \mathrm{W}^{-1}$  $\alpha_4 = 54 \ 10^{-14} \ \mathrm{cm}^2 \ \mathrm{W}^{-1}$ 

Ces deux autres chemins quantiques sont peu probables à cause de la diffusion de la fonction d'onde électronique dans le continuum d'énergie.

Notons que ce type de diagramme diffère lors que l'on calcule le dipôle par le modèle de Lewenstein ou par le modèle TDSE.

Ce traitement permet de calculer les coefficients  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  en fonction de l'éclairement. Dans le cas où l'harmonique considérée est dans le plateau, ces coefficients varient peu. Par contre, pour des éclairements plus faibles proches de l'intensité de coupure, les courbes se rejoignent et finalement, à  $I_{cu}$ , il n'y a plus qu'un seul chemin et le coefficient correspondant est de l'ordre de 13 10<sup>-14</sup> cm<sup>2</sup> W<sup>-1</sup>.

Par la suite, nous prendrons les valeurs communément admises :  $\alpha_1 = 1.3 \ 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$  $\alpha_2 = 25 \ 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1}$  La phase du dipôle induit intervient dans l'accord de phase des harmoniques comme nous le verrons dans la partie suivante.

# A2.5 Aspects macroscopiques : Cartes d'accord de phase et absorption

#### A2.5.1 Cartes d'accord de phase

On peut considérer que les atomes du gaz se comportent comme de petits dipôles qui rayonnent un champ sous forme d'harmoniques. Afin de construire le champ en sortie de cellule, il faut que tous les rayonnements émis interfèrent constructivement. C'est à dire que, lors de la propagation du champ harmonique dans le milieu gazeux, le rayonnement ne subit pas trop de déphasage. La définition de la longueur de cohérence est basée sur ce concept : elle correspond à la longueur dans le milieu au bout de laquelle le rayonnement est déphasé de  $\pi$ , correspondant à une interférence destructive. On comprend bien alors que si la longueur de génération est supérieure à cette valeur, le signal harmonique ne sera pas optimum.

L'accord de phase, introduit dans la partie A1.5 pour la propagation du champ harmonique, correspond au déphasage entre le champ harmonique et la polarisation non-linéaire induite à la même fréquence. Cette polarisation non-linéaire est directement liée au dipôle induit par  $N_{at}$  *d* où  $N_{at}$  est le nombre d'atomes. Le désaccord de phase s'écrit :

$$\delta \vec{k} = \vec{k_q} - q \vec{k_0} - \vec{K_{at}}$$
(A2.7)

où  $k_q$  est le vecteur d'onde associé à l'harmonique d'ordre q,  $k_0$  est le vecteur d'onde associé à l'onde fondamentale et  $K_{at}$  le vecteur d'onde associé à la phase du dipôle atomique, correspondant aux dérivées partielles spatiales de la phase du dipôle  $-\alpha_i I$ .

En considérant la symétrie cylindrique, on peut écrire le désaccord de phase scalaire par :

$$\delta k = n_q(q\omega)q\frac{\omega}{c} - \sqrt{\delta k_r^2 + \delta k_z^2}$$
(A2.8)

où :

$$\delta k_{r} = q \frac{\partial \Phi}{\partial r} - \alpha_{i} \frac{\partial I}{\partial r}$$
  
$$\delta k_{z} = q \left( \frac{\partial \Phi}{\partial z} + n(\omega) \frac{\omega}{c} \right) - \alpha_{i} \frac{\partial I}{\partial z}$$
(A2.9)

avec  $\Phi$  est la phase du champ laser fondamental et I, l'intensité.

Les indices de réfraction à la pulsation fondamentale et à la pulsation de l'harmonique q sont donnés par :

$$n(\omega) = 1 - \frac{n_e}{2 n_c} + \delta n_{at}(\omega) + n_2(\omega) I$$

$$n(q\omega) = 1 - \frac{n_e}{2 q^2 n_c} + \delta n_{at}(q\omega)$$
(A2.10)

On néglige l'effet Kerr à la pulsation de l'harmonique. La dispersion atomique à 800 nm est donnée par une équation de type Sellmeier :  $\delta n_{at} = 2.51 \ 10^{-4}$  pour l'argon pour une pression de 1 bar [10].

De même on a  $n_2 = (19,4)$  1.4  $10^{-19}$  cm<sup>2</sup>W<sup>-1</sup> pour l'argon à la même pression et à 800nm [11]. On considère que ces termes sont proportionnels à la pression dans l'approximation de valeurs faibles par rapport à 1. Notons que  $n_2$  est très faible et est négligé dans les simulations. La valeur mesurée dans [11] semble très grande par rapport à la valeur généralement admise.

Les cartes d'accord de phase 2D peuvent être obtenues à partir de l'amplitude et la phase du champ fondamental qui se propage dans la cellule (cf Annexe 1). On représente alors la longueur de cohérence donnée par :  $L_c = \frac{\pi}{|\Delta k|}$ 



Figure A2.5 Carte d'accord de phase : on représente plutôt la cartographie 2D de longueur de cohérence en mm (pour le chemin 1) dans la cellule de génération (remplie de 15 torr d'argon).

On voit sur la figure A2.5 que le signal harmonique peut se construire suivant l'axe de propagation tout au long de la cellule.

L'accord de phase peut aussi être calculé en fonction du temps en ne considérant que l'axe de propagation z. Ces calculs sont utiles pour comprendre les effets de l'accord de phase transitoire sur l'optimisation du champ harmonique (cf chapitre 3).

# A2.5.2 Absorption dans le domaine XUV

L'énergie des photons harmoniques pouvant dépasser le seuil d'ionisation des atomes du gaz, la probabilité de photo-ionisation par absorption d'un photon harmonique est non négligeable. Cette probabilité dépend bien sûr du gaz considéré et de l'énergie du photon. Sur le site du CXRO [11], on trouve les valeurs de la transmission d'un rayonnement à une énergie de photon, une pression de gaz données pour une longueur de gaz traversée. On en déduit la longueur d'absorption, définie comme la longueur au bout de laquelle l'amplitude du rayonnement est divisée par 1/e :

$$L_{abs} = \frac{1}{\rho_{at} \sigma} \quad \text{ou} \ L_{abs} = \frac{-L}{\ln T}$$
(A2.11)

où  $\rho_{at}$  est la densité atomique,  $\sigma$  la section efficace d'ionisation, L = longueur du milieu traversé et T, la transmission. Par exemple, pour l'argon, les harmoniques basses sont fortement absorbées car la longueur est faible (cf Figure A2.6).


*Figure A2.6* : Longueur d'absorption pour 30 torr d'argon en fonction de l'énergie des photons. L'harmonique 25 correspond à 38 eV.

C'est pour cette raison que l'on observe un spectre centré autour de l'harmonique 23 dans les conditions optimales de génération (cf Figure A2.7).



*Figure A2.7 : Spectre typique généré dans l'argon. L'harmonique 23 correspond à 36.5 eV [figure extraite de la thèse de S. Kazamias-Moucan].* 

En considérant tous ces développements théoriques, il est possible de reconstruire le spectre en sortie de cellule (cf Figure A2.8).



Figure A2.8 : Spectre simulé pour les harmoniques générées dans 15 torr d'argon pour un éclairement de 1.5  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, une cellule de longueur 8 mm et un plan focal à 5 mm de l'entrée de la cellule.

Remarque : pour les ordres 19 et 21, nous voyons une double structure dans le spectre qui correspond à l'effet macroscopique des deux chemins quantiques. Ce comportement est parfois visible pour les spectres expérimentaux [13-15].

#### A2.6 Conclusion

Dans cette annexe, j'ai développé tous les outils permettant de comprendre les résultats d'expérience d'optimisation qui seront développées dans le chapitre 3.

#### Références

- [1] Ph. Balcou, *Etude de la génération d'harmoniques d'ordre élevé en champ intense*, Thèse de doctorat de l'Université Paris VI (1993)
- [2] P. Salières, *Propriétés de cohérence de la génération d'harmonique en champ laser intense*, Thèse de l'Université Paris VI (1995)
- [3] J.L. Krauze, K.J. Schafer, and K.C. Kulander, *High-order Harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime*, Phys. Rev. Lett. **68**, 3535 (1992); Anne L'Huillier and Ph. Balcou, *High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser*, Phys. Rev. Lett. **70**, 774 (1993)
- [4] K. C. Kulander, K. J. Schafer and J. L. Krause, *Dynamics of short-pulse excitation ionization and harmonic conversion*, Proceedings of the Super Intense Laser-Atom Physics III Workshop, vol. **316** of NATO Advance Study Institute, series B/Physics, ed. B Piraux (Plenum Presse, New-York, 1993)
- [5] P. B. Corkum, *Plasma perspective on strong field multiphoton ionization*, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993)
- [6] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, Anne L'Huillier, and P. B. Corkum, *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*, Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994)
- [7] M. Lewenstein, P. Salières, and A. L'Huillier, *Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation*, Phys. Rev. A **52**, 4747 (1995)
- [8] V. Véniard, R. Taïeb, and A. Maquet, *Simple model for harmonic generation from atomic clusters*, Phys. Rev. A **60**, 3952 (1999)
- [9] Ph. Balcou, A. S Dederichs, M. B Gaarde and A. L'Huillier, *Quantum-path analysis and phase matching of high-order harmonic generation and high-order frequency mixing processes in strong laser fields, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **32** 2973 (1999)
- [10] A. Börzsönyi, Z. Heiner, M. P. Kalashnikov, A. P. Kovács, and K. Osvay, *Dispersion measurement of inert gases and gas mixtures at 800 nm*, App. Opt. **47**, 4856 (2008)
- [11] Á. Börzsönyi, Z. Heiner, A.P. Kovács, M. P. Kalashnikov and K. Osvay, *Measurement of pressure dependent nonlinear refractive index of inert gases*, Opt. Express **18**, 25847 (2010)
- [12] site du CXRO : Cxro : http://henke.lbl.gov/optical\_constants/
- [13] A. Zaïr A *et al.*, *Quantum path interferences in high-order harmonic generation*, Phys. Rev. Lett. **100**, 143902 (2008)
- [14] C.M. Heyl, J. Güdde, U. Höfer and A. L'Huillier, *Spectrally resolved maker fringes in highorder harmonic generation*, Phys. Rev. Lett. **107** 033903 (2011)
- [15] W.Holgado, B.Alonso, J.SanRoman, and I.J.Sola, *Temporal and spectral structure of the infrared pulse during the high order harmonic generation*, Opt. Express **22**, 10191 (2014)

## Annexe 3 : couplage d'une fibre Mode Plat avec la fibre NKT DC-200/40-PZ-Yb

#### **A3.1 Introduction**

La fibre amplificatrice utilisée par le CEA/CESTA après la mise en forme temporelle et spectrale est la fibre NKT DC-200/40-PZ-*Yb* (cf chapitre 5). Celle-ci permet d'amplifier le signal laser à 1053 nm à des énergies de l'ordre de la centaine de  $\mu$ J. Cette fibre est composée d'un cœur en silice dopée Ytterbium qui permet d'amplifier le signal laser dans la gamme de longueur d'onde autour de 1030 nm lorsque l'on pompe à 976 nm. Elle guide grâce à une gaine microstructurée air/silice pour le signal et avec une gaine air (air-cladding) pour le laser de pompe. Elle a la particularité de conserver la polarisation à l'aide de deux plots de silice dopée Bore placés de part et d'autre du cœur. Le diamètre du mode fondamental (MFD) est de 30  $\mu$ m pour un diamètre de cœur de 40  $\mu$ m. Afin de modifier le mode de sortie qui possède une forme quasi-gaussienne, on souhaite souder à cette fibre, une fibre mode plat à maintien de polarisation qui possède aussi un MFD d'environ 30  $\mu$ m.

Avec la fibre Mode Plat PM fabriquée à l'IRCICA, l'équipe d'E. Hugonnot a réussi à obtenir **170 µJ** [1]. Cette fibre possède un MFD supérieur à 18 µm, ce qui limite l'énergie amplifiée en sortie. Il faut alors designer une fibre avec un MFD plus grand pour espérer augmenter l'énergie en sortie de la fibre Mode Plat.

Dans cette annexe, je cherche à connaitre quel serait le meilleur design de la fibre Mode Plat pour coupler au mieux l'énergie sortant de la fibre NKT.

### A3.2 Définitions

Je souhaite calculer le taux de couplage entre le mode plat et le mode quasi-gaussien de la fibre NKT DC-200/40-PZ-*Yb*. On approxime le mode plat par une SuperGaussienne d'ordre *N* et le mode sortant de la NKT par une Gaussienne. On définit la Gaussienne par :

$$E_G(r) = N_G \left[ -\left(\frac{r}{\omega_G}\right)^2 \right]$$
(A3.1)

Où  $\omega_G = 2 \sigma$  avec  $\sigma$  l'écart-type de la Gaussienne et  $N_G$ , le facteur de normalisation =  $1/\sqrt{\pi} \omega_G$ . Et la supergaussienne par :

$$E_{SG}(r) = N_{SG} \left[ - \left( \frac{r}{\omega_{SG}} \right)^N \right]$$
(A3.2)

 $N_{SG} = 1/\sqrt{\pi \frac{2}{N} \Gamma\left(\frac{2}{N}\right)_{SG}} \quad .$ 

Avec le facteur de normalisation donné par :

On rappelle que la fonction  $\Gamma(z)$  pour Re(z) > 0 est définie par :  $\Gamma(z) = \int_{0}^{+\infty} t^{z-1} e^{-t} dt$ 

La Gaussienne peut être définie comme une SuperGaussienne d'ordre 2. Pour calculer le MFD, on calcule d'abord l'aire effective définie par :

$$A_{eff} = \frac{\left[\iint |E(r,\theta)|^2 r dr d\theta\right]^2}{\iint |E(r,\theta)|^4 r dr d\theta}$$
(A3.3)

113

Pour une Supergaussienne d'ordre N, on trouve :

$$A_{eff} = \pi \omega_{SG}^2 \frac{2}{N} \left(\frac{2}{N}\right)$$
(A3.4)

Et le MFD est défini par :  $MFD = 2\sqrt{\frac{A_{eff}}{\pi}}$ . Dans le cas général, le MFD est donné par :

$$MFD = 2\omega \sqrt{\frac{2}{N}\Gamma\left(\frac{2}{N}\right)}$$
(A3.5)

Pour la gaussienne, N= 2, on retrouve le MFD = 2  $\omega_G$ . Pour la SuperGaussienne quand N tend vers l'infini, on a aussi MFD = 2  $\omega_{SG}$ .

#### A3.3 Taux de couplage

Je me suis basée sur le chapitre 3.4 de la thèse de Pierre Calvet (cf équation 3.24) pour calculer les couplages entre un mode plat, représenté par une supergaussiennne d'ordre N et une gaussienne. On calcule le taux de couplage donné par la formule :

$$\tau = \frac{\left| \iint E_{G}(r,\theta) E_{SG}(r,\theta) r dr d\theta \right|^{2}}{\iint |E_{G}(r,\theta)|^{2} r dr d\theta \iint |E_{SG}(r,\theta)|^{2} r dr d\theta}$$
(A3.6)

Ce taux de couplage ne peut pas être calculé analytiquement. On utilise un programme Matlab. Dans un premier temps, on calcule ce taux de couplage en variant le MFD de la gaussienne pour un MFD SuperGaussienne fixe (cf Figure A3.1).



Figure A3.1 : Taux de couplage pour un MFD de la SuperGaussienne = 30  $\mu$ m pour un MFD ( $\mu$ m) de la Gaussienne variable. Le trait rouge correspond à 80% de couplage. Le couplage maximum est légèrement supérieur à 80%.

Pour le taux de couplage maximum, le MFD de la Gaussienne = 26.8 µm au lieu de 30 µm. Pour avoir un couplage maximum entre la fibre Mode Plat et la DC-200/40-PZ-*Yb*, il faudrait alors un MFD de la fibre Mode plat = 33.2 µm. Les deux profils d'intensité normalisés correspondants sont représentés sur la Figure A3.2 (a).



*Figure A3.2* : Profils d'intensité de la SuperGaussienne d'ordre N = 1000 et la Gaussienne pour (a) MFD = 26.8 µm (maximum de couplage) et pour (b) le même MFD = 30 µm.

Lorsque les MFD sont égaux, les facteurs de normalisation sont égaux et le taux de couplage = 80% (cf Figure A3.2 (b)).

#### A3.4 Couplage avec le mode fondamental simulé par COMSOL Multiphysics

Je refais le même calcul pour un profil d'intensité 2D obtenu par la simulation avec les paramètres géométriques suivant :

pas du réseau  $\Lambda$  = 11.6 µm (Diamètre du cœur avec l'anneau = 30 µm), rapport diamètre des trous d'air par rapport au pas d/ $\Lambda$  = 0.12 contraste d'indice de l'anneau  $\delta n_{ring}$  = 4 10<sup>-3</sup>, épaisseur  $\Delta R$  = 375 nm

Pour ces paramètres, le profil transverse du mode fondamental est aplati. La simulation donne une aire effective =  $1127.1 \ \mu m^2$ , correspondant à un MFD =  $37.9 \ \mu m$  si on utilise la définition du MFD en fonction de l'aire effective.

On considère ensuite la Gaussienne de largeur à  $1/e = 2 \omega_G$  et on calcule le taux de couplage (ici on intègre suivant x et y) pour 2  $\omega_G$  variable (cf figure A3.3).



Figure A3.3 : Taux de couplage pour le mode plat obtenu par la simulation COMSOL pour un MFD ( $\mu$ m) de la Gaussienne variable. Le trait rouge correspond à 80% de couplage et le trait rose, à 90% de couplage. Le couplage max = 94.6 %.

Pour le taux de couplage maximum, le MFD de la Gaussienne =  $36.1 \mu m$ , ce qui est trop important. On refait alors une simulation avec un pas plus faible pour retrouver un MFD plus faible. On prend alors les paramètres suivants :

Λ = 10.2 μm (Diamètre du cœur avec l'anneau = 26.5 μm) d/Λ = 0.2 $\delta n_{ring} = 4 \ 10^{-3}$ , ΔR = 475 nm

La simulation COMSOL donne une aire effective = 814.5  $\mu$ m<sup>2</sup>, correspondant à un MFD = 32.2  $\mu$ m si on utilise la définition du MFD.



Figure A3.4 : Taux de couplage pour le mode plat obtenu par la simulation COMSOL pour un MFD ( $\mu$ m) de la Gaussienne variable. Le trait rouge correspond à 80% de couplage et le trait rose, à 90% de couplage. Le couplage max = 93.2 %.

Pour le taux de couplage maximum, le MFD de la Gaussienne =  $30.2 \mu m$ , proche du MFD de la fibre DC-200/40-PZ-Yb. Le taux de couplage est égal ou supérieur à 90% pour un MFD de +/-  $5 \mu m$  autour de cette valeur. On représente les intensités 2D (non normalisés) sur la figure A3.5.



Figure A3.5 : Profils 2D des intensités la Gaussienne de MFD = 30.2  $\mu$ m (a) et pour le mode plat simulé de MFD = 30  $\mu$ m (b).

En normalisant les champs, on représente les profils 1D sur la Figure A3.6.



Figure A3.6 : Profils 1D des champs pour le mode plat simulé(en bleu) et la Gaussienne (en rouge) de  $MFD = 30.2 \mu m$  suivant x et suivant y.

## A3.5 Conclusion

Pour le couplage avec la dernière fibre amplificatrice du laser pilote, il suffit de designer une fibre Mode Plat PM avec un diamètre de cœur de l'ordre de 26  $\mu$ m (pas  $\Lambda$  de 10.2  $\mu$ m).

## Références

[1] Florent Scol, Pierre Gouriou, Arnaud Perrin, Jean-François Gleyze, Constance Valentin, Géraud Bouwmans, and Emmanuel Hugonnot, All-fiber MOPA prototype with 100 μJ temporallyshaped nanosecond-pulse and spatially coherent top-hat beam output for large-scale laser facility front end, in Conference on Lasers and Electro-Optics, OSA Technical Digest (2016) (Optical Society of America, 2016), paper SM2M.6.

# Annexe 4 : Curriculum Vitae détaillé

# Etat Civil

NOM et Prénom : VALENTIN Constance Née le : 13/10/1967 Nationalité : Française Situation familiale : vie maritale, 2 enfants Adresse : 37 rue Louise Michel, 59170 CROIX Tel : +33 (0)9 81 17 06 40

# Situation actuelle

Fonction : Chargée de Recherche 1, 9<sup>è</sup> échelon Section CNRS : 8<sup>è</sup>, Micro- et nanotechnologies, micro- et nanosystèmes, photonique, électronique, électromagnétisme, énergie électrique Unité d'affectation : Laboratoire de Physique des Lasers, Atomes et Molécules UMR CNRS 8523, Université Lille 1 Equipe : Photonique Adresse : Institut IRCICA, Parc Scientifique de la Haute Borne, 50 avenue Halley, BP 70478, 59658 Villeneuve d'Ascq Téléphone : +33 (0)3 62 53 16 45 E-mail : constance.valentin@univ-lille1.fr

# Cursus

1990 - 1994	Doctorat de Physique - Université Paris-Sud (Orsay) sous la direction de Pierre Pillet
	Manipulations non-cohérente et cohérente d'un jet atomique de césium par laser :
	mélasses optiques dans un champ magnétique et transfert adiabatique de population.
	Thèse soutenue le 12 janvier 1994, Mention très honorable avec félicitations du jury
1989 - 1990	DEA Lasers et Matière, Université Paris-Jussieu (Paris)
	Mention Assez Bien
1988 - 1989	Maîtrise de Physique, Université Paris-Diderot (Paris)
	Mention Bien
1987 - 1988	Licence de Physique, Université Paris-Diderot (Paris)
	Mention Assez Bien
1985 - 1987	DEUG A, SSM, Université Paris-Diderot (Paris)
	Mention Assez Bien

## **Expériences professionnelles**

2010 -	Laboratoire de Physique des Lasers, Atomes et Molécules	(Université de Lille)
--------	---	-----------------------

- 2001 2010 Laboratoire d'Optique Appliquée (ENSTA ParisTech, Palaiseau)
- 1995 2000 Laboratoire de l'Horloge Atomique (Université Paris-Sud, Orsay) et Laboratoire des SYstèmes de Référence Temps-Espace (Observatoire de Paris)
- 1994 1995 ATER, Institut National de Métrologie (CNAM, Paris)
- 1993 1994 stages pré et post-doc à l'Ecole Polytechnique de Montréal (Canada)
- 1990 1994 Doctorat de Physique Université Paris-Sud (Orsay) sous la direction de Pierre Pillet, réalisé dans le groupe Atomes Froids du Laboratoire Aimé Cotton (Université Paris-Sud - Orsay)
- 1991 1993 Moniteur de l'enseignement supérieur, CIES Région Ile de France

Mars - Juin 1990 Stage de DEA, ONERA Châtillon, Détection du radical OH dans une flamme par DRASC résonnante en bande large. (B. Attal-Trétout)
Juin - Août 1989 Stage de Maîtrise, CERT-ONERA (Toulouse)
Juin - Juillet 1988 Stage de Licence, CEA Saclay Orme des Merisiers

#### **Encadrement de doctorants (officiel)**

- 2015 co-encadrement scientifique de Patrick Bulot avec Marc Douay et Guillaume Laffont (LCAE, CEA Sacaly)
- 2013 co-encadrement scientifique de Pierre Gouriou avec Géraud Bouwmans et Emmanuel Hugonnot (CEA/CESTA, Bordeaux)

#### **Encadrement de doctorants (non officiel)**

- 2005 2008 co-encadrement scientifique (50 %) de la thèse d'Evaggelos Papalazarou avec Philippe Balcou Applications of the high-order harmonic radiation to solids: Time-resolved ultrafast coherent lattice dynamics and surface damage Soutenue le 16 octobre 2008
- 2003 2006 co-encadrement scientifique (50 %) de la thèse d'Olga Boyko avec Philippe Balcou Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordre élevé par contrôle actif du laser générateur Soutenue en octobre 2006
- 1998 2000 co-encadrement scientifique (20%) de la thèse de Jérôme Fils avec Noël Dimarcq et Arnaud Landragin *Réalisation et caractérisation d'un gyromètre à ondes de de Broglie* Soutenue en 2002
- 1996 2000 co-encadrement scientifique (50%) de la thèse d'Emmanuel Guillot avec Michel Desaintfuscien et Noël Dimarcq *Nouveau concept d'horloge atomique : Horace, horloge à refroidissement d'atomes en cellule* Soutenue le 22 mars 2000.
- 1996 1999 co-encadrement scientifique (50 %) de la thèse de Christelle Guillemot avec Noël Dimarcq Pas de soutenance

#### **Encadrement de stagiaires Master 2**

- 2016 encadrement scientifique (100%) de Marlène Paris, stagiaire de master de recherche
  2 "PMOA" de l'Université de Lille 1 *Fibre microstructurée de large cœur et à mode plat.*
- 2013 encadrement scientifique (100%) de Pierre Gouriou, stagiaire de master de recherche
   2 "PMOA" de l'Université de Lille 1
   *Fibres microstructurées pour mise en forme spatiale.*

2008 encadrement scientifique (100%) d'Aifan Alata, stagiaire de Master 2 « Ondes et Matière » à l'Institut d'Optique Graduate School

Génération d'harmoniques d'ordre élevé à deux couleurs.

2007 encadrement scientifique (100%) de Julien Higuet, stagiaire de Master 2 « Ondes et Matière » à l'Institut d'Optique Graduate School

Caractérisation temporelle attoseconde d'une source XUV basée sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

## Enseignements

2016	Travaux Pratiques d'Electromagnétisme (1 <sup>è</sup> année) à l'IUT A de Lille
2013 – 2016	Travaux Dirigés et Travaux Pratiques de Photonique (TTI3) à Telecom Lille
2006 – 2008	Travaux Dirigés d'Electronique Quantique à l'Ecole Nationale Supérieure des Techniques Avancées
1994 – 1995	Travaux Dirigés et Travaux Pratiques de Métrologie au Conservatoire National des Arts et Métiers
1992 – 1994	Travaux Dirigés et Travaux Pratiques en Electromagnétisme et Optique à l'Université Paris-Sud
1991 – 1992	Travaux Pratiques en Physique Atomique à l'Université Paris-Sud

## Rayonnement, vulgarisation et diffusion des connaissances

- co-organisation de l'Ecole d'Ete d'XTRA du 25 au 29 mai 2005 à Porquerolles (Ph. Balcou, B. Carré, E. Constant et C. Valentin) : 90 participants

- co-organisation des Journées du Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA) du 16 au 19 mars 2005 à Pralognan la Vanoise (F. Burgy et C. Valentin)

- co-organisation de Ecole d'Eté 2003 « Ultrafast X-ray Science » du 13 au 19 juillet 2003 au centre scientifique de Cargèse (D. Boschetto, A. Rousse, C. Valentin).

- encadrement de stagiaires de collège et de lycée (2014 – 2016)

- participation à Physique Itinérante (2015 – 2016)

- participation et organisation au Formation Plan Académique de Formation avec Nano-école de 2012 à 2015 (P. Lefebvre, C. Spriet et C. Valentin) : 24 participants/an

- participation à la Fête de la science en 2014 (D. Hennequin) et 2016 (P. Lebfevre) : visites scolaires et Grand Public

- participation au Salon des métiers en 2011 (D. Hennequin) et organisation en 2012 (P. Lefebvre et C. Valentin) : 85 000 visiteurs sur 3 jours

- organisation de la Fête de la science au LOA en 2008 et 2009 : 250 visiteurs pour une après-midi et scolaires (2 classes sur 1 journée)

## Activités administratives et responsabilités collectives

- Membre du vivier du groupe de section 30 à l'Université Lille 1 depuis 2015

- Membre du comité de sélection pour les recrutements de postes de Maître de Conférences (0926) en 2016

- Personne Compétente en Radioprotection (2003 - 2010)

De décembre 2003 à juin 2010, j'ai été la Personne Compétente en Radioprotection (PCR) pour le Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA). Cette responsabilité m'a permis de m'impliquer dans le laboratoire au niveau de la sécurité du personnel.

Au LOA, l'interaction d'un laser ultra-intense et ultracourt avec un milieu gazeux ou une cible solide induit toutes sortes de rayonnements secondaires : sources de rayons X, faisceau d'électrons très énergétiques (> 200 MeV) et de protons (> 10 MeV). Ces rayonnements sont par définition ionisants et sont donc dangereux pour la santé. De plus, par interaction des électrons avec la matière, il y a production de rayons gamma très énergétiques et par interaction des protons avec la matière, il y a production de neutrons. Il est important de bien comprendre que la production de faisceaux de particules très énergétiques dans des bouffées ultracourtes (quelques dizaines de fs) est un domaine non couvert par la radioprotection traditionnelle, que ça soit dans la formation des Personnes Compétentes en Radioprotection ou dans les détecteurs mis à notre disposition.

En temps que PCR, je me suis impliquée dans la dosimétrie passive et opérationnelle de plusieurs salles d'expérience. De décembre 2008 à juillet 2009, j'ai assuré le suivi des prestations fournies par le SENAC (CEA) pour améliorer la radioprotection pour les applications du laser 30 TW (10<sup>12</sup> W) du laboratoire.

Dans le cadre de cette responsabilité, j'ai participé à trois workshops réunissant les personnes responsables de la Radioprotection dans différents laboratoires européens. Ces laboratoires font partie de deux réseaux européens pour les lasers de puissance (LaserNet et LaserLab). A chaque manifestation, j'ai présenté oralement les résultats de radioprotection du laboratoire. J'ai aussi présenté les résultats de mesures de doses et de résultats de simulation avec le code GEANT à la conférence IRPA2006 (2nd European IRPA Congress on Radiation Protection, 15-19 mai 2006, Paris). Je suis aussi intervenue sur un CD sécurité du CNRS pour ce type d'installation (http://videotheque.cnrs.fr/doc=1767?langue=EN). J'ai réalisé des formations pour le personnel du Laboratoire et j'ai participé à l'élaboration du questionnaire annuel de sécurité auquel doit répondre le personnel pour pouvoir travailler dans les salles d'expérience. J'ai aussi été en contact avec le médecin du personnel de l'Ecole Polytechnique afin que le personnel soit médicalement suivi pour la dosimétrie.

#### Projets de recherche, contrats et collaborations

sigles des laboratoires et organismes ou instituts : CEA : Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives LCAE : Laboratoire Central d'Analyses et d'Essais CESTA : Centre d'études scientifiques et techniques d'Aquitaine IRAMIS : Institut Rayonnement-Matière de Saclay DAM : Direction des Application Militaires CELIA : Centre Lasers Intenses et Applications PSI : Paul Scherrer Institut LCPMR : Laboratoire de Chimie Physique-Matière et Rayonnement DESY : Deutsches Elektronen-Synchrotron LLNL : Lawrence Livermore National Laboratory LPS : Laboratoire de Physique des Solides LIXAM : Laboratoire d'Interaction du rayonnement X avec la Matière LPGP : Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas LULI : Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses LAC : Laboratoire Aimé Cotton LPTF : Laboratoire Primaire du Temps et des Fréquences LPL : Laboratoire de Physique des Lasers LGCR : Laboratoire de Gravitation et Cosmologie Relativistes LKB : Laboratoire Kastler-Brossel LCFIO : Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique SYRTE : SYstèmes de Référence Temps Espace

Projet Tower Bragg (CPER Photonics for Society)
Ce projet consiste à inscrire des réseaux de Bragg sur tour de fibrage, en collaboration avec l'équipe de G. Laffont au LCAE du CEA/List
Responsable PhLAM : M. Douay
Mise en œuvre : P. Bulot, C. Valentin, L. Lago-Rachel, A. Cassez, G. Bouwmans, L. Bigot

- Contrat de recherche avec le CEA/CESTA (2013 - 2015)

Titre : Fibres à mode fondamental aplati

Ce projet vise à réaliser et étudier une fibre microstructurée active, monomode et à maintien de polarisation délivrant un mode aplati, en collaboration avec l'équipe d'E. Hugonnot (CEA/CESTA) Responsable PhLAM : G. Bouwmans

Mise en œuvre : P. Gouriou, C. Valentin, L. Bigot, Y. Quiquempois, A. Cassez, Q. Coulombier, A. Mussot, M. Douay, G. Bouwmans

- Contrat de recherche avec le CEA/CESTA (2010 - 2012)
Titre : Etude mise en forme spatiale fibrée
Ce projet vise à réaliser et étudier une fibre microstructurée monomode délivrant un mode aplati, en collaboration avec l'équipe d'E. Hugonnot (CEA/CESTA)
Responsable PhLAM : A. Mussot
Mise en œuvre : C. Valentin, L. Bigot, Y. Quiquempois, Q. Coulombier, A. Mussot, M. Douay

- ANR programme blanc (2010 - 2013)

Titre : Nano-imagerie de la dynamique de magnétisation femtoseconde par diffusion cohérente de rayons X mous générés par harmoniques d'ordre élevé (FEMTO - X - MAG).

Ce projet consiste à générer des harmoniques d'ordre élevé dans le domaine XUV, polarisées circulairement afin d'étudier la dynamique femtoseconde d'échantillons magnétiques. Les partenaires sont : LCPMR (J. Lüning), CEA/IRAMIS (H. Merdji).

Responsable LOA : Ph. Zeitoun

Mise en œuvre : J. Gautier, C. Valentin, T. Marchenko, G. Lambert, B. Vodungbo, Ph. Zeitoun Harmoniques générées par deux couleurs : PSI (Ch. Hauri)

- LASERLAB II (2009 - 2012)

Titre : Sources of Femtosecond ultra-INtense X-rays (SFINX)

Le JRA SFINX a pour but d'offrir aux utilisateurs LASERLAB des lasers X avec des caractéristiques améliorées telles qu'un taux de répétition plus grand, une plus grande intensité, des durées d'impulsions plus courtes et des longueurs d'onde plus courtes. Ces sources apparaissent comme sources complémentaires aux lasers à électrons libres X. Les partenaires sont les membres de LASERLAB qui produisent des rayonnements X.

Responsable LOA : Ph. Zeitoun

Mise en œuvre : M. Ribière, S. Sebban, S. Corde, K. TaPhuoc, C. Valentin, J. Gautier, Ph. Zeitoun, G. Lambert, F. Tissandier, J.-Ph. Goddet, A. Rousse

Amplification d'harmoniques par plasma : Centro de Fisica dos Plasmas, Lisbonne (M. Fajardo), CEA/DAM (D. Aubert & G. de Lachèze-Murel), LIXAM (S. Kazamias-Moucan), LULI (S. LePape) et CEA/IRAMIS (H. Merdji)

Laser X OFI : Institut de Physique de Prague (T. Mocek), Centro de Fisica dos Plasmas, Lisbonne (M. Fajardo), LIXAM (S. Kazamias\_Moucan), LPGP (G. Maynard, B. Cros), LAC (J. Dubau), Department of Physics, University of Oxford (S. Hooker), LULI (S. Jacquemot)

Ablation du PMMA avec une source d'harmoniques d'ordre élevé : Institut de Physique de Prague (L. Juha), DESY (T. Tschentscher), Institute of Physics, Polish Academy of Sciences (M. Jurek), Biomedical Centre, Uppsala University (J. Hajdu) and LLNL (S. P. Hau-Riege)

- Groupement de Recherche GDR3150 AppliX pour Applications des nouvelles sources X et XUV (2008-2012)

Responsable LOA : S. Sebban

Mise en œuvre : S. Sebban, Ph. Zeitoun, C. Valentin, J. Gautier, J.-Ph. Goddet, A. Rousse

Double photo-ionisation de gaz rare par harmoniques assistées par IR : LIXAM (A Huetz), CEA/IRAMIS (P. Agostini) et LCPMR (A. Maquet)

Mesures d'indice dans le domaine XUV : LCFIO (F. Delmotte et S. DeRossi)

Harmoniques générées par faisceau laser aplati : CEA/IRAMIS (B. Carré), CELIA (E. Constant) Mesure de front d'onde harmonique : synchrotron SOLEIL (M. Idir & P. Mercère), Imagine Optic (S. Bucourt)

- ANR programme blanc (2007 - 2010)

Titre : COherent ultrafast source in the KEV Range (COKER)

Le but de ce projet est de démontrer la possibilité de réaliser un laser femtoseconde dans la gamme spectrale X (longueur d'onde de l'ordre de 1.5 nm), en collaboration avec le LULI et le LPGP. Responsable LOA : S. Sebban

Mise en œuvre : M. Ribière, F. Tissandier, J.-Ph. Goddet, J. Gautier, C. Valentin, Ph. Zeitoun, S. Sebban

- FP6 Nest Adventure (2005 - 2008)

Tabletop Ultra-Intense XUV sources for femto-biology and related ApplicationS (TUIXS) Le projet TUIXS a pour but de développer des sources X de taille réduite pour les applications en femto-biologie et autres sujets en relation.

Responsable LOA : Ph. Zeitoun

Mise en œuvre : J. Gautier, Ph. Zeitoun, A.-S. Morlens, G. Rey, C. Valentin, E. Papalarazou, Ch. Hauri, J.-Ph. Goddet, S. Sebban, F. Burgy

- Marie Curie Research Training Networks XTRA (2004 - 2008)

Responsable LOA : Ph. Balcou

Mise en œuvre : E. Papalazarou, O. Boyko, C. Valentin, D. Douillet, Ph. Balcou

Ce réseau regroupe plusieurs laboratoires français et européens sur la thématique des impulsions attosecondes (10<sup>-18</sup> s) et leurs applications. XTRA regroupe 15 laboratoires européens, un laboratoire canadien et un laboratoire américain.

Harmoniques anormales : Institut für Theoretische Physik, Hanovre (M. Lewenstein), LAC (J.-F. Wyart)

*Mesure d'impulsions attosecondes* : Université de Lund (A. L'Huillier), le LIXAM (S. Kazamias-Moucan), Louisiana State University (K. Schafer & M. Gaarde) et le CEA/IRAMIS (P. Salières) *Phonons dans le bismuth sondés par harmoniques* : LPS (M. Marsi) - Groupements de Recherche GDR1851 SAXO (1999 - 2003)

Responsables LOA : S. Sebban et Ph. Balcou

Mise en œuvre : S. Kazamias, A.-S. Morlens, O. Boyko, D. Douillet, S. Sebban, C. Valentin, Ph. Zeitoun, Ph. Balcou

Les différentes journées du GDR ont permis de rassembler les communautés des rayonnements UV, XUV et X (laser X, harmoniques d'ordres élevés, X durs...), des théoriciens en physique atomique dans les plasmas chauds et en hydrodynamique des plasmas, des optiques XUV et X...

- collaboration PRaXO (Pôle d'optique à Rayon X d'Orsay)

Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (LCFIO), Laboratoire d'Interaction du rayonnement X Avec la Matière (LIXAM), Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique (LURE), Direction des Sciences de la Matière du CEA/Saclay (DSM), Direction de l'Armement Militaire du CEA/Bruyères le Châtel (DAM)

Responsable LOA : Ph. Balcou

Mise en œuvre : Ph. Balcou et C. Valentin

- Contrats de Recherche avec le CNES et la DGA (1998 - 2000)

Titre : HOrloge à Refroifissement d'Atomes en CEllule (HORACE)

Ces contrats de recherche permettent d'étudier la faisabilité d'une horloge compacte à atomes froids où le refroidissement des atomes se produit dans la cavité micro-onde elle-même, ce qui permet de miniaturiser l'horloge.

Responsable LHA : N. Dimarcq

Mise en œuvre : E. Fretel, E. Guillot, P.-E. Pottie, P. Petit, C. Valentin, N. Dimarcq

- Groupement de Recherche "Gravitation et Expériences"

Laboratoire Primaire du Temps et des Fréquences (LPTF), Laboratoire de Physique des Lasers (LPL) et laboratoire de Gravitation et Cosmologie (LGCR) Relativistes, Laboratoire Kastler-Brossel (LKB) et l'Institut d'Optique Théorique et Appliquée (IOTA) sur les gyromètres à atomes froids

Capteurs inertiels à atomes froids : LPTF (Arnaud Landragin et André Clairon), LPL et LGCR (Christian Bordé), LKB (Christophe Salomon), LCFIO (Philippe Bouyer).

Projet européen HYPER : SYRTE, LCFIO, Institue of Qauntum Optics, Hannover University and Rutherford Appleton Laboratory, United Kindom

- Contrat de Recherche avec le BNM (1996 - 1998) Titre : Etude et faisabilité d'une source continue d'atomes froids. Responsable LHA : N. Dimarcq Mise en œuvre : E. Aucouturier, S. Weyers, P. Petit, C. Valentin, N. Dimarcq

- Contrat de Recherche avec la DGA (1996 - 1998)
Titre : Génération d'un jet continu d'atomes froids.
Responsable LHA : N. Dimarcq
Mise en œuvre : E. Aucouturier, S. Weyers, P. Petit, C. Valentin, N. Dimarcq

Ces deux derniers contrats de recherche permettent de réaliser une source continue d'atomes froids par la technique de mélasse mouvante tout en gardant un nuage d'atomes froids dans les deux dimensions transverses au déplacement. - collaboration avec l'Observatoire Cantonal de Neuchâtel (Suisse) sur le jet continu d'atomes froids Responsable LHA : N. Dimarcq

Mise en œuvre : E. Aucouturier, S. Weyers, P. Petit, C. Valentin, N. Dimarcq

# Publications

# Liste des brevets (2)

1 - E. Hugonnot, <u>C. Valentin</u>, Y. Quiquempois, G. Bouwmans, L. Bigot, A. Mussot, *Mise en forme spatiale par une fibre microstructurée effilée d'un mode de forme gaussienne vers une forme aplatie ou une forme en anneau.*, dépôt n° 12 52098, Numéro de publication EP 2823342 A1 (<u>WO2013131877</u>) date de priorité 8/03/2012, date de dépôt 5/03/2013, date de publication 14/01/2015

2 - E. Hugonnot, L. Lago, A. Mussot, Y. Quiquempois, G. Bouwmans, L. Bigot, <u>C. Valentin</u>, *Fibre optique microstructurée à grand cœur et à mode fondamental aplati, et procédé de conception de celle-ci, application à la microfabrication par laser., dépôt FR 11 58356, Numéro de publication EP2758816 A1 (WO2013041533), date de priorité 20/09/2012, date de dépôt 18/09/2013, date de publication 30/07/2014* 

# Revues internationales avec comité de lecture (48)

1. - Pierre Gouriou, Florent Scol, Benoit Sevigny, <u>Constance Valentin</u>, Yves Quiquempois, Laurent Bigot, Rémi Habert, Andy Cassez, Olivier Vanvincq, Emmanuel Hugonnot, and Géraud Bouwmans, *Polarization maintaining single-mode fiber delivering a flat top intensity profile.*, Opt. Express **23**, 32496 (2015)

2 - Benoit Sévigny, Guillaume Le Cocq, Carmen Carina Castineiras Carrero, <u>Constance Valentin</u>, Pierre Sillard, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, and Yves Quiquempois, *Advanced S2 Imaging: Application of Multivariate Statistical Analysis to Spatially and Spectrally Resolved Datasets.*, Jour. Lightwave Techno. **32**, 4004 (2014)

3 - Pierre Calvet, <u>Constance Valentin</u>, Pierre Gouriou, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Quentin Coulombier, Marc Douay, Rémi Habert, Karen Delplace, Arnaud Mussot, and Emmanuel Hugonnot, *Top-hat beam output with 100 μJ temporally shaped narrow-bandwidth nanosecond pulses from a linearly polarized all-fiber system.*, Opt. Lett. **39**, 4780 (2014)

4 - Benoit Sévigny, Olivier Vanvincq, <u>Constance Valentin</u>, Na Chen, Yves Quiquempois, and Géraud Bouwmans, *Four-wave mixing stability in hybrid photonic crystal fibers with two zerodispersion wavelengths.*, Optics Express **21**, 30859 (2013)

5 - <u>Constance Valentin</u>, Pierre Calvet, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Quentin Coulombier, Marc Douay, Karen Delplace, Arnaud Mussot, and Emmanuel Hugonnot, *Top-hat beam output of a single-mode microstructured optical fiber: Impact of core index depression.*, Optics Express **21**, 23250 (2013)

6 - W. Boutu, T. Auguste, O. Boyko, I. Sola, Ph. Balcou, L. Binazon, O. Gobert, H. Merdji, <u>C.</u> <u>Valentin</u>, E. Constant, E. Mével, and B. Carré, *High-order-harmonic generation in gas with a flattop laser beam.*, Phys. Rev. A **84**, 063406 (2011)

7 - Boris Vodungbo, Anna Barszczak Sardinha, Julien Gautier, Guillaume Lambert, <u>Constance Valentin</u>, Magali Lozano, Grégory Iaquaniello, Franck Delmotte, Stéphane Sebban, Jan Lüning, Philippe Zeitoun, *Polarization control of high order harmonics in the EUV photon energy range.*, Optics Express **19**, 4346 (2011)

8 - M. Ribière, S. Jacquemot, S. Sebban, S. Corde, K. TaPhuoc, <u>C. Valentin</u>, J. Gautier, P. Zeitoun, G. Lambert, F. Tissandier and A. Rousse, *Femtosecond coherent pulses in the keV range from inner-shell transitions pumped by a betatron source.*, Appl. Phys. B **101**, 753 (2010)

9 - F. Tissandier, S. Sebban, M. Ribière, J. Gautier, Ph. Zeitoun, G. Lambert, J.-Ph. Goddet, F. Burgy, <u>C. Valentin</u>, A. Rousse, J. Nejdl, T. Mocek, and G. Maynard, *Bessel spatial profile of a soft x-ray laser beam*, Appl. Phys. Lett. **97**, 231106 (2010)

10 - F. Tissandier, S. Sebban, M. Ribière, J. Gautier, Ph. Zeitoun, G. Lambert, A. Barszczak Sardinha, J.-Ph. Goddet, F. Burgy, T. Lefrou, <u>C. Valentin</u>, A. Rousse, O. Guilbaud and A. Klisnick, J. Nejdl T. Mocek, and G. Maynard, *Observation of spectral gain narrowing in a high-order harmonic seeded soft-x-ray amplifier*, Phys. Rev. A **81**, 063833 (2010)

11 - G. Lambert, F. Tissandier, J. Gautier, C. P. Hauri, P. Zeitoun, <u>C. Valentin</u>, T. Marchenko, J.-P. Goddet, M. Ribière, A. Sardinha, M. Fajardo, F. Hamouda, G. Maynard, G. Rey and S. Sebban, *Aberration-free high-harmonic source generated with a two-colour field.*, Eur. Phys. Lett. **89**, 24001 (2010)

12 - Guillaume Lambert, Julien Gautier, Christoph Hauri, Philippe Zeitoun, <u>Constance Valentin</u>, Tatiana Marchenko, Fabien Tissandier, Jean-Philippe Goddet, Maxime Ribière, Gilles Rey, Marta Fajardo and Stéphane Sebban, *An optimized kHz two-colour high harmonic source for seeding free-electron lasers and plasma-based soft x-ray lasers.*, New J. Phys. **11**, 083033 (2009)

13 - J.-Ph. Goddet, S. Sebban, J. Gautier, Ph. Zeitoun, <u>C. Valentin</u>, F. Tissandier, T. Marchenko, G. Lambert, M. Ribières, G. Maynard, B. Cros, B. Robillard, T. Mocek, J. Nejdl, M. Kozlova, and K. Jakubczak, *Aberration-free laser beam in the soft x-ray range.*, Opt. Lett. **34** (16) pp. 2438-2440 (2009)

14 - J. Chalupský, L. Juha, V. Hájková, J. Cihelka, L. Vyšín, J. Gautier, J. Hajdu, S. P. Hau-Riege, M. Jurek, J. Krzywinski, R. A. London, E. Papalazarou, J. B. Pelka, G. Rey, S. Sebban, R. Sobierajski, N. Stojanovic, K. Tiedtke, S. Toleikis, T. Tschentscher, <u>C. Valentin</u>, H. Wabnitz, and P. Zeitoun, *Non-thermal desorption/ablation of molecular solids induced by ultra-short soft x-ray pulses.*, Optics Express **17**, 208 (2009)

15 - E. Papalazarou, D. Boschetto, J. Gautier, T. Garl, <u>C. Valentin</u>, G. Rey, Ph. Zeitoun, A. Rousse, Ph. Balcou, and M. Marsi, *Probing coherently excited optical phonons by extreme ultraviolet radiation with femtosecond time resolution*, Appl. Phys. Lett. **93**, 041114 (2008)

16 - <u>Constance Valentin</u>, Julien Gautier, Jean-Philippe Goddet, Christoph Hauri, Tatiana Marchenko, Evaggelos Papalazarou, Gilles Rey, Stéphane Sebban, Ophélie Scrick, Philippe Zeitoun, Guillaume Dovillaire, Xavier Levecq, Samuel Bucourt, and Marta Fajardo, *High-order harmonic wave fronts generated with controlled astigmatic infrared laser.*, J. Opt. Soc. Am. **B25**, B161 (2008)

17 - Julien Gautier, Philippe Zeitoun, Anne-Sophie Morlens, Gilles Rey, <u>Constance Valentin</u>, Evangelos Papalarazou, Christoph Hauri, Jean-Philippe Goddet, Stéphane Sebban, Frédéric Burgy, Pascal Mercère, Mourad Idir, Guillaume Dovillaire, Xavier Levecq, Samuel Bucourt, Marta Fajardo, Hamed Merdji, Jean-Pascal Caumes, *Optimization of the wave-front of high order harmonics*., Eur. Phys. J. D **48**, 459–463 (2008) 18 - O. Boyko, <u>C. Valentin</u>, B. Mercier, Ch. Coquelet, V. Pascal, E. Papalazarou, G. Rey and Ph. Balcou, *Systematic study of high harmonic control by temporal pulse shaping of laser pulses: major mechanisms of optimization*, Phys. Rev. A **76**, 063811 (2007)

19 - J. Ph. Goddet, S. Sebban, A. S. Morlens, J. Gautier, J. Ph. Rousseau, F. Burgy, Ph. Zeitoun, <u>C. Valentin</u>, C. Hauri, G. Maynard, A. Boudaa, J. P. Caumes, H.Merdji, T. Mocek, M. Kozlova, and K. Jakubczak., *Demonstration of a spatial filtering amplifier for high-order harmonics.*, Opt. Lett. **32**, 1498 (2007)

20 - <u>Constance Valentin</u>, Olga Boyko, Evaggelos Papalazarou, Gilles Rey, Brigitte Mercier, Laura Antonucci, Philippe Balcou, *Optimization of High Harmonic Generation by Genetic Algorithm.*, Acta Physica Hungarica A) Heavy Ion Physics **26**, 335 (2006)

21 - M. Fajardo, Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, S. Hallou, D. Aubert, Ph. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, P. Mercère, A. S. Morlens, J. P. Rousseau, <u>C. Valentin</u>, S. Kazamias, G. de Lachèze-Murel, T. Lefroud, H. Merdji, S. le Pape, M.F. Ravet, F. Delmotte, J. Gautier, *Second generation X-ray lasers.*, Journal of Quantum Spectroscopy and Radiative Transfer **99**, 142 (2006)

22 - P. Johnsson, K. Varju, T. Remetter, E. Gustafsson, J. Mauritsson, R. Lopez-Martens, S. Kazamias, <u>C. Valentin</u>, Ph. Balcou, M. B. Gaarde, K. J. Schafer, and A. L'Huillier, *Trains of attosecond electron wave packets*, J. Mod. Opt., 53, 233-245 (2006)

23 - O. Guyétand, M. Gisselbrecht, A. Huetz, P. Agostini, R. Taïeb, V. Véniard, A. Maquet, L. Antonucci, O. Boyko, <u>C. Valentin</u>, and D. Douillet, *Multicolour above-threshold ionization of helium: quantum interference effects in angular distributions.*, Journal of Physics B: Atomic Molecular and Optical Physics **38**, L357 (2005)

24 - O. Boyko, <u>C. Valentin</u>, G. Rey, L. Antonucci, Ph. Balcou; *Temporal superresolution of ultrashort laser pulses*, Opt. Express **13**, 8222 (2005)

25 - P. Johnsson, R. Lopez-Martens, S. Kazamias, J. Mauritsson, <u>C. Valentin</u>, T. Remetter, K. Varju, M. B. Gaarde, Y. Mairesse, H. Wabnitz, P. Salieres, Ph. Balcou, K. J. Schafer, and A. L'Huillier, *Attosecond Electron Wave Packet Dynamics in Strong Laser Fields*, Phys. Rev. Lett. **95**, 013001 (2005)

26 - T. Mocek, S. Sebban, I. Bettaibi, B. Cros, G. Maynard, C.M. McKenna, D.J. Spence, A.J. Gonsavles, S.M. Hooker, V. Vorontsov, Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Hallou, M. Fajardo, S. Kazamias, S. le Pape, P. Mercere, A.S. Morlens, <u>C. Valentin</u>, and Ph. Balcou, *Progress in optical-field-ionization soft x-ray lasers at LOA.*, Laser Part. Beams **23**, 351 (2005)

27 - Anne-Sophie Morlens, Philippe Balcou, Philippe Zeitoun, <u>Constance Valentin</u>, Vincent Laude, Sophie Kazamias, *Compression of attosecond harmonic pulses by extreme-ultraviolet chirped mirrors.*, Opt. Lett. **30**, 1554 (2005)

28 - Boyko O., Planchon T.A., <u>Valentin C.</u>, Douillet D., Reitze D., Kazamias S., Sebban S., Balcou P., *Spectral tailoring of high harmonic generation by adaptative methods.*, Laser Physics **15**, pp 616 - 619 (2005)

29 - O. Boyko, Th. A. Planchon, P. Mercère, <u>C. Valentin</u>, Ph. Balcou, *Adaptative shaping of a focused intense laser beam into a doughnut mode.*, Optics Commun. **246**, 131 (2005)

30 - S. Sebban, T. Mocek, I. Bettaïbi, B. Cros, G. Maynard, A. Butler, A. J.Gonzalves, C. M. McKenna, D. J. Spence, S. M. Hooker, L. M. Upcraft, P. Breger, P. Agostini, S. Le Pape, P. Zeitoun, <u>C. Valentin</u>, P. Balcou, D. Ros, S. Kazamias, A. Klisnick, G. Jamelot, B. Rus, and J. F. Wyart, *Progress on Collisionally Pumped Optical-Field-Ionization Soft X-Ray Lasers.*, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **10**, pp 1351-1362 (2004)

31 - Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, Ph. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lachèze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A.S. Morlens, J. P. Rousseau and <u>C. Valentin</u>, *A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam.*, Nature **431**, pp 426-429 (2004)

32 - <u>C. Valentin</u>, S. Kazamias, D. Douillet, G. Grillon, Th. Lefrou, F. Augé, M. Lewenstein, J.-F. Wyart, S. Sebban and Ph. Balcou, *Anomalous high-order harmonic generation.*, Journal of Physics B: Atomic Molecular and Optical Physics **37**, pp 2661-2675 (2004)

33 - Ph. Zeitoun, Ph. Balcou, S. Bucourt, F. Delmotte, G. Dovillaire, D. Douillet, J. Dunn, G. Faivre, M. Fajardo, K. A. Goldberg, S. Hubert, J. R. Hunter, M. Idir, S. Jacquemot, S. Kazamias, S. Lepape, X. Levecq, C.L.S. Lewis, R. Marmoret, P. Mercère, A.S. Morlens, P. P. Naulleau, M. F. Ravet, C. Rémond, J. J. Rocca, R. F. Smith, P. Troussell, <u>C. Valentin</u>, L. Vanbostal, *Recent developments in X-UV optics and X-UV diagnostics.*, Appl. Phys. B **78**, pp 983-988 (2004)

34 - <u>C. Valentin</u>, S. Kazamias, D. Douillet, G. Grillon, T. Lefrou, F. Augé, S. Sebban, and P. Balcou, *Experimental observation of anomalous high harmonics at low intensities.*, Appl. Phys. B **78**, pp 845-849 (2004)

35 - <u>C. Valentin</u>, D. Douillet, S. Kazamias, Th. Lefrou, G. Grillon, F. Augé, G. Mullot, Ph. Balcou, P. Mercère, and Ph. Zeitoun, Imaging and quality assessment of high-harmonic focal spots., Opt. Lett. **28**, 1049-1051 (2003)

36 - S. Kazamias, D. Douillet, F. Weihe, <u>C. Valentin</u>, A. Rousse, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, and Ph. Balcou, *Global Optimization of High Harmonic Generation.*, Phys. Rev. Lett. **90**, 193901 (2003)

37 - S. Kazamias, D. Douillet, <u>C. Valentin</u>, F. Weihe, F. Auge, Th. Lefrou, G. Grillon, S. Sebban, Ph. Balcou, *Observation of high-contrast coherence fringes in high order harmonic generation.*, Phys. Rev. A **68**, 033819 (2003)

38 - S. Kazamias, D. Douillet, <u>C. Valentin</u>, Th. Lefrou, G. Grillon, G. Mullot, F. Augé, P. Mercère, Ph. Zeitoun, and Ph. Balcou, *Optimization of the focused flux of high harmonics.*, Eur. Phys. J. D **26**, 47 (2003)

39 - S. Kazamias, F. Weihe, D. Douillet, <u>C. Valentin</u>, T. Planchon, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, and Ph. Balcou, High order harmonic generation optimisation with an apertured laser beam., Eur. Phys. J. D **21**, 353-359 (2002)

40 - Stéphane Sebban, Lee M. Upcraft, Philippe Balcou, Moana Pittman, Romain Haroutunian, Georges Grillon, <u>Constance Valentin</u>, Antoine Rousse, Jean-Philippe Rousseau, Laurent Notebaert and Danièle Hulin, *Investigations of collisionnaly pumped optical field ionisation soft-x-ray lasers.*, J. Opt. Soc.Am. B **20**, 195-202 (2003)

41 - S. Sebban, T. Mocek, D. Ros, L. M. Upcraft, Ph. Balcou, R. Haroutunian, G. Grillon, B. Rus, A. Klisnick, A. Carillon, G. Jamelot, <u>C. Valentin</u>, A. Rousse, J. P. Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman, and D. Hulin, *Demonstration of a Ni-like Kr optical-field-ionization collisional soft x-ray at 32.8 nm.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 253901 (2002)

42 - <u>Constance Valentin</u>, Emmanuel Guillot, Christelle Guillemot, Pierre Petit, and Noël Dimarcq, *Microwave Interrogation of Cesium Atoms Cooled in Isotropic Light*., IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement, **50**, 1224-1228 (2001)

43 - S. Weyers, E. Aucouturier, <u>C. Valentin</u> and N. Dimarcq, *A continuous beam of cold cesium atoms extracted from a two-dimensional magneto-optical trap.*, Optics Commun. **143**, 30 (1997)

44 - <u>Constance Valentin</u>, Jin Yu, and Pierre Pillet, Adiabatic transfer in  $j \rightarrow j$  and  $j \rightarrow j - 1$  transition., J. Phys. II (France) **4**, 1925 (1994)

45 - P. Pillet, <u>C. Valentin</u>, R.-L. Yuan and J. Yu, *Adiabatic population transfer in a multilevel system.*, Phys. Rev. A **48**, 845 (1993)

46 - J. Yu, M.-C. Gagné, <u>C. Valentin</u>, S. Guellati, J. Djemaa, R.-L. Yuan and P. Pillet, *Effects of a static magnetic field on sub-Doppler molasses: manipulation of cesium atoms*, IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement **42**, 109 (1993)

47 - J. Yu, M.-C. Gagné, <u>C. Valentin</u>, R.-L. Yuan and P. Pillet, *Narrowband frequency control of an injection-locked diode-laser battery*, J. Phys. III **2**, 1615 (1992)

48 - <u>C. Valentin</u>, M.-C. Gagné, J. Yu and P. Pillet, *One dimension sub-Doppler molasses in presence of static magnetic field*, Europhys. Lett. **17**, 133 (1992)

<u>Conférences internationales : communications orales</u> (50) l'astérisque indique les communications invitées

C1 - \*Olivier Vanvincq, Jean-Paul Yehouessi, Pierre Gouriou, Florent Scol, Andy Cassez, Hicham El Hanazaoui, Mohamed Bouazaoui, Emmanuel Hugonnot, <u>Constance Valentin</u>, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, and Laurent Bigot, *Active and passive solid-core microstructured fibers for laser applications*,7th Europhoton, 21-26 août 2016, Vienne (Autriche)

C2 - Florent Scol, Pierre Gouriou, Arnaud Perrin, Jean-François Gleyze, <u>Constance Valentin</u>, Géraud Bouwmans and Emmanuel Hugonnot, *All-fiber MOPA prototype with 100μJ temporally-shaped nanosecond-pulse and spatially coherent top-hat beamoutput for large-scale laser facility front end*, Conference on Lasers and Electro-Optics, 5-10 juin 2016, San Jose (US)

C3 - <u>C. Valentin</u>, P. Gouriou, F. Scol, B. Sevigny, Y. Quiquempois, L. Bigot, R. Habert, A. Cassez, O. Vanvincq, E. Hugonnot, and G. Bouwmans, *First realization of a birefringent flat-top single-mode fiber*., SPIE Photonics 2016, 3-7 avril 2016, Bruxelles (Belgique) Publié dans SPIE Vol. **9886** 988615-1 (2016)

C4 - Pierre Gouriou, Florent Scol, Benoit Sevigny, <u>Constance Valentin</u>, Yves Quiquempois, Laurent Bigot, Rémi Habert, Andy Cassez, Olivier Vanvincq, Emmanuel Hugonnot and Geraud Bouwmans, *Top hat single-mode polarization maintaining fiber and polarizing numerical design*, SPIE Photonics West, 13-18 février 2016, San Fransisco (US)

Publié dans Proc. of SPIE Vol. 9728 97281A (2016)

C5 - P. Gouriou, <u>C. Valentin</u>, F. Scol, B. Sévigny, Y. Quiquempois, L. Bigot, A. Cassez, A. Mussot, M. Douay, R. Habert, K. Delplace, E. Hugonnot, G. Bouwmans, *Design and realization of a microstructured fiber delivering a polarized flattened mode.*, CLEO/Europe-EQEC 2015, 21-25 juin 2015, Munich (Allemagne)

C6 - J.-F. Gleyze, A. Perrin, P. Calvet, P. Gouriou, F. Scol, <u>C. Valentin</u>, G. Bouwmans, E. Lecren, E. Hugonnot, *Industrial mJ-class all-fiber front end with spatially coherent top-hat beam output used as seeder for high power laser.*, SPIE Optics + Optoelectronics 2015, 13-16 avril 2015, Prague (République Tchèque)

Publié dans Proc. of SPIE Vol. 9513, 95130C (2015)

C7 - Benoit Sévigny, Guillaume Le Cocq, Carmen Carina Castiñeiras Carrero, Pierre Sillard, <u>Constance Valentin</u>, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot and Yves Quiquempois, *A Novel Take On the S*<sup>2</sup> *Dataset Modal Analysis.*, European Conference in Optical Communication 2014, 21-25 septembre 2014, Cannes (France)

C8 - Pierre Calvet, <u>Constance Valentin</u>, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Marc Douay, Arnaud Mussot and Emmanuel Hugonnot, *Modal Content Measurement by the S<sup>2</sup> Method of a TopHat Beam Output Fiber.*, Advanced Solid State Lasers 2013, 27 octobre – 1<sup>er</sup> novembre 2013, Paris (France)

C9 - Pierre Calvet, <u>Constance Valentin</u>, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Quentin Coulombier, Laurent Bigot, Marc Douay, Arnaud Mussot and Emmanuel Hugonnot, *Spatially coherent top-hat beam output from a large mode area microstructured single-mode fibre.*, Conference on Lasers and Electro-Optics 2013, 12-16 mai 2013, Munich (Allemagne)

C10 - <u>Constance Valentin</u>, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Marc Douay, Arnaud Mussot, Laure Lago, Pierre Calvet and Emmanuel Hugonnot, *Flattened fundamental mode in optical fibers.*, Specialty Optical Fibers 2012, 17-20 juin 2012, Colorado, Colorado (USA)

C11 - Yves Quiquempois, Assaad Baz, Olivier Vanvincq, <u>Constance Valentin</u>, Laurent Bigot, Géraud Bouwmans, Alexandre Kudlinski, Arnaud Mussot, Pierre Calvet, Emmanuel Hugonnot and Marc Douay, *Recent advances in the design of photonic bandgap and hybrid fibers: From LMA to HNL fibers.*, Photonics North 2012, 6-8 juin 2012, Montréal (Canada)

C12 - <u>Constance Valentin</u>, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Marc Douay, Arnaud Mussot, Laure Lago, Pierre Calvet, and Emmanuel Hugonnot, *Flattened fundamental mode in microstructured fibers: design, realization and characterization.*, SPIE Photonics 2012, 16-19 avril 2012, Bruxelles (Belgique)

Publié dans Proc. of SPIE Vol. **8426** 84260J (2012)

C13 - \*Pierre Calvet, <u>Constance Valentin</u>, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Marc Douay, Arnaud Mussot and Emmanuel Hugonnot, *Top-hat beam output from a large mode area microstructured fiber for beam delivery*., SPIE Photonics 2012, 16-19 avril 2012, Bruxelles (Belgique)

Publié dans Proc. of SPIE Vol. **8433** 84330K (2012)

C14 - G. Lambert, J. Gautier, C.P. Hauri, F. Tissandier, <u>C. Valentin</u>, A. Barszczak Sardinha, M. Fajardo, T. Marchenko, J.Ph. Goddet, M. Ribiere, G. Rey, S. Sebban and Ph. Zeitoun, An intense kHz and aberration-free two-colour high harmonic source for seeding FEL and XRL., 12th international conference on X-Ray lasers, 30 mai - 4 juin 2010, Gwanju (Corée du Sud)

Publié dans X-Ray Lasers 2010, Springer Proceedings in Physics 136, 203 - 208 (2011)

C15 - \*S. Sebban, F. Tissandier, J.-Ph. Goddet, O. Guilbaud, J. Gautier, Ph. Zeitoun, <u>C. Valentin</u>, G. Lambert, G. Maynard, B. Robillard, A. Klisnik, T. Mocek, J. Nedjl, *Characterization of a seeded pptical-field ionization collisionnal soft x-ray laser.*, 12th international conference on X-Ray lasers, 30 mai - 4 juin 2010, Gwanju (Corée du Sud)

Publié dans X-Ray Lasers 2010, Springer Proceedings in Physics 136, 127 - 135 (2011)

C16 - \*S. Sebban *et al.*, *Progress on laser driven x-ray sources at the Laboratoire d'Optique Appliquée.*, 1st Porto Workshop on Sources of Super-intense and Ultrashort Laser Pulses, 26-28 octobre 2009, Porto (Portugal)

C17 - \*S. Sebban *et al.*, *Laser driven x-ray sources : principle, status and prospects.*, Ultrafast optics-High field and short wavelength radiation (UFO/HFSW), 31 août - 4 septembre 2009, Arcachon (France)

C18 - G. Lambert, J. Gautier, Ph. Zeitoun, <u>C. Valentin</u>, T. Marchenko, F. Tissandier, J.Ph. Goddet, M. Ribiere, A. Sardinha, G. Rey, S. Sebban, C.P. Hauri, M. Fajardo, *An intense kHz two-colour high harmonic source for seeding FELs from EUV to soft X-ray range*., FEL 2009, 24-28 août 2009, Liverpool (UK)

C19 - J. Chalupský, L. Juha, V. Hájková, and J. Cihelka, L. Vysin, J. Gautier, J. Hajdu, S. P. Hau-Riege, M. Jurek and J. Krzywinski, Ri. A. London, E. Papalazarou, J. B. Pelka, G. Rey and S. Sebban, R. Sobierajski, N. Stojanovic, K. Tiedtke, S. Toleikis, and T. Tschentscher, <u>C. Valentin</u>, H. Wabnitz, P. Zeitoun, *Response of molecular solids to ultra-intense femtosecond soft x-ray pulses.*, Damage to VUV, EUV, and X-Ray Optics II, 21-23 avril 2009, Prague (République Tchèque) Publié dans Proc. SPIE, Vol. **7361**, 736108 (2009)

C20 - E. Papalazarou, D. Boschetto, J. Gautier, <u>C. Valentin</u>, M. Marsi, Ph. Zeitoun, and Ph. Balcou, *Probing coherent phonon by Extreme Ultraviolet radiation based on high-order harmonic generation*, Ultrafast Phenomena XVI, 9-13 juin 2008, Stresa (Italy) Publié dans Ultrafast Phenomena XVI, Springer Series in Chemical Physics **92**, 301 (2009)

C21 - J. P. Goddet, S. Sebban, Ph. Zeitoun, J. Gautier, <u>C. Valentin</u>, F. Tissandier, T. Marchenko, G. Lambert, J. Nejdl, B. Cros, G. Maynard, B. Robillard, T. Mocek, M. Kozlová and K. Jakubczak, *Spatial Filtering of High Order Harmonics by an OFI Plasma Amplifier.*, *X-Ray Lasers 2008*, 17-22 août 2008, Belfast (UK)

Publié dans Springer Proceedings in Physics 130, 153 (2009)

C22 - J. P. Goddet, S. Sebban, O. Guilbaud, J. Gautier, Ph. Zeitoun, <u>C. Valentin</u>, F. Tissandier, T. Marchenko, G. Lambert, J. Nejdl, B. Cros, G. Maynard, B. Robillard, S. Kazamias, K. Cassou, A. Klisnick, D. Ros, J. Benredjem, T. Mocek, M. Kozlova and K. Jakubczak, *Characterization of a Seeded optical-Field Ionized Collisional Soft X-Ray Laser.*, X-Ray Lasers 2008, 17-22 août 2008, Belfast (UK)

Publié dans Springer Proceedings in Physics 130, 135 (2009)

C23 - <u>Constance Valentin</u>, Jérôme Faure, *Dose measurements in Salle Jaune at LOA*., Laserlab workshop on Protection Safety, 14-17 décembre 2008, Chamonix (France)

C24 - \*S. Sebban *et al.*, *Laser driven ultrafast x-ray sources.*, Workshop on Free Electron lasers, 2008 (France)

C25 - \*S. Sebban *et al.*, Ultra-Intense Laser Interaction Sciences (ULIS), *High quality soft x-ray laser beam at 32.8 nm.*, 1st International conference on ultra-intense laser interaction sciences, ULIS2007, 1-5 octobre 2007, Bordeaux (France)

C26 - \*S. Sebban *et al.*, *OFI seeded soft x-ray lasers*., Ultra-Fast Optics-High Field Short Wavelength 2007 (UFO-HFSW), 2 - 7 septembre 2007, Santa Fe (NM, USA)

C27 - <u>C. Valentin</u>, J. Gautier, E. Papalazarou, Ch. Hauri, G. Rey, and Ph. Zeitoun, *Control of high-order harmonic wave fronts*. , Ultra-Fast Optics-High Field Short Wavelength 2007 (UFO-HFSW), 2-7 septembre 2007, Santa Fe (NM, USA)

C28 - J. Gautier, A. S. Morlens, P. Zeitoun, G. Rey, <u>C. Valentin</u>, E. Papalazarou, J. P. Goddet, S. Sebban, F. Delmotte, M. F. Ravet, and F. Bridou, *XUV optics for attosecond applications.*, SPIE Optics + Photonics , 26-30 août 2007, San Diego (Ca, USA) Publié dans Proc. SPIE, Vol. **6705**, 67050C (2007)

C29 - J. Gautier, A. S. Morlens, P. Zeitoun, E. Papalazarou, G. Rey, <u>C. Valentin</u>, J. P. Goddet, S. Sebban, G. Dovillaire, X. Levecq, ans S. Bucourt, *High order harmonics wavefront measurement and optimization.*, SPIE Optics + Photonics, 26-30 août 2007, San Diego (Ca, USA) Publié dans Proc. SPIE, Vol. **6704**, 670403 (2007)

C30 - \*S. Sebban *et al.*, *Characterization of an OFI seeded soft x-ray laser.*, SPIE Optics + Photonics, 26-30 août 2007, San Diego (Ca, USA)

C31 - \*S. Sebban *et al.*, *Investigation of OFI seeded soft x-ray lasers.*, International symposium on ultra-intense lasers and applications, 2007, Nara (Japon)

C32 - <u>\*Constance Valentin</u>, Olga Boyko, Evaggelos Papalazarou, Julien Gautier, Philippe Zeitoun, Gilles Rey, Brigitte Mercier, Laura Antonucci, and Philippe Balcou, *Optimal control of high harmonic generation*. , Conférence invitée - 2nd French-Chinese Workshop on "Ultra-short and Ultra-intense Lasers and Applications" FCILA-2007, 4-7 juin 2007, Lyon (France)

C33 - <u>Constance Valentin</u>, Olga Boyko, Evaggelos Papalazarou, Gilles Rey, Brigitte Mercier, Laura Antonucci, Philippe Balcou, *Optimization of High Harmonic Generation by Genetic Algorithm.*, International Conference on the Interaction of Atoms, Molecules and Plasmas with intense Ultrashort Laser Pulses, IAMPI 2006, 1-5 octobre 2006, Szeged (Hongrie) Publié dans Acta Physica Hungarica A) Heavy Ion Physics **26**, 335 (2006)

C34 - <u>Constance Valentin</u>, Olga Boyko, Gilles Rey, Brigitte Mercier, Evaggelos Papalazarou, Laura Antonucci, and Philippe Balcou, *Optimization of High Harmonic Generation by Genetic Algorithm.*, Super Intense Laser Atom Physics, SILAP 2006, 19-23 juin 2006, Salamanca (Espagne)

C35 - <u>Constance Valentin</u>, Yannick Glinec, Georges Grillon, *Present and future radiation safety at LOA*., Laserlab workshop, 31 août 2005, Prague (République Tchèque)

C36 - P. Agostini, L. Antonucci, Olga Boyko-Kazymyrenko, D. Douillet, M. Gisselbrecht, O. Guyetand, A. Huetz, A. Maquet, R. Taieb, <u>C. Valentin</u>, and V. Veniard, *Quantum Interference Effect in Angular Distributions in Multicolour above threshold Ionization of Helium*, 10th International *Conference on Multiphoton Processes (ICOMP 2005)*, Oct 2005, Québec (Canada)

C37 - \*Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, Ph. Balcou, F. Burgy, K. Cassou, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lachèze-Murel, T. Lefrou, F. Ogando, S. le Pape, P.

Mercère, H. Merdji, T. Mocek, A. S. Morlens, J. P. Rousseau, F. Roy, <u>C. Valentin</u> and P. Velarde, *Soft X-ray laser of second generation*, 2005 IEEE LEOS Annual Meeting Conference, 23-27 octobre 2005, Sydney (Australie)

C38 - Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, Th. Mocek, S. Hallou, Ph. Balcou, F. Brurgy, D. Douillet, Th. Lefrou, P. Mercère, A.-S. Morelens, P. Rousseau, C. Valentin, M. Fajardo, S. Kazamias, D. Aubert, G. de Lachèze-Murel, S. le Pape, *Second generation of X-ray lasers.*, X-Ray Lasers 2004, 24-28 août 2004, Beijing (Chine) Publié dans ?

C39 - \*Ph. Zeitoun, Ph. Balcou, S. Bucourt, D. Benredjem, F. Delmotte, G. Dovillaire, D.Douillet, J. Dunn, G. Faivre, M. Fajardo, K.A. Goldberg, M. Idir, S. Hubert, J. R. Hunter, S. Jacquemot, S. Kazamias, S. le Pape, X. Levecq, C.L.S. Lewis, R. Marmoret, P. Mercère, A.S. Morlens, P.P. Naulleau, C. Rémond, J. J. Rocca, S. Sebban, R. F. Smith, M. F. Ravet, P. Troussel, <u>C. Valentin</u> and L. Vanbostal, *New techniques for the measurement of x-ray beam or x-ray optics quality.*, SPIE Optics + Photonics, 2003, San Diego (Ca, USA)

Publié dans Proceedings of SPIE Vol. **5197** Soft X-Ray Lasers and Applications V, 194 (2003)

C40 - <u>C. Valentin</u>, S. Sebban, S. Kazamias, G. Grillon, Th. Lefrou, F. Augé, S. Sebban, and Ph. Balcou, *Anomalous high harmonic generation at very low intensities.*, 10th Applications of High Field and Short Wavelength Sources, 12-15 octobre 2003, Biarritz (France)

C41 - <u>C. Valentin</u>, F. A. Weihe, S. Kazamias, R. Haroutunian, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, G. Chériaux, A. Rousse, D. Hulin et Ph. Balcou, *Coupled ionization and laser pulse propagation dynamics, probed with ultrafast pulse measurement techniques.*, International Quantum Electronics Conference 2002, 22-27 juin 2002, Moscou (Russie)

C42 - <u>C. Valentin</u>, Ch. Guillemot, E. Guillot, P.-E. Pottie, E. Fretel, P. Petit, and N. Dimarcq, *Isotropic cooling of cesium atoms for a compact atomic clock: First results and expected performances.*, EFTF 2000, 14-16 mars 2000, Torino (Italie),

Publié dans Proc. of 14th the European Frequency and Time Forum 2000, pp 489-493 (2000)

C43 - <u>C. Valentin</u>, N. Dimarcq, E. Fretel, A. Joyet, P. Thomann, G. Dudle, *Numerical simulations of atomic behaviour for several configurations of cold cesium atoms.*, EFTF 1999, 13-16 avril 1999, Besançon (France)

Publié dans Proc. Joint Meeting of the 13th European Forum on Time and Frequency and the IEEE International Frequency Control Symposium 1999, pp 100-103 (1999)

C44 - E. Guillot, P. Pottie, <u>C. Valentin</u>, P. Petit, and N. Dimarcq, *HORACE: Atomic clock with cold atoms in a cell.*, EFTF 1999, 13 - 16 avril 1999, Besançon (France) Publié dans Proc. Joint Meeting of the European Frequency and Time Forum and the IEEE International Frequency Control Symposium 1999, vol. 1, pp 81-84 (1999)

C45 - Ch. Guillemot, P. Petit, <u>C. Valentin</u>, N. Dimarcq , *Last results on CHARLI*, *the LHA atomic clock using isotropic light.*, EFTF 1999, 13 - 16 avril 1999, Besançon (France) Publié dans Proc. Joint Meeting of the 13th European Forum on Time and Frequency and the IEEE International Frequency Control Symposium 1999, pp. 92-95 (1999)

C46 - Ch. Guillemot, P. Petit, S. Forget, <u>C. Valentin</u>, and N. Dimarcq, *A simple configuration of clock using cold atoms.*, EFTF12, 10-12 mars 1998, Varsovie (Pologne) Publié dans Proc. of 12th the European Frequency and Time Forum, pp 55-57 (1998) C47 - E. Guillot, P. Petit, <u>C. Valentin</u>, and N. Dimarcq, *HORACE: a new advance for compact clocks with cold atoms.*, EFTF12, 10-12 mars 1998, Varsovie (Pologne) Publié dans Proc. of 12<sup>th</sup> the European Frequency and Time Forum, p 543 (1998)

C48 - <u>C. Valentin</u>, Ch. Guillemot, P. Petit, and N. Dimarcq, *3-D cooling of cesium atoms with isotropic laser light.*, 29th European Group for Atomic Spectroscopy, 14-18 juillet 1997, Berlin (Allemagne)

C49 - <u>C. Valentin</u>, E. Aucouturier, E. Guillot, P. Petit, S. Weyers, and N. Dimarcq, *A continuous beam of cold cesium atoms for atomic standards.*, EFTF11, 4-7 mars 1997, Neuchâtel (Suisse) Publié dans Proc. of 11th European Frequency and Time Forum, pp 141-145 (1997)

C50 - Eve Aucouturier, Noel Dimarcq, Pierre Petit, <u>Constance Valentin</u>, and Stefan Weyers, *The L.H.A. 2D Magneto-Optical Trap: On the Way to a continuous beam of cold atoms.*, EFTF10, 5-7 mars 1996, Brighton (UK)

Publié dans Proc. 10th European Frequency and Time Forum, pp 230 – 230 (1996)

C51 - <u>C. Valentin</u>, P. Pillet, J. Yu and R.-L. Yuan, *Adiabatic transfer in a multilevel system*., 25th European Group for Atomic Spectroscopy, 13–16 juillet 1993, Caen (France)

C52 - P. Pillet, M.-C. Gagné, <u>C. Valentin</u> and J. Yu, *Experimental study of one dimension sub-Doppler molasses effects.*, Tenth International Conference on Laser Spectroscopy, 17-21 juin 1991, Font-Romeu (France)

*Publié dans* Laser Spectroscopy, TENICOLS'91, 50 Ed M. Ducloy, E. Giacobino et G. Camy, World Scientific (1992)

Conférences nationales (15)

C1 - Florent Scol, Pierre Gouriou, Arnaud Perrin, Jean-François Gleyze, <u>Constance Valentin</u>, Géraud Bouwmans and Emmanuel Hugonnot, *Système laser entièrement fibré délivrant des impulsions nanosecondes de 170µJ et un faisceau cohérent de profil d'intensité aplati*, Optique Bordeaux, 4-8 juillet 2016, Bordeaux (France)

C2 - F. Scol, P. Gouriou, P. Calvet, A. Perrin, B. Sévigny, <u>C. Valentin</u>, Y. Quiquempois, L. Bigot, A. Cassez, M. Douay, E. Hugonnot, G. Bouwmans, *Fibres microstructurées à mode fondamental aplati à maintien de polarisation*, Optique Bretagne, 6-9 juillet 2015, Rennes (France),

C3 - Benoit Sévigny, Guillaume Le Cocq, Carmen Carina Castineiras Carrero, <u>Constance Valentin</u>, Pierre Sillard, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot et Yves Quiquempois, *Applixcation de méthodes d'analyse statistique multivariée aux mesures S*<sup>2</sup>, 34<sup>è</sup> Journées Nationales d'Optique Guidée, 29-31 octobre 2014, Nice (France)

C4 - Pierre Calvet, <u>Constance Valentin</u>, Yves Quiquempois, Géraud Bouwmans, Laurent Bigot, Marc Douay, Arnaud Mussot and Emmanuel Hugonnot, *Fibre microstructurée à large aire effective délivrant un faisceau aplati*, 32<sup>è</sup> Journées Nationales d'Optique Guidée, 10-12 juillet 2012, Lyon (France)

C5 - <u>C. Valentin</u>, Y. Quiquempois, G. Bouwmans, L. Bigot, A. Mussot, L. Lago et E. Hugonnot, *Mise en forme spatiale fibrée*, Journées de Physique Ultrarapide, 17-19 octobre 2011, Rouen (France)

C6 - J. Gautier, P. Zeitoun, A. S. Morlens, S. Sebban, <u>C. Valentin</u>, E. Papalazarou, J. P. Goddet, G. Lambert, T. Marchenko et M. Fajardo, UVX2008, 7-10 octobre 2008, Dourdan (France) Publié dans pp. 45-50 (2009)

C7 - Jean-Philippe Goddet, Stéphane Sebban, O. Guilbaud, Gilles Maynard, B. Cros, J. Gautier, Ph. Zeitoun, <u>C. Valentin</u>, F. Tissandier, T. Marchenko *et al.*, *Caractérisation spatio-temporelle d'un laser XUV injecté*, UVX2008, 7-10 octobre 2008, Dourdan (France) Publié dans, pp. 51 (2009)

C8 - <u>C. Valentin</u>, O. Boyko, G. Rey, B. Mercier, E. Papalazarou and L. Antonucci, *Étude expérimentale de l'optimisation de la génération d'harmoniques d'ordre élevé par l'utilisation d'un algorithme génétique*, UVX2006, 6-9 juin 2006, Colleville-sur-Mer (France)

Publié dans J. Phys. IV France 138, pp. 35-41 (2006)

C9 - <u>C. Valentin</u>, S. Kazamias, D. Douillet, Thierry Lefrou, Frederika Auge-Rochereau, *et al.*, *Étude de la génération d'harmoniques anormales d'ordre élevé à basse intensité*, UVX2004, 7-11 juin 2004, Saint-Etienne (France) Publié dans *Journal de Physique IV (Proceedings)* **127**, pp. 181-185 (2005)

C10 - O. Boyko, D. Reitze, S. Kazamias, T.A. Planchon, <u>C. Valentin</u> et Ph. Balcou, *Optimisation de la génération d'harmoniques d'ordre élevé à l'aide d'une optique adaptative et d'un modulateur acousto-optique*, UVX2004, 7-11 juin 2004, Saint-Etienne (France) Publié dans *Journal de Physique IV (Proceedings)* **127**, pp. 99 – 103 (2005)

C11 - Philippe Zeitoun, Gabriel Faivre, Stéphane Sebban, T. Mocek, S. Hallou, *et al., Lasers X de deuxième génération*, UVX2004, 7-11 juin 2004, Saint-Etienne (France) Publié dans *Journal de Physique IV (Proceedings)* **127**, pp. 9 – 13 (2005)

C12 - <u>C. Valentin</u>, F. Weihe, Sophie Kazamias, R. Haroutunian, Stéphane Sebban, *et al.*, *Mesure de la dynamique couplée de propagation et d'ionisation d'une impulsion laser - Application au laser X-OFI ou à la génération d'harmoniques d'ordres élevés*, UVX2002, 11-14 juin 2002, Ile-d'Oléron (France)

Publié dans Journal de Physique IV (Proceedings) 108, pp. 109 – 112 (2003)

C13 - Sophie Kazamias, Frederick Weihe, D. Douillet, <u>C. Valentin</u>, T. Planchon, *et al.*, *Étude de la génération d'harmoniques par des faisceaux tronqués*, UVX2002, 11-14 juin 2002, Ile-d'Oléron (France)

Publié dans Journal de Physique IV (Proceedings) 108, pp. 105 - 108 (2003)

C14 - Guillot, E., Valentin, C., and Dimarcq, N., *Elaboration d'un jet continu d'atomes de césium froids.*, COLOQ 5 et Horizons 97, septembre 1997, Strasbourg (France) Publié dans *Annales de Physique* Vol. **23**, pp. C1-205 (1998) C15 - Guillemot, C., Petit, P., Fils, J., Valentin, C., and Dimarcq, N., *Refroidissement d'atomes en lumière isotrope. Application a l'horloge atomique.*, COLOQ 5 et Horizons 97, septembre 1997, Strasbourg (France)

Publié dans Annales de Physique Vol. 23, pp. C1-203 (1998)