HAL
open science

Autoguidage dans l'air d'impulsions ultracourtes

Hans Rüdiger Lange

To cite this version:

Hans Rüdiger Lange. Autoguidage dans l'air d'impulsions ultracourtes. Optique [physics.optics]. Ecole Polytechnique (EDX), 1998. Français. NNT : . tel-01508606

HAL Id: tel-01508606

https://ensta-paris.hal.science/tel-01508606

Submitted on 14 Apr 2017

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

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

ECOLE POLYTECHNIQUE

THESE

Spécialité: Physique Atomique et Optique Non Linéaire

Présentée par

Hans Rüdiger Lange

pour obtenir le titre DOCTEUR DE L'ECOLE POLYTECHNIQUE

Sujet de la thèse:

Autoguidage dans l'air d'impulsions ultracourtes

Etude expérimentale et numérique

Soutenue le 18 septembre 1998 devant le jury composé de :

Messieurs D. Giulietti (rapporteur)
C. Froehly (rapporteur)
P. Mora
A. Mysyrowicz
E. Nibbering
B. Prade
R. Sauerbrey

1. INTRODUCTION GÉNÉRALE 9

2. CONCEPTS DE BASE 16

2.1 Représentation d'une impulsion lumineuse 16

2.2 Description de l'effet Kerr optique 20

2.3 Description de l'ionisation multiphotonique 24

3. THÉORIE DE LA PROPAGATION NON-LINÉAIRE EN PRÉSENCE D'EFFET KERR ET D'IONISATION 31

3.1 Equation de propagation 31

3.2 Approximations dans l'équation de propagation 32

3.2.1 La divergence du champ électrique est nulle et le champ est considéré comme scalaire 33

3.2.2 La propagation est paraxiale 34

3.2.3 L'enveloppe temporelle varie lentement devant la fréquence de la porteuse 35

3.2.4 Les effets de la dispersion sont négligés 35

3.2.5 Approximation de la non-linéarité comme perturbation faible 38

3.3 Outil numérique 38

3.3.1 Schéma numérique utilisé 40

3.3.2 Processus de simulation 43

4. SOLUTION DE L'ÉQUATION DE PROPAGATION NON-LINÉAIRE 46

4.1 Diffraction 46

4.2 Effet Kerr sans diffraction 48

4.3 Effet Kerr avec diffraction 51

4.3.1 Effet Kerr instantané pur 51

4.3.2 Effet Kerr instantané et retardé 58

4.4 Ionisation pure sans diffraction **61**

4.5 Ionisation avec diffraction **62**

4.6 Diffraction, effet Kerr et ionisation **65**

4.6.1 L'autoguidage - équilibre dynamique entre diffraction, effet Kerr et ionisation 65

4.6.2 La formation du filament 70

4.6.3 Structures annulaires en présence de diffraction, d'effet Kerr et d'ionisation 75

4.7 Conclusion **77**

5. ETUDE EXPÉRIMENTALE **81**

5.1 Dispositif expérimental **82**

5.1.1 Système laser 82

5.1.2 Mesure temporelle d'une impulsion femtoseconde 85

5.1.3 Dispositif expérimental pour l'observation de la filamentation 103

5.2 Caractérisation expérimentale des filaments **107**

5.2.1 Mesure spatiale 110

5.2.2 Mesures spectrales 114

5.2.3 Mesure de la durée de l'impulsion 118

5.3 Discussion **123**

6. APPLICATION DE L'AUTOGUIDAGE À LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES **132**

6.1 Les harmoniques d'ordre élevé **133**

6.2 Propagation de la pompe et des harmoniques 3 et 5 dans un milieu neutre **138**

6.3 L'origine physique des différentes contributions au désaccord de phase **140**

6.3.1 Le déphasage entre l'onde fondamentale et l'onde harmonique dans un gaz neutre 141

6.3.2 La contribution électronique 143

6.4 Résultats expérimentaux 145

6.4.1 La génération des harmoniques jusqu'au 23éme ordre par un filament 148

6.4.2 Mesure de l'absence de la phase géométrique dans les faisceaux autoguidés 150

6.4.3 Le quasi-accord de phase pour l'harmonique 3 154

6.5 Discussion 157

7. CONCLUSION 162

Remerciement

Le travail présenté dans ce mémoire a été effectué au Laboratoire d'Optique Appliquée commun à l'Ecole Polytechnique et à l'Ecole Nationale Supérieure de Techniques Avancées. Je remercie André Antonetti, son directeur, de m'y avoir accueilli chaleureusement et d'avoir continuellement soutenu mon travail de thèse.

Merci à André Mysyrowicz, mon directeur de thèse et professeur, pour son encouragement, ses idées, ses questions et les discussions intensives sur mes projets de recherche. C'était un grand plaisir, de faire la science dans son équipe dynamique et diverse où je voudrais remercier en particulier Arnaud Chiron pour son savoir-faire dans les simulations numériques et pour le temps qu'il a consacré à suivre mes questions et propositions. De même, je remercie Brigitte Lamouroux et Michel Franco, Jean-François Ripoche et Bernard Prade pour leur soutien à mon travail. Au delà de leur expertise en optique j'ai apprécié leur culture scientifique, leur curiosité qui a permis d'adapter facilement l'utilisation de nos installations aux besoins du développement de mes projets de recherche.

Dans le cadre du Laboratoire d'Optique Appliquée, je remercie tous les collègues pour le soutien qu'ils ont donné ici ou là à mon travail. Sans les efforts particuliers de Georges Grillon pour le montage des expériences, sans le savoir-faire de Pierre Breger et Pierre Agostini dans l'expérience de génération d'harmoniques et sans les améliorations des diagnostics apportées par Pascal Rousseau, cette thèse n'aurait pas les résultats qu'elle contient aujourd'hui. En particulier, je voudrais remercier Eric Nibbering avec qui j'ai commencé le travail sur les filaments et qui est resté jusqu'à la fin de la thèse un mentor avec ses conseils pour la rédaction des articles et de la thèse, même en étant impliqué dans des nouveaux projets de recherches à l'institut Max-Born à Berlin.

Enfin, à la base matérielle de mon séjour au Laboratoire d'Optique Appliquée se trouve le financement par la Commission Européenne sous forme d'une bourse "Marie-Curie" qui ne m'a pas seulement permis de travailler pendant ces trois années ici en France, mais qui m'a donné, dans sa conception généreuse, la possibilité de me former en participant à des conférences internationales et de faire des petites acquisitions pour l'opération quotidienne des expériences.

Moins évident, mais non moins important, ce travail de thèse était porté d'une grande ressource, ma famille et mes amis: le grand voyage avec Elayne C. Correa, la présence et l'encouragement de Marco Cavallari, Russel Evans, Silvia Venturini, le village global de Chung-Tao Hsieh, Olivier Albert, Sun-Lan Hsu, Yü-Sen, Alexandre Bourdin et Dominique Sorrel.

à mes parents

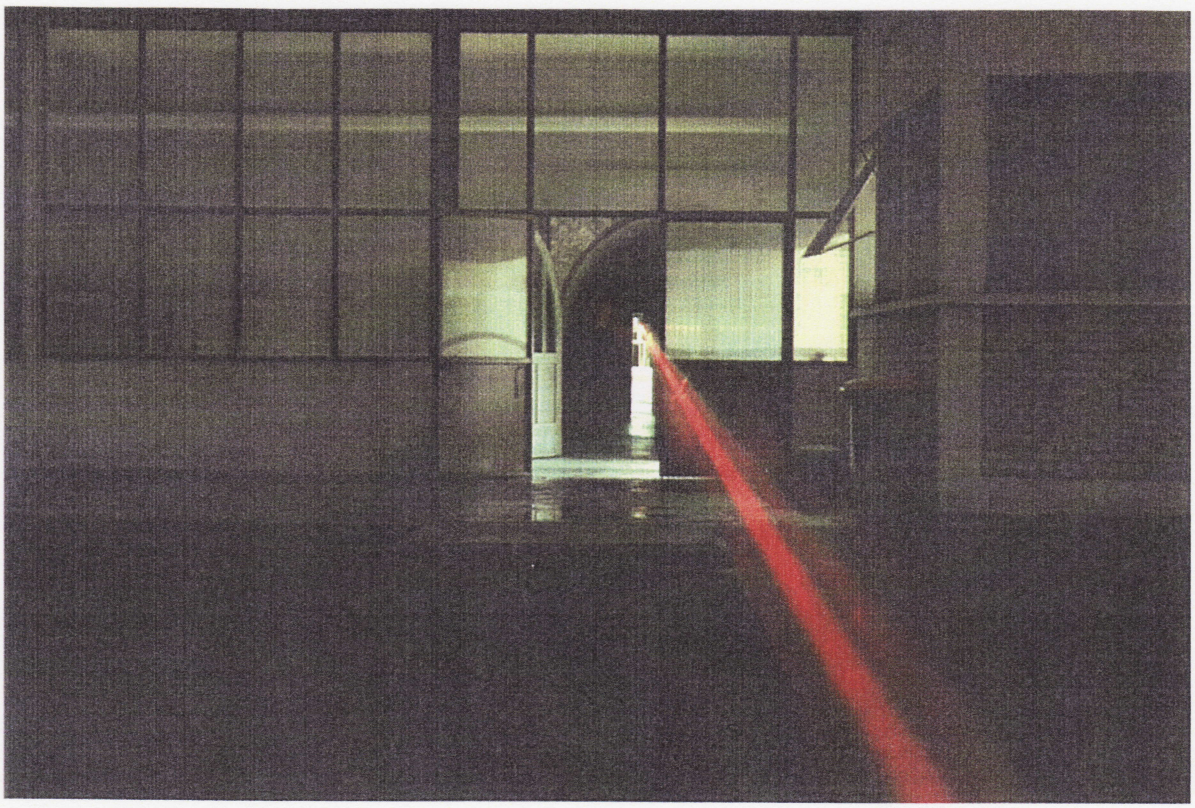
et

Rüdiger Singh Braich

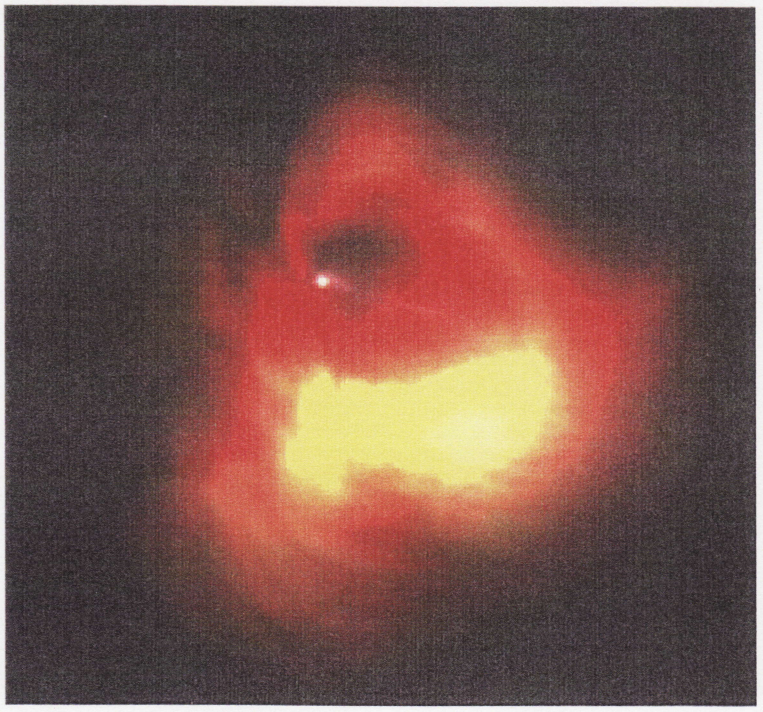
Folhas, veem as folhas
as imagems que guardei
Folhas secas, transparentes
que se ascendem e que passarão
dançando ao vento, à vida.

No ar ...

E.C.C. 1997



Propagation d'un faisceau laser intense dans l'air.



Mode autoguidé du faisceau laser intense après propagation sur une dizaine de mètres dans l'air.

1. Introduction générale

Dans l'optique non-linéaire, la lumière intense réagit sur elle-même au travers de la réponse du milieu. Cette réponse modifie durant la propagation de la lumière les propriétés de la lumière elle même dans ses aspects spectraux, temporels et spatiaux. Cette auto-interaction de la lumière avec la lumière par l'intermédiaire du milieu conduit à des effets inhabituels. Un premier exemple pour un tel effet, c'est l'apparition des nouvelles fréquences dans la génération des harmoniques. A partir d'une fréquence ω_0 du faisceau initial on peut observer après le passage dans un milieu non-linéaire adéquat une ou plusieurs fréquences nouvelles n ω_0 où n est un entier. Un deuxième exemple d'un effet spectaculaire de l'optique non-linéaire est l'auto-focalisation d'un faisceau laser intense. Dans l'auto-focalisation, la dépendance de l'indice de réfraction du milieu n=n(I) de l'intensité I conduit à une forte concentration de la lumière sur une petite dimension transversale.

Ce phénomène peut s'expliquer par analogie avec le changement de la phase d'onde que présente une lentille classique. Dans une lentille classique, la variation de la phase de l'onde est proportionnelle à l'épaisseur de matière traversée. La variation transverse de l'épaisseur provoque une courbure de la surface d'onde et le faisceau se focalise. Dans le cas d'un faisceau intense qui se propage dans un milieu non-linéaire l'intensité est maximale au centre du faisceau et faible dans la périphérie. Le profil d'indice de réfraction induit par le profil transverse de l'intensité est comparable à une lentille classique. Par conséquent, le faisceau se focalise lui-même et concentre son énergie sur l'axe de propagation. Cette concentration de l'énergie sur l'axe provoque de nouveaux effets non-linéaires comme par exemple l'ionisation. Le phénomène d'auto-focalisation est ensuite remplacé par une interaction complexe entre plusieurs effets non-linéaires. Sous certaines conditions, les actions de plusieurs effets non-linéaires se compensent et conduisent à un mode de propagation relativement stable appelé filament. Dans ce travail de thèse, nous allons étudier cette interaction entre l'auto-focalisation et l'ionisation et les modes de propagation qui en résultent.

Nous commençons par un bref historique de la recherche au sujet de l'auto-focalisation et de la filamentation. L'effet de base, le changement de l'indice de réfraction en fonction

de l'intensité d'un faisceau laser fut proposé par Askar'yan 1962 [1.1] et observé par Hercher en 1964 [1.2]. La possibilité d'un équilibre entre la diffraction et l'auto-focalisation - l'idée de l'autoguidage - est proposée par Chiao [1.3] pour expliquer les filaments observés dans les expériences. La filamentation a suscité un grand intérêt à partir des années 1970 quand le progrès dans le développement des laser permettait d'observer plus facilement le rétrécissement du profil spatial avec des laser nano- et picosecondes [1.4]. Les non-linéarités dans ce régime sont induites par les fortes énergies et dans les matériaux très non-linéaires. Les travaux théoriques de ce temps ont établi une théorie de l'auto-focalisation et de la filamentation comme le résume Marburger dans [1.5] et Shen dans [1.6]. Le concept du foyer translaté ("moving focus") et le collapse catastrophique tel que celui qui est observé dans [1.7] sont expliqués dans le cadre de ces travaux. Le phénomène d'auto-focalisation est bien compris. Par contre, la compréhension théorique du phénomène, en présence de l'ionisation dans les gaz ou en présence d'un collapse diélectrique dans les solides reste un problème ouvert.

Sur le plan expérimental, la mise en place des systèmes laser qui fournissent des impulsions à l'échelle femtoseconde [1.8] ont fait resurgir l'intérêt dans l'auto-focalisation. Avec ces nouvelles sources laser à haute puissance, l'air devient un milieu non-linéaire. L'interaction de la lumière avec l'air modifie l'impulsion initiale durant la propagation du laser vers la cible. A ce problème de contrôle de l'impulsion s'ajoute la particularité de la courte durée des impulsions femtosecondes. Si l'on réduit la durée des impulsions de quelques picosecondes à une centaine de femtosecondes, les effets non-linéaires changent dans leur nature. D'une part, la courte durée de l'impulsion apporte une simplification car elle limite dans le temps l'interaction entre champ laser et milieu: les effets temporels liés à l'interaction des particules (recombinaison des électrons et des ions) ou dissipatifs (thermiques ou de chocs) n'interviennent plus durant la durée de l'impulsion. D'autre part, la courte durée de l'impulsion nous donne accès à une nouvelle complexité. Une durée d'impulsion qui est courte devant le temps de réponse typique du milieu nous fournit avec une résolution temporelle qui nous permet de regarder la réponse rapide et complexe de la matière à l'impulsion laser. Pour donner un exemple, le couplage entre impulsion et modes rotationnels devient appréciable autour d'une centaine de femtosecondes pour une source à 800 nm [1.9]. L'impulsion couple à des modes de vibration à partir d'une trentaine de femtosecondes [1.10]. Dans la perspective de l'auto-guidage et de la filamentation, on attend, lié avec ce changement dans la nature

de la réponse non-linéaire en fonction de la durée des impulsion, aussi un changement dans la nature de la filamentation.

En parallèle avec ce progrès des sources lasers vers des impulsions courtes, le couplage non-linéaire entre plusieurs effets optiques a suscité de nouveau un grand intérêt dans plusieurs domaines de recherche: dans les solides, poussé par l'intérêt dans les communications par fibres optiques [1.11] et le développement des lasers [1.12], dans les plasmas en vu de la formation de canaux de lumière et de l'accélération des particules par les oscillations des champs électromagnétiques liés à ces impulsions très intenses [1.13]. Un sujet important dans ces études concerne le couplage spatio-temporel de la déformation de l'impulsion durant sa propagation. Dans les solides, où la dispersion est l'effet dominant de l'arrêt du collapse non-linéaire [1.14], la séparation d'une impulsion en une double impulsion est observée [1.15]. La dispersion amène à une augmentation de la puissance critique pour l'auto-focalisation [1.16].

Dans les gaz, l'observation des filaments, billes de lumière [1.17], a provoqué une série d'études afin d'explorer la possibilité d'un transport d'énergie par la lumière dans ces canaux auto-créés [1.18]. Braun et al [1.19] ont observé des filaments sur des distances de plusieurs dizaines de mètres. Un équilibre entre effet Kerr et ionisation a été évoqué comme explication de ces modes autoguidés stables. Dans ce contexte, une série d'expériences a été commencée au Laboratoire d'Optique Appliquée par Nibbering et al. [1.20] révélant l'émission conique qui accompagne la propagation d'un filament.

Dans ces études en pleine évolution, plusieurs questions restent ouvertes. Une question principale concerne l'interprétation de la stabilité de ces filaments dans le régime femtoseconde. Braun propose une compensation locale des changements d'indice induits par l'effet Kerr et l'ionisation quand Nibbering avance un modèle d'anti-guide (un profil d'indice inverse comparé à celui d'une fibre optique). Une autre question ouverte concerne la durée de l'impulsion dans les filaments. L'instabilité de la position transverse du filament et les fortes intensités rendent une analyse expérimentale difficile. Finalement, l'existence et le rôle d'un plasma dans ces filaments reste une controverse [1.21].

Dans la perspective de ces observations et au vu des questions ouvertes nous avons posé le sujet de cette thèse: autoguidage dans l'air d'impulsions ultracourtes. Comme le dit Corkum dans [1.22], pour comprendre l'interaction compétitive entre plusieurs effets

non-linéaires, il faut définir une série de cas tests relativement simples qui nous permettront de discerner la complexité de ces interactions non-linéaires. Nous avons choisi un milieu simple: l'air ou des gaz dilués, des intensités modestes et non relativistes, enfin un traitement du problème dans un modèle non dispersif. Les effets pris en compte dans l'analyse théorique de la propagation des impulsions femtosecondes dans l'air sont la diffraction, l'effet Kerr dans sa réponse instantanée et non-instantanée et l'ionisation. Les impulsions laser disponibles au Laboratoire d'Optique Appliquée, avec une durée d'une centaine de femtosecondes et une puissance de quelques 10^{11} Watt nous permettent de nous placer dans ces conditions du modèle théorique, avec une durée comparable aux temps de réponse non-instantanée de la non-linéarité.

Le titre, la nature de l'équation de propagation et les systèmes laser à disposition au Laboratoire d'Optique Appliquée définissent le cadre du plan de la thèse. Les trois concepts de base dans le titre - l'impulsion femtoseconde, l'effet Kerr et l'ionisation - sont rappelés dans le chapitre 2.

La structure de l'équation non-linéaire de propagation, en particulier sa singularité, représentée par le terme de l'effet Kerr, ne permet pas une solution générale et analytique du problème de la propagation non-linéaire. Pour cette raison, nous sommes forcés d'analyser la solution numériquement. Cette solution numérique de la propagation est développée dans le chapitre 3 avec l'établissement de l'équation paraxiale et sa transcription dans un schéma numérique. Dans le chapitre 4, les résultats obtenus avec ce code permettent d'établir une interprétation de la filamentation basée sur l'interaction de l'effet Kerr et l'ionisation durant la propagation de l'impulsion femtoseconde. Une fois les traits principaux des filaments établis, la partie expérimentale de cette thèse nous permet d'abord de vérifier les résultats numériques.

Le dispositif expérimental à disposition au laboratoire est décrit dans le chapitre 5. Au vu de la difficulté expérimentale rencontrée dans la caractérisation des filaments, deux améliorations sont apportées. Premièrement, une caractérisation complète de l'impulsion du laser est développée pour accroître le contrôle des conditions initiales des impulsions ultrabrèves et ultra-intenses. Deuxièmement, la filamentation est réalisée dans une nouvelle géométrie qui permet d'étudier l'autoguidage sur une distance de 2 m au lieu de 10 à 100 m comme décrit dans la littérature. La caractérisation des filaments obtenue avec ce dispositif expérimental amélioré est présentée dans le chapitre 5 et comparée avec nos résultats numériques et ceux publiés par allieurs. L'approche expérimentale

nous a permis également d'explorer le phénomène de l'autoguidage au-delà du modèle que nous avons développé numériquement: nous observons la génération des harmoniques (multiples entiers de la fréquence initiale).

Le chapitre 6 présente l'application des filaments pour la génération des harmoniques d'ordre élevées dans les gaz rares. Nous montrerons la faisabilité et une approche permettant d'augmenter le rendement des harmoniques générées par des filaments.

Nous terminons par une conclusion et un résumé de la thèse en anglais avec des références aux articles qui couvrent le sujet étudié.

[1.1] G.A. Askar'yan : *Effects of the gradient of a strong electromagnetic beam on electrons and atoms*, Sov. Phys. JETP **15**, 1088 (1962).

[1.2] M.A. Hercher : *Laser induced damage in transparent media*, J. Opt. Soc. Am. **54**, 563 (1964).

[1.3] R.Y. Chiao, E. Garmire, C.H. Townes: *Self-trapping of optical beams*, Phys. Rev. Lett. **13**, 479 (1964).

[1.4] W.L. Smith, in *CRC Handbook of Laser Science and Technology, Volume III: Optical Materials*, Part 1: Nonlinear Optical Properties / Radiation Damage, M.J. Weber, ed. CRC, Boca Raton, 259 (1986).

[1.5] J.H. Marburger : *Self-focusing : theory*, Prog. Quant. Electr. **4**, 35 (1975).

[1.6] Y.R.Shen : *The principles of nonlinear optics*, John Wiley&Sons, New York (1984).

[1.7] M.D. Feit and J.A. Fleck, Jr.: *Beam nonparaxiality, filament formation, and beam breakup in the self-focusing of optical beams*, J. Opt. Soc. Am. B **5**, 633 (1988).

[1.8] M.D. Perry and G. Mourou: *Terawatt to petawatt subpicosecond lasers*, Science **264**, 917 (1994).

[1.9] E.T.J. Nibbering, G. Grillon, M.A. Franco, B.S. Prade and A. Mysyrowicz: *Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N_2 and O_2 by the use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses*, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 650 (1997).

[1.10] C.J. Bardeen, Q. Wang and C.V. Shank: *Selective excitation of vibrational wave packet motion using chirped pulses*, Phys. Rev. Lett. **75**, 3410 (1995).

[1.11] G. P. Agrawal : *Nonlinear Fiber Optics*, Academic Press Inc., Boston (1989).

[1.12] I.P. Christov, H.C. Kapteyn, M.M. Murnane, C.-P. Huang, J. Zhou : *Space-time focusing of femtosecond pulses in a Ti:sapphire laser*, Opt. Lett. **20**, 309 (1995).

[1.13] D. Umstadter, S.Y. Chen, A. Maksimchuk, G. Mourou, R. Wagner: *Nonlinear optics in relativistic plasmas and laser wake field acceleration of electrons*, Science **273**, 472 (1996).

[1.14] P. Chernev and V. Petrov: *Self-focusing of light pulses in the presence of normal group-velocity dispersion*, Opt. Lett. **17**, 172 (1992).

[1.15] J.E. Rothenberg: *Pulse splitting during self-focusing in normally dispersive media*, Opt. Lett. **17**, 583 (1982).

[1.16] G.G. Luther, J.V. Moloney, A.C. Newell : *Self-focusing threshold in normally dispersive media*, Opt. Lett. **19**, 862 (1994).

[1.17] Y . Silberberg : *Collapse of optical pulses*, Opt. Lett. **15**, 1282 (1982).

[1.18] R. Rankin, C.E. Capjack, N.H. Burnett, P.B Corkum : *Refraction effects associated with multiphoton ionization and ultrashort-pulse laser propagation in plasma waveguides*, Opt. Lett. **16**, 835 (1991).

[1.19] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou: *Self-channelling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air*, Opt. Lett. **20**, 73 (1995).

[1.20] E. T. J. Nibbering, P. F. Curley, G. Grillon, B. S. Prade, M. A. Franco, F. Salin, and A. Mysyrowicz: *Conical emission from self-guided femtosecond laser pulses in air,* Opt. Lett. **21**, 62 (1996).

[1.21] H. Nishioka, W. Odajima, K.I. Ueda and H. Takuma : *Ultrabroad band flat continuum generation in multichannel propagation of terrawatt Ti :sapphire laser pulses*, Opt. Lett. **20**, 2505 (1995).

[1.22] D. Strickland and P. B. Corkum: *Resistance to self-focusing*, J. Opt. Soc. Am. B 11, 492 (1994).

2. Concepts de base

2.1 Représentation d'une impulsion lumineuse

Nous allons d'abord définir mathématiquement une impulsion optique femtoseconde. Cette impulsion est complètement caractérisée par le champ électrique qui est une grandeur complexe $\mathcal{E}(t,\vec{r})$ définie par son module $|\mathcal{E}(t,\vec{r})|$ et sa phase $\theta(t,r) = \arg(\mathcal{E}(t,\vec{r}))$ où t représente le temps et r est un point de l'espace. Une impulsion de forme temporelle quelconque peut être construite par une somme infinie de composantes spectrales $\tilde{E}(\omega,r)$, c'est-à-dire par une transformation de Fourier:

$$\mathcal{E}(t,\vec{r}) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}\tilde{E}(\omega,\vec{r})\exp(-i\omega t)d\omega \tag{2.1}$$

Dans ce résumé nous considérons des impulsions avec une extension finie en temps et fréquence. La distribution spectrale d'une telle impulsion est concentrée autour d'une fréquence centrale ω_0, la porteuse. Pour les impulsions d'une durée supérieure à la période optique de la porteuse, il est commode de factoriser le terme $\exp(i\omega_0 t)$. On obtient alors:

$$\mathcal{E}(t,\vec{r}) = \frac{1}{2}|\mathrm{E}(t,\vec{r})|\exp(i\phi(t,\vec{r}))\exp(-i\omega_0 t) + c.c. \tag{2.2}$$

Le premier terme décrit l'évolution de l'enveloppe de l'impulsion. Nous décrivons dans la suite uniquement la variation temporelle lente de l'enveloppe, sans retenir l'oscillation rapide de la porteuse. Pour simplifier la notation nous ne retenons pas explicitement la dépendance de la variable d'espace $\vec{r}$ et notons $\mathrm{E}(t,\vec{r}) = \mathrm{E}(t)$. La figure 2.1 a) montre l'enveloppe d'une impulsion et la porteuse. Le module du champ

complexe décrit le profil temporel de l'impulsion. La variation de l'espacement entre les oscillations de la porteuse représente une phase temporelle non nulle.

En pratique, une approximation analytique du module d'une impulsion laser est donnée par une gaussienne ou par une fonction sécante hyperbolique :

$$|E(t)| = E_0 \exp(-2(t/\Delta T_{1/e})^2) \qquad \text{pour une gaussienne}$$

$$|E(t)| = E_0 \operatorname{sech}(t/\Delta T_s) \qquad \text{pour une sécante hyperbolique}$$

La durée de l'impulsion calculée à mi-largeur en intensité est $\Delta T_{1/2} = \Delta T_{1/e}\sqrt{0{,}5 \cdot \ln 2} = \Delta T_{1/e} \cdot 0{,}588$ pour une gaussienne et $\Delta T_{1/2} = \Delta T_s \cdot 1.76$ pour une sécante hyperbolique (la « Full Width at Half Maximum » FWHM). La forme gaussienne a, dans les ailes une décroissance plus rapide de l'intensité que la sécante hyperbolique.

Des impulsions gaussiennes et sécantes hyperboliques de même durée à mi-hauteur sont présentées dans la Figure 2.1 b).

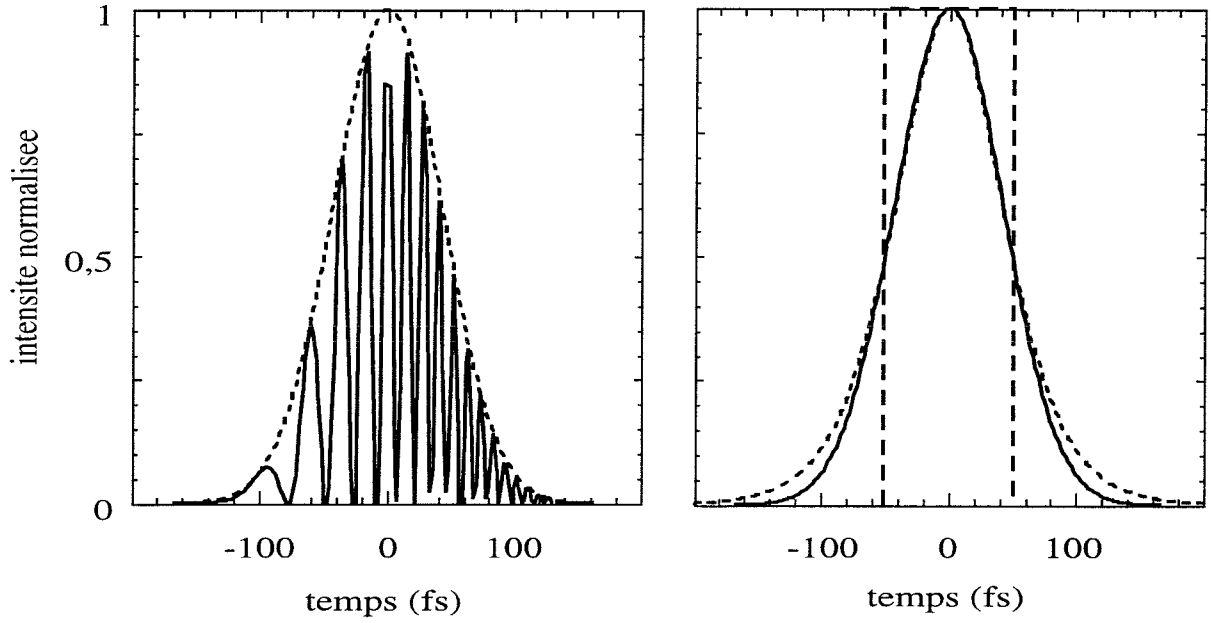


Figure 2.1: Description analytique d'une impulsion. a) Enveloppe et porteuse de l'intensité d'une impulsion avec une phase temporelle qui module la fréquence sous l'enveloppe. b) Comparaison de l'enveloppe gaussienne (trait continu) et sécante hyperbolique (trait pointillé) pour la même durée à mi-hauteur de 100 fs.

Expérimentalement, les systèmes laser utilisés dans cette étude produisent des impulsions qui sont mieux décrites par une sécante hyperbolique [2.1]. Cette fonction correspond en fait à la solution analytique de l'équation de propagation d'une impulsion dans un milieu amplificateur et non-linéaire tel que le cristal titane-saphir qui est à l'origine du rayonnement laser que nous utilisons.

Une impulsion est souvent considérée comme optimale lorsque toutes ses composantes spectrales sont en phase - ce qui est exprimé par la phase spectrale de l'impulsion $\psi(\omega)=0$. Dans ce cas, le degré de compression est donnée par le « band-width-product » $\Delta T_{1/2}\Delta\Omega_{1/2} = 2\pi c_0$. La valeur de c_0 dépend de la forme temporelle de l'impulsion (c_0= 0.441 pour une gaussienne, c_0=0.315 pour une sécante hyperbolique).
La phase temporelle $\phi(t)$ d'une impulsion de lumière est décrite en pratique par un développement polynômial :

$$\phi(t) = \phi_0 + \frac{d\phi(t_0)}{dt}(t-t_0) + \frac{1}{2}\frac{d^2\phi(t_0)}{dt^2}(t-t_0)^2 + \frac{1}{6}\frac{d^3\phi(t_0)}{dt^3}(t-t_0)^3 + \frac{1}{24}\frac{d^4\phi(t_0)}{dt^4}(t-t_0)^4 + \ldots$$

Le coefficient ϕ_0 qui est une constante arbitraire sera mis à zéro. Un choix adéquat de la fréquence porteuse ω_0 permet d'annuler le second terme du développement. Nous obtenons ainsi comme description de la phase:

$$\phi(t) = \frac{1}{2}\frac{d^2\phi}{dt^2}(t-t_0)^2 + \frac{1}{6}\frac{d^3\phi}{dt^3}(t-t_0)^3 + \frac{1}{24}\frac{d^4\phi}{dt^4}(t-t_0)^4 + \ldots \qquad (2.3)$$

Un développement correspondant est utilisé pour la phase spectrale :

$$\psi(\omega) = \frac{1}{2}\frac{d^2\psi}{d\omega^2}(\omega-\omega_0)^2 + \frac{1}{6}\frac{d^3\psi}{d\omega^3}(\omega-\omega_0)^3 + \frac{1}{24}\frac{d^4\psi}{d\omega^4}(\omega-\omega_0)^4 + \ldots \qquad (2.4)$$

La phase d'une impulsion est souvent décrite dans la littérature par sa dérivée temporelle appelée le glissement de fréquence ("chirp" en anglais). A une phase d'ordre n, correspond un glissement de fréquence d'ordre (n-1): $\Delta\omega^{(n-1)} = d^n\phi/dt^n$.

Après avoir établi la description de la forme de l'impulsion par l'enveloppe et sa phase, nous nous intéressons maintenant à la valeur absolue du champ électrique d'une impulsion. L'intensité du champ électrique décrit la concentration de l'énergie de l'impulsion dans l'espace et dans le temps et est proportionnelle au carré du champ électrique:

$$I(t) = \frac{1}{2}\varepsilon_0 cnE(t)E^*(t)$$

où n est l'indice de réfraction et c est la vitesse de la lumière. Une intégration sur la surface S du faisceau donne la puissance d'une impulsion. La puissance est utilisée pour la description des impulsions indépendamment de leur extension spatiale, par exemple pour caractériser des systèmes laser ou le pouvoir d'auto-focalisation d'une impulsion. La puissance est donnée par (avec dS un élément de la surface):

$$P(t) = \int dS\ I(t)$$

L'énergie d'une impulsion est donnée par l'intégration de la puissance dans le temps :

$$\mathbf{W} = \int_{-\infty}^{\infty} dt\ P(t).$$

Dans la pratique, une estimation de l'intensité, appelée dans la suite intensité crête, est donnée par l'expression $I_0=\mathbf{W}/(\pi r^2 \Delta T_{1/2})$,. Le champ électrique en fonction de l'intensité est donné par $E_0(V/m) = 2.74\cdot 10^3\sqrt{I_0(W/cm^2)}$. Un laser de $\mathbf{W}$=30mJ, $\Delta T_{1/2}$=120fs et r=10mm donne une intensité initiale de $I_0 = 7{,}95\cdot 10^{10} W/cm^2$ soit

un champ $E_0 = 7{,}73 \cdot 10^8 V/m$. Focalisée dans une tache de rayon r =10μm, l'intensité atteint $I_0 = 7{,}95 \cdot 10^{16} W/cm^2$ soit un champ $E_0 = 7{,}73 \cdot 10^{11} V/m$. L'intensité du champ électrique caractéristique dans la première orbite de Bohr est donnée par $E_{at} = 5{,}142 \cdot 10^{11} V/m$.

Remarquons qu'il ne suffit pas de caractériser une impulsion par son intensité crête; un critère important intervenant dans de nombreuses expériences est le contraste de l'impulsion. Pour donner un exemple, si une expérience exige des intensités crêtes très élevées comme dans les expériences relativistes, il ne faut pas seulement obtenir l'intensité crête requise au maximum de l'impulsion, mais il faut également vérifier la bonne qualité du profil temporel et notamment éviter des pré-impulsions qui peuvent, même pour un contraste de 10^{-8}, complètement transformer le milieu cible avant que le maximum de l'impulsion interagisse avec celui-ci.

2.2 Description de l'effet Kerr optique

On s'intéresse à la réponse non-linéaire introduite à la fréquence ω par un champ de même fréquence ω. Dans l'approximation dipolaire la polarisation est en général donnée par

$$\mathbf{P}(\vec{r},t) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{R}(t-t') \cdot E(\vec{r}',t')dt' \tag{2.8}$$

où **R** est un tenseur. On admet implicitement une réponse locale du milieu. Nous nous limitons ici à une polarisation localisée qui ne dépend pas de l'espace mais uniquement du temps.

Nous traiterons la non-linéarité dans une approche perturbative en développant la polarisation en série de puissances du champ électrique. La polarisation **P** s'écrit ainsi :

$$\mathbf{P}(\vec{r},t)=\int_{-\infty}^{\infty}\chi^{(1)}(\vec{r},t-t')\cdot E(\vec{r},t')dt'+\int_{-\infty}^{\infty}\chi^{(2)}(\vec{r},t-t_1',t-t_2'):E(\vec{r},t_1')E(\vec{r},t_2')dt_1'dt_2'\ +$$

$$+\int_{-\infty}^{\infty}\chi^{(3)}(\vec{r},t-t_1',t-t_2',t-t_3'):E(\vec{r},t_1')E(\vec{r},t_2')E(\vec{r},t_3')dt_1'dt_2'dt_3'\ +\ \ldots$$

où $\chi^{(1)}(\vec{r},t)$ donne la contribution linéaire de la polarisation et les termes en $\chi^{(n)}(\vec{r},t)$, avec n>1 donnent les termes non-linéaires de la susceptibilité. A la condition que le champ puisse être décomposé dans des ondes monochromatiques à la fréquence ω_i $E(\vec{r},t)=\sum_i E(\omega_i,\vec{k}_i)$. Nous obtenons les polarisations d'ordre n pour chaque onde monochromatique comme :

$$\mathbf{P}^{(1)}(\vec{k},\omega)=\chi^{(1)}(\vec{k},\omega)\cdot E(\vec{k},\omega)$$
$$\mathbf{P}^{(2)}(\vec{k},\omega)=\chi^{(2)}(\vec{k}=\vec{k}_i+\vec{k}_j,\omega=\omega_i+\omega_j):E(\vec{k}_i,\omega_i)E(\vec{k}_j,\omega_j)$$
$$\mathbf{P}^{(3)}(\vec{k},\omega)=\chi^{(3)}(\vec{k}=\vec{k}_i+\vec{k}_j+\vec{k}_l,\omega=\omega_i+\omega_j+\omega_l):E(\vec{k}_i,\omega_i)E(\vec{k}_j,\omega_j)E(\vec{k}_l,\omega_l)$$
$$\ldots$$

Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéressons à l'effet Kerr dans un gaz. Dans l'effet Kerr pur, la polarisation s'écrit $\mathbf{P}=\mathbf{P}_{lin}+\mathbf{P}^{Kerr}$ avec la contribution de la non-linéarité Kerr $\mathbf{P}^{Kerr}$:

$$\mathbf{P}^{Kerr}(\vec{r},t)=\varepsilon_0\,\chi^{(3)}(\vec{k},\omega)\cdot\mathcal{E}(\vec{r},t)\mathcal{E}(\vec{r},t)\mathcal{E}(\vec{r},t)$$

$$=\ 3\,\varepsilon_0\,\chi^{(3)}(\omega;-\omega;\omega;)\cdot|E(\vec{r},t)|^2E(\vec{r},t) \qquad (2.9)$$

Cette non-linéarité entrera par l'intermédiaire d'une contribution non-linéaire dans l'indice de réfraction de l'équation de propagation, que nous examinerons dans le chapitre 3. L'indice de réfraction est lié à la polarisation par la constante diélectrique $\varepsilon\ (\vec{k},\omega)=n^2$. Au lieu de l'indice linéaire $n_0=\sqrt{\varepsilon}=\sqrt{1+\chi^{(1)}}$ on définit un indice de

réfraction effectif $n=n_0+\Delta n$. Dans l'approximation perturbative, la variation non-linéaire de l'indice est petite devant l'indice linéaire et Δn peut être approximé par

$$n = n_0 + \frac{3\chi^{(3)}(\omega,-\omega,\omega)}{8n_0}|E(t)|^2 = n_0 + n_2|E(t)|^2 \tag{2.9}$$

La contribution d'un milieu gazeux à l'effet Kerr optique comprend en général deux contributions: une réponse instantanée due aux électrons (temps de réponse caractéristique de l'ordre de 10^{-15} s) et une réponse d'origine nucléaire plus lente. A cause de la masse de trois ordres de grandeur plus élevée que celle des électrons, le temps de réponse caractéristique des molécules est plus grand que celui des électrons. Dans le cadre de cette thèse nous décrivons les deux contributions instantanée et non-instantanée par [2.4]:

réponse instantanée: $\boxed{\Delta n(\mathrm{I})=n_{2,i}\mathrm{I}(t)}$ (2.10 a)

réponse non-instantanée: $\boxed{\Delta n(I,t) = n_{2,R}\int_{-\infty}^{t} |\mathrm{E}(t')|^2 R(t-t')dt'}$ (2.10 b)

où $n_{2,i}$ et $n_{2,R}$ sont les coefficients de la non-linéarité Kerr instantanée et non-instantanée. La fonction R(t') décrit la réponse temporelle du milieu. En première approximation, cette contribution des molécules peut être modélisée par une exponentielle:

$$\Delta n(I,t) = \frac{n_{2,R}}{\tau}\int_{-\infty}^{t} |\mathrm{E}(t')|^2 \exp\left[-\frac{(t-t')}{\tau}\right]dt' \tag{2.11}$$

avec un temps de réponse caractéristique τ estimé à 70 fs pour une impulsion de 100 fs dans l'air. L'impulsion et la fonction de réponse du milieu sont illustrées dans la Figure 2.2.

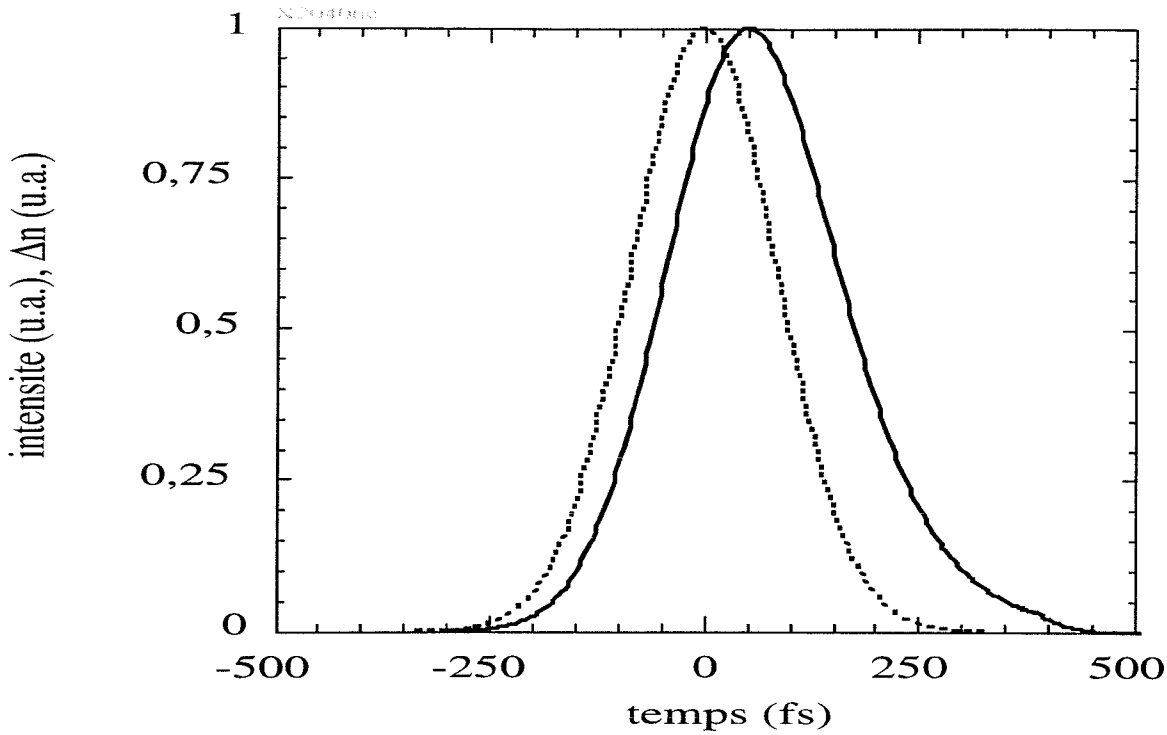


Figure 2.2: Illustration de la dynamique temporelle de la réponse Kerr non-instantanée: impulsion normalisée (trait pointillé) et contribution non-linéaire à l'indice (trait continu).

Une analyse plus détaillée de cette réponse non-instantanée révèle une situation plus complexe: l'excitation d'un nombre fini d'états cohérents du milieu en interaction avec le champ laser [2.5]. A la base de cette réponse se trouve le couplage du champ électrique aux modes de rotation des molécules par effet Raman. L'effet Raman dépend de la largeur spectrale de l'impulsion et donc de sa durée. Une impulsion d'une largeur spectrale donnée couple un grand nombre de niveaux de rotation au moment du passage dans le milieu et les met en phase. A cause des fréquences de rotation différentes pour chaque niveau de rotation, l'ensemble des molécules se déphase après disparition du champ laser et la polarisation non-linéaire disparaît. Cependant, après un temps caractéristique pour chaque molécule de l'ordre de quelques picosecondes après le passage de l'impulsion la polarisation non-linéaire resurgit quand les états de rotation se remettent de nouveau en phase. Ce phénomène périodique disparaît après un temps donné par le déphasage introduit par exemple par des collisions ou par le dépeuplement des états de rotation par des transitions optiques [2.6]. Avec des impulsions de 25 fs une réponse non-instantanée apparaît par le couplage de l'onde du laser aux niveaux de vibration des molécules [2.7].

2.3 Description de l'ionisation multiphotonique

Dans l'interaction d'une impulsion et d'un gaz, il existe une deuxième réponse non-linéaire du milieu. Cette contribution a comme origine l'ionisation multiphotonique. Cette interaction du champ laser avec le milieu ionisé conduit à une nouvelle contribution à l'indice de réfraction qui peut s'écrire [2.8]:

$$\boxed{\Delta n_{el} = n - 1 = \sqrt{1 - \left(\frac{\omega_{pl}}{\omega_0}\right)^2} - 1 = -\frac{1}{2}\left(\frac{\omega_{pl}}{\omega_0}\right)^2 + \frac{1}{8}\left(\frac{\omega_{pl}}{\omega_0}\right)^4 - \ldots} \qquad (2.12)$$

La fréquence du plasma $\omega_{pl}^2 = N_e e^2 / m_e \varepsilon_0$ est une fonction de la densité électronique N_e qui elle-même dépend du champ laser $N_e(I)$. Pour les plasmas sous-denses rencontrés dans cette étude, nous utiliserons le second terme du développement de l'équation (2.12) $\Delta n_{el} = -\omega_{pl}^2 / 2\omega_0^2 = N_e / 2N_c$ car $\omega_{pl} / \omega_0 = 10^{-3} << 1$. La densité critique du plasma est $N_c = \omega_0^2 m_e \varepsilon_0 / e^2 = 1{,}75 \cdot 10^{21} cm^{-3}$.

Une description de cette contribution à l'indice de réfraction nécessite la connaissance de la densité des électrons. La densité électronique N_e est la solution d'un système d'équations qui décrivent l'évolution de la population des électrons libres $N_1(t)$ et des électrons liés $N_0(t)$. Avec comme condition initiale $N_0(0)=N_{00}$:

$$\frac{dN_0}{dt} = -w_{ion}(t) N_0$$
$$\frac{dN_1}{dt} = +w_{ion}(t) N_0$$
$$N_0(t) + N_1(t) = N_{00}(t = 0)$$

où $w_{ion}(t)$ est le taux d'ionisation. Après intégration on obtient le nombre d'électrons libres en fonction du temps :

$$N_1(t) = N_{00}(t=0)\left(1 - \exp\left(-\int_{-\infty}^{t} w_{ion}(t')dt'\right)\right)$$

Le modèle peut être élargi pour rendre compte également de la multiple ionisation comme rapporté par Kandidov et al. [2.9] pour les gaz rares.

Le calcul du taux d'ionisation $w_{ion}(t)$ se base sur un modèle d'interaction du champ laser avec l'atome unique. L'extrême brièveté des impulsions femtosecondes permet d'observer uniquement la libération des électrons par le champ [2.10] et de négliger les phénomènes de transport des électrons qui ont lieu sur une échelle temporelle de plusieurs picosecondes pour les champs laser considérés dans cette étude. Nous négligeons dans le cadre de cette thèse l'ionisation par collision [2.9]. Pour des densités élevées, pour les champs très intenses ou des impulsions plus longues, cette simplification n'est plus valable. Nous décrivons l'ionisation par deux modèles. A faible intensité, le modèle dit "multiphotonique" est suffisant [2.11]. Pour des intensités au-dessus de 10^{14} W/cm^2 nous remplaçons ce modèle par le modèle de l'effet tunnel [2.12].

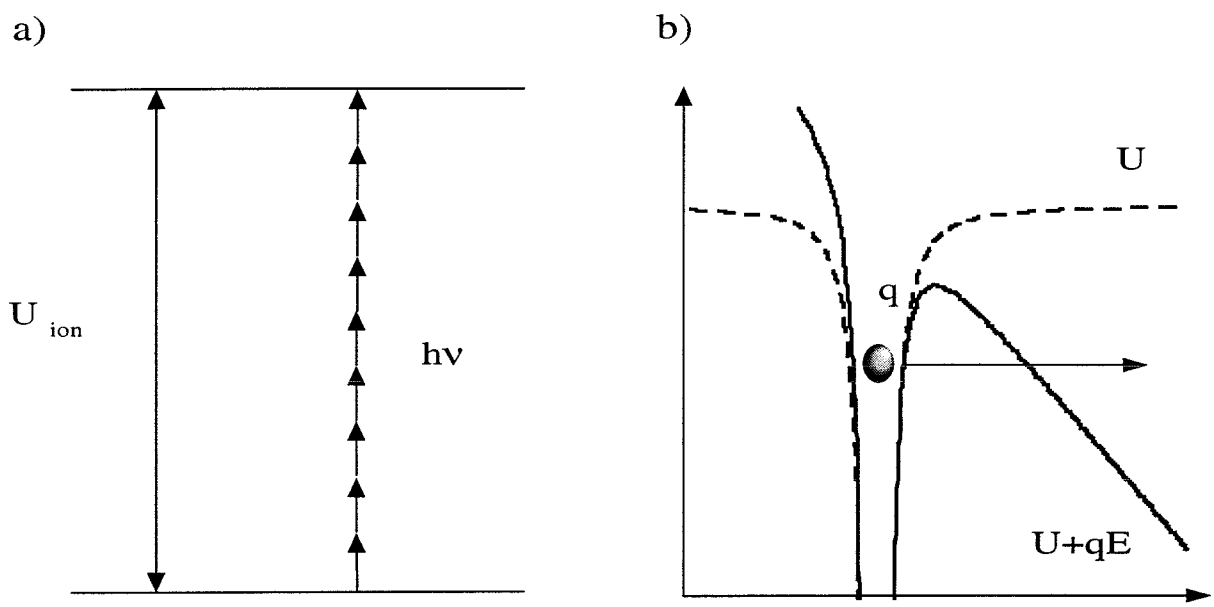


Figure 2.3: Illustration de a) l'ionisation multiphotonique et b) l'ionisation par le champ.

Modèle multiphotonique

L'ionisation multiphotonique est illustrée par la Figure 2.3 a), on a représenté l'état fondamental et l'état final correspondant au continuum d'ionisation. Un nombre de photons $p = eU_{ion} / h\nu$ fournit l'énergie nécessaire pour ioniser un atome avec un potentiel d'ionisation U_{ion}. Dans l'approximation perturbative, le taux d'ionisation est donné par $w_k = \sigma_{pk} I^p$. La variation de l'indice de réfraction correspondant est donnée par :

$$\Delta n(r,t) = \alpha \int_{-\infty}^{t} I(t')^p dt' \tag{2.13}$$

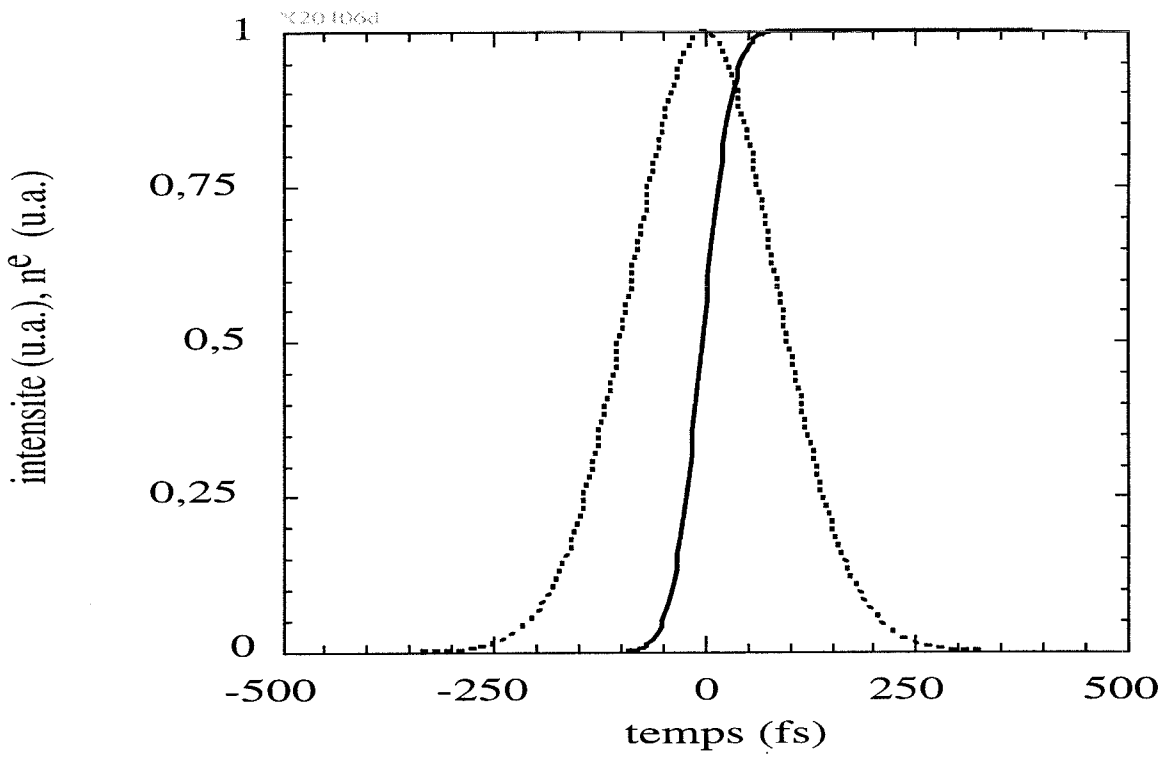


Figure 2.4: Réponse d'un milieu ionisable induite par une impulsion de 100 fs en fonction du temps - variation de la densité électronique. La variation de l'indice est proportionnelle à la variation de la densité électronique, changée de signe.

Les milieux ionisables sont caractérisés par les constantes p et α, pour le xénon p égale 8, pour l'air p égale 10 à 800 nm. La constante α est déterminée par un raccord entre le modèle multiphotonique et le modèle tunnel, comme nous le présenterons dans le paragraphe suivant. Comme le montre l'équation (2.12), la constante α est négative. La variation de l'indice de réfraction est proportionnelle à la variation de la densité des électrons changée de signe. Pour illustrer la dynamique temporelle de la réponse du

milieu ionisable, la variation de la densité des électrons est montrée dans la Figure 2.4 ainsi que le profil temporel de l'impulsion pour les conditions de l'air.

Modèle tunnel

Le principe de l'ionisation tunnel est illustré sur la Figure 2.3 b) pour un modèle unidimensionnel simplifié. En l'absence du champ laser, le potentiel de l'électron dans le champ du noyau a la forme en trait pointillé. La probabilité d'ionisation est proportionnelle à la largeur de la barrière du potentiel. En absence du champ cette largeur est infinie pour un atome unique et l'électron est lié de façon permanente au noyau. Le champ laser qui peut être considéré comme constant sur l'échelle atomique (800 nm comparé à 0.1 nm) abaisse la barrière de potentiel et diminue sa largeur. La probabilité d'échappement d'un électron par effet tunnel augmente et le taux d'ionisation devient plus important. Quantitativement, le taux d'ionisation en fonction du champ électrique est donné par [2.13]:

$$w_k = \left[\frac{3}{\pi} \left(\frac{U_{ion}}{U_H} \right)^{3/2} \frac{E}{E_{at}} \right]^{1/2} w_{i,k}(E)$$

$$w_{i,k}(E) = \frac{\omega_{at}}{2} C_n^2 \frac{U_{ion}}{U_H} \left[2 \left(\frac{U_{ion}}{U_H} \right)^{3/2} \frac{E}{E_{at}} \right]^{2n-1} \exp\left[-\frac{3}{2} \left(\frac{U_{ion}}{U_H} \right)^{3/2} \frac{E}{E_{at}} \right]$$

avec $n^* = Z\sqrt{\frac{U_H}{U_{ion}}}$, $C_{n^*} = \left(\frac{2e}{n^*} \right)^{n^*} \frac{1}{\sqrt{2\pi n^*}}$, ici e=2.718 est la constante de Euler, U_H=13.6 eV le potentiel d'ionisation de l'hydrogène, E_{at}=5.142 10^{11} V/m le champ électrique sur le premier orbite de Bohr et Z la charge de l'ion.

Les deux modèles d'ionisation - multiphotonique et tunnel - s'appliquent à deux régimes d'intensité différents. La distinction entre ces deux régimes est décrite par le paramètre de Keldish $\Gamma = \left[\frac{U_{ion}}{2V} \right]^{1/2}$. U_{ion} est le potentiel d'ionisation de l'atome considéré et

$V = eE^2/m_e\omega_0^2 = 10^{13} I_{laser}[W/cm^2]\lambda^2[\mu m]$ est l'énergie cinétique d'un électron libre accéléré par l'oscillation du champ laser.

Pour $\Gamma > 1$ le régime multiphotonique est dominant et on observe une faible ionisation, pour $\Gamma < 1$ le régime tunnel est dominant et le degré de l'ionisation du milieu est plus élevé qu'en régime multiphotonique. Pour une longueur d'onde de 800 nm et un potentiel d'ionisation de 14 eV (15,6 eV pour l'azote et 12,2 eV pour l'oxygène) pour l'air, le premier régime correspond à des intensités inférieures à 10^{14} W/cm^2, le deuxième régime à des intensités supérieures à 10^{14} W/cm^2. Dans la suite nous considérons l'intensité $I_{ion}=10^{14}$ W/cm^2 comme une intensité seuil pour l'ionisation. La condition de continuité du taux d'ionisation dans cette transition entre l'ionisation multiphotonique et l'ionisation tunnel en fonction de l'intensité donne le coefficient σ_{pk} et donc la constante α du modèle multiphotonique.

Les modèles permettant de décrire l'impulsion, ainsi que l'effet Kerr et l'ionisation multiphotonique en termes de constantes optiques. Pour l'étude de la propagation non-linéaire, nous allons introduire dans le chapitre suivant l'équation de propagation qui nous permettra d'analyser l'interaction entre l'impulsion et le milieu non-linéaire et la rétroaction du milieu sur l'impulsion par l'effet Kerr et l'ionisation. A cause du signe négatif du changement de l'indice, l'ionisation est intéressante pour les phénomènes d'autoguidage. Elle peut, du moins en principe, compenser l'indice introduit par l'effet Kerr et par conséquent équilibrer l'auto-focalisation.

[2.1] M.A. Blain, G. Bonnaud, A. Chiron, G. Riazuelo: *Autofocalisation et filamentation d'un faisceau laser dans le cadre de l'approximation paraxiale et stationnaire*, Rapport CEA-R-5716(I), Commissariat à l'Energie Atomique, Saclay France (1996).

[2.2] Y.R.Shen : *The principles of nonlinear optics*, John Wiley&Sons, New York (1984).

[2.3] R. Hellwarth, J. Cherlow, T.T. Yang : *Origin and frequency dependence of nonlinear optical susceptibilities of glasses*, Phys. Rev. B **11**, 964 (1975).

[2.4] Y.R.Shen : *The principles of nonlinear optics*, John Wiley & Sons, New York (1984); p. 319.

[2.5] E.T.J. Nibbering, G. Grillon, M.A. Franco, B.S. Prade and A. Mysyrowicz: *Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N_2 and O_2 by the use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses*, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 650 (1997).

[2.6] J.-F. Ripoche, G. Grillon, B. Prade, M. Franco, E. Nibbering, R. Lange, A. Mysyrowicz: *Determination of the time dependence of n_2 in air*, Opt. Comm. **135**, 310 (1997).

[2.7] C.J. Bardeen, Q. Wang and C.V. Shank: *Selective excitation of vibrational wave packet motion using chirped pulses*, Phys. Rev. Lett. **75**, 3410 (1995).

[2.8] N. Peygambarian, S.W. Koch, A. Mysyrowicz: *Introduction to semiconductor optics*, Prentice Hall, Englewood Cliffs (1993).

[2.9] V.P. Kandidov, O.G.Kosareva, S.A. Shlenov : *Influence of transient self-defocusing on the propagation of high-power femtosecond laser pulses in gases under ionisation conditions*, Quantum Electronics **24**, 905 (1994).

[2.10] W.M. Wood, G.B. Focht and M.C. Downer : *Tight focusing and blue shifting of millijoule femtosecond pulses from a conical axicon amplifier*, Opt. Lett. **13**, 984 (1984).

[2.11] H.G. Muller, P. Agostini and G. Petite: *Multiphoton ionization*, in: Milhai Gavrila (editeur): *Atoms in Intense Laser Fields*, Academic Press Inc., New York (1992).

[2.12] L.V.L Keldysh: *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*, Soviet Phys. JETP **20**, 1307 (1964); M.V. Ammosov, N.B. Delone and V.P. Krainov: *Tunnel ionzation of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field*, Soviet Phys. JETP **64**, 1191 (1986).

[2.13] S. Augst, D.D Meyerhofer, D. Strickland and S.L. Chin: *Laser ionization of noble gases by Coulomb-barrier suppression*, J. Opt. Soc. Am. B **8**, 858 (1991).

3. Théorie de la propagation non-linéaire en présence d'effet Kerr et d'ionisation

Même en ne considérant que ces deux effets, la propagation de la lumière dans un milieu est très complexe. Ce chapitre sert à introduire l'équation de propagation en soulignant les approximations faites et à décrire une méthode numérique permettant le calcul des solutions. Nous insérerons la réponse non-linéaire du milieu comme une perturbation faible dans l'équation de propagation linéaire. On se limitera à une description macroscopique de l'interaction du champ laser avec le milieu: l'effet Kerr et l'ionisation interviennent sous forme de constantes optiques dans le calcul de la propagation.

3.1 Equation de propagation

La description de la propagation d'une impulsion électromagnétique part des équations de Maxwell :

$$\nabla \times \vec{\mathcal{E}} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$$

$$\nabla \times \vec{H} = \vec{J} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$$

$$\nabla . \vec{D} = \rho \quad ; \quad \nabla . \vec{B} = 0$$

et de l'équation de conservation des charges libres

$$\nabla . \vec{J} + \frac{\partial \rho}{\partial t} = 0$$

La réponse du milieu au champ électromagnétique est exprimée dans le cadre de l'approximation dipolaire par :

$$\vec{D} = \varepsilon\, \varepsilon_0 \vec{\mathcal{E}} = \varepsilon_0 \vec{\mathcal{E}} + \vec{P} \tag{3.1}$$

$$\vec{H} = \mu_0 \vec{H} + \vec{M}$$

Nous considérons pour la suite que la magnétisation est nulle. Les charges libres peuvent être exprimées en fonction de la polarisation par:

$$\vec{J} = \vec{J}_0 - \frac{\partial \vec{P}}{\partial t}\ , \quad \rho = \rho_0 + \nabla . \vec{P}$$

Nous arrivons ainsi à l'équation qui lie la propagation d'un champ électromagnétique à une réponse du milieu exprimée par le vecteur de la polarisation P:

$$\nabla \times \left(\nabla \times \vec{\mathcal{E}}\right) + \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 \vec{\mathcal{E}}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \tag{3.2}$$

3.2 Approximations dans l'équation de propagation

Pour l'étude d'un phénomène non-linéaire il est important de déterminer son poids relatif par rapport aux termes de l'équation de propagation. Les approximations servent à adapter la complexité de l'équation de propagation aux conditions du cas étudié et à rendre plus clair l'interaction entre les termes qui restent. Pour décrire l'auto-focalisation des impulsions femtosecondes, nous faisons une série d'approximations qui sont exposées dans les paragraphes suivants :

- la divergence du champ électrique est nulle et le champ est considéré comme scalaire
- la propagation est paraxiale
- l'enveloppe temporelle varie lentement devant la fréquence de la porteuse
- les effets de dispersion sont négligés
- la non-linéarité et l'ionisation sont des perturbations faibles de la constante diélectrique $d\varepsilon = d\varepsilon_{nl} + d\varepsilon_{ion}$.

3.2.1 La divergence du champ électrique est nulle et le champ est considéré comme scalaire

Nous faisons l'approximation

$$\nabla \times \left(\nabla \times \vec{\mathcal{E}}\right) = \nabla\left(\nabla \vec{\mathcal{E}}\right) - (\nabla\nabla)\vec{\mathcal{E}} \approx -(\nabla\nabla)\vec{\mathcal{E}}$$

La condition $\nabla\left(\nabla \vec{\mathcal{E}}\right) << (\nabla\nabla)\vec{\mathcal{E}}$ signifie d'une part que le gradient de la densité des charges libres dans la direction du champ est négligeable. D'autre part, elle suppose que $\nabla.\vec{E} = \partial\mathcal{E}_x/\partial x + \partial\mathcal{E}_y/\partial y = 0$. La première condition est justifiée par la faible densité des électrons libres générés par le champ laser, ce que nous montrerons dans la suite. La deuxième condition est valable dans les limites de la description de la propagation par un champ purement scalaire. Cette description néglige donc l'aspect vectoriel du champ électrique. Dans nos expériences, cette approximation est valable à condition que le champ magnétique reste faible et que le milieu non-linéaire soit isotrope. La dernière condition est satisfaite dans les gaz dilués, milieux non-linéaires considérés dans cette étude.

Une composante longitudinale du champ électrique apparaît par exemple dans le sillage d'une impulsion pour des hautes intensités laser. Le champ de l'impulsion courte accélère les électrons libérés par elle-même. L'impulsion induit alors par son passage une oscillation dans le plasma. . Le champ longitudinal n'oscille pas à la fréquence fondamentale du laser. Dans le cas d'une résonance entre oscillation du plasma et impulsion, le champ longitudinal peut devenir si fort qu'il accélère les électrons. Le champ longitudinal maximal décrit par son enveloppe (voir équation 2.2) en cas de résonance peut être calculé sur l'axe par [3.2]:

$$E_z = \frac{\sqrt{\pi} I_{\max}}{2ec^2 N_c} \omega_{pl}^2 \Delta T_{1/e}^2 \exp\left(-\omega_{pl}^2 \Delta T_{1/e}^2 / 4\right)$$

Pour une impulsion à 800 nm d'intensité $I_0=10^{14}$ W/cm^2 ce champ est $E_Z = 1{,}5 \cdot 10^5 V/m$ comparé avec $E = 2.74 \cdot 10^{10} V/m$ pour le champ transverse. Si l'intensité dépasse 10^{18} W/cm^2 il faut considérer également la contribution du champ longitudinal à la propagation.

3.2.2 La propagation est paraxiale

Une simplification importante est amenée par la distinction de deux échelles de dynamique dans l'impulsion: l'enveloppe et la porteuse. Nous écrivons le champ comme

$$\mathcal{E}(t,\vec{r}) = \frac{1}{2}|E(t,\vec{r})|\exp\left(i\phi(t,\vec{r}_\perp,z)\right)\exp\left(ik_0 z\right) + c.c.$$

avec $\phi(t,\vec{r}_\perp,z)$ la phase spatiale en coordonnées transverses et éventuellement avec une lente variation avec la distance de propagation z. La considération des variations longitudinales suggère une approximation clé dans la simplification de l'équation de propagation : l'approximation paraxiale. Elle permet de remplacer la dérivée de deuxième ordre en z par une dérivée de premier ordre. En notant $E(z) = |E(t,\vec{r})|\exp\left(i\phi(t,\vec{r}_\perp,z)\right)$, la différentiation spatiale du Laplacien qui apparaît quand on développe l'équation (3.2) donne trois termes :

$$\frac{\partial^2\left(E(z)\exp(ik_0 z)\right)}{\partial z^2} = \left[\left(\frac{\partial^2 E(z)}{\partial z^2}\right) + 2ik\left(\frac{\partial E(z)}{\partial z}\right) - k_0^2\right]\exp(ik_0 z)$$

Nous allons supposer que

$$\left|\frac{\partial^2 E}{\partial z^2}\right| << k_0\left|\frac{\partial E}{\partial z}\right| \tag{3.3}$$

La condition est celle de l'enveloppe spatiale lentement variable et elle est valable quand la distance Δz sur laquelle le champ électrique varie durant la propagation est grande devant la longueur d'onde ($\Delta z\ k_0 >> 1$). Pour une onde à 800 nm, cette approximation reste valable lorsque la variation du champ durant la propagation a lieu sur des distance de l'ordre du millimètre. On remarquera que en négligeant le terme de deuxième ordre on ne prendra donc pas en compte les effets qui conduisent à une rétropropagation de l'onde.

3.2.3 L'enveloppe temporelle varie lentement devant la fréquence de la porteuse

L'équivalent de l'approximation paraxiale en z est dans le domaine temporel l'approximation de l'enveloppe lentement variable. Elle permet de négliger la variation rapide du champ à la fréquence fondamentale ω_0 en gardant l'information sur la porteuse dans la distribution du spectre autour de la fréquence ω_0. Ainsi, nous obtenons pour la dérivée du second ordre en temps du champ électrique (3.2) trois termes :

$$\frac{\partial^2\left(E(t)\exp(i\omega_0 t)\right)}{\partial t^2} = \left[\left(\frac{\partial^2 E(t)}{\partial t^2}\right) + 2i\omega_0\left(\frac{\partial E(t)}{\partial t}\right) - \omega_0^2\right]\exp(i\omega_0 t)$$

$$\left|\frac{\partial^2 E}{\partial t^2}\right| << \omega_0\left|\frac{\partial E}{\partial t}\right| \tag{3.4}$$

Cette condition est valable quand la période d'oscillation est petite devant la durée à mi-largeur de l'enveloppe lentement variable. Pour une impulsion initiale de 100 fs à 800 nm le nombre de cycles pendant la durée de l'impulsion est 37. Dans la propagation non-linéaire il faut veiller à ce que cette condition reste valable malgré les déformations temporelles de l'impulsion [3.1]. Avec les paramètres utilisés dans cette thèse, cette approximation est bien justifiée pour des impulsions supérieures à 10 fs.

3.2.4 Les effets de la dispersion sont négligés

Dans cette étude, nous nous plaçons dans un régime non dispersif, en négligeant la variation de la vitesse de groupe v_g de l'impulsion à la fois dans le domaine temporel et spectral. A partir de l'équation (3.2) le terme de la dérivée temporelle du deuxième ordre donne

$$\varepsilon \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + 2\frac{\partial \varepsilon}{\partial t}\frac{\partial E}{\partial t} + E\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial t^2} \tag{3.5}$$

Dans un régime de propagation linéaire, la vitesse de propagation est indépendante du temps. Le terme $\varepsilon \partial^2 E / \partial t^2$ s'élimine de l'équation de propagation en supposant la relation de dispersion $k_0^2 c^2 = \omega_0^2 n_0^2$. Dans le régime non-linéaire, la vitesse de phase v_{ph} montre une variation temporelle à cause de la dépendance de l'indice de réfraction avec l'intensité, $v_{ph}(t)=c/(n_0+n_2 I(t))$. Le deuxième terme dans l'équation (3.5) donne ensuite lieu à un raidissement de l'impulsion car les parties intenses de l'impulsion se propagent plus lentement que les parties de faible intensité. Le terme du second ordre de la dérivée est un terme de choc. Pour la résolution de l'équation (3.2) nous supposons que ces deux derniers termes sont négligeables. Dans une application numérique, nous regardons ces deux approximations dans le cadre des paramètres de notre étude.

La première de ces approximations suppose que l'élargissement d'une impulsion laser à cause de la dispersion est négligeable pendant sa propagation. Pour une impulsion gaussienne l'élargissement temporel en fonction de la durée initiale et de la constante de dispersion est donné dans le cas de la propagation linéaire par l'expression [3.3] :

$$\Delta T_{1/e}(z) = \Delta T_{1/e}\left[1 + \left(\frac{z \cdot 2\ln 2}{\Delta T_{1/e}^2}|\beta|\right)^2\right]^{1/2} \tag{3.6}$$

Dans l'air (β=0.243 fs^2/cm) une impulsion laser de $\Delta T_{1/2}$=100 fs allonge sa durée temporelle après 3 m de propagation d'un facteur 1.00005, c'est à dire qu'elle reste

quasi constante. Par contre, pour une impulsion de 10 femtosecondes, le facteur d'élargissement après 3 m de propagation est 1.4, montrant que la dispersion joue un rôle important. Cependant, ce calcul n'est valable qu'à faible intensité - en présence de l'effet Kerr, l'élargissement temporel dû à la dispersion est couplé à l'élargissement spectral dû à l'effet Kerr et la dispersion peut devenir importante même pour des durées d'impulsions qui seraient peu dispersives en propagation linéaire [3.4].

Pour tester la validité de la deuxième approximation, nous choisissons une condition simple pour quantifier la contribution du terme de choc. Il faut que le déplacement relatif entre le centre de l'impulsion par rapport aux ailes reste inférieur à la moitié de la durée de l'impulsion à mi-largeur :

$$\Delta t = \frac{z}{c}\Delta n << \frac{1}{2}\Delta T_{1/2}$$

$$z << \frac{c}{4n_2 I}\Delta T_{1/2}$$

La distance sur laquelle cette condition reste valable est donnée pour une impulsion de 100 fs dans l'air par $z(m)=0.25/I_{14}$ où $I_{14}= 10^{14}$ W/cm^2. Pour les intensités maximales observées au cours des expériences présentées dans cette thèse, l'approximation reste valable sur 2,5 m pour une impulsion de 100 fs et une intensité de 10^{13} W/cm^2. Les effets du terme de dispersion, du raidissement de l'impulsion et du choc sont discutés par [3.5].

Ces deux approximations qui permettent de négliger la variation de la vitesse de groupe nous permettent d'introduire une distance effective $\zeta = z - v_g t$ dans l'équation de propagation. A cette distance correspond un temps retardé dans le référentiel de l'impulsion : le zéro de l'axe du temps reste au centre de l'impulsion. L'équation de propagation s'écrit alors

$$\left(2ik_0\frac{\partial}{\partial\zeta}+\nabla_\perp^2\right)E(x,\zeta)=0$$

3.2.5 Approximation de la non-linéarité comme perturbation faible

Nous introduisons la non-linéarité comme une faible perturbation de l'indice de réfraction. Ensuite, la relation de dispersion devient dans cette approximation $k_0^2c^2=\omega_0^2\left(n_0^2+2n_0\Delta n\right)$. La perturbation de l'indice de réfraction est liée à la non-linéarité par $d\varepsilon=2n_0\Delta n$ (décrite dans le chapitre 2). Pour des conditions typiques de nos expériences, la contribution de l'effet Kerr à l' indice de réfraction est de l'ordre de $\Delta n_{Kerr}=n_2I_0=3\cdot10^{-5}$ dans l'air pour une impulsion de 10^{14} W/cm^2 et la contribution de l'ionisation est de l'ordre de $\Delta n_{el}=-\left(\omega_{pl}/2\omega_0\right)^2=5\cdot10^{-6}$ pour une densité électronique de 10^{16} cm^{-3}. Les deux valeurs sont petites devant l'indice de réfraction linéaire de l'air. Nous arrivons donc à l'équation de propagation à résoudre:

$$\left(2ik_0\frac{\partial E}{\partial\zeta}+\nabla_\perp^2E+d\varepsilon E\right)=0 \tag{3.7}$$

avec $d\varepsilon=d\varepsilon_{Kerr}+d\varepsilon_{ion}$.

Cette équation de propagation non-linéaire sert de base pour l'analyse de l'auto-focalisation des impulsions femtosecondes.

3.3 Outil numérique

L'équation de propagation linéaire donne les solutions explicites bien connues de l'optique ondulatoire. La présence de non-linéarités de type Kerr ajoute une singularité dans l'équation de propagation [3.6]. Les solutions analytiques n'existent jamais, sauf en présence d'approximations limitant leur validité. Il faut alors avoir recours à la

résolution numérique de l'équation de propagation. Nous décrivons dans le sous-chapitre suivant un code numérique pour la résolution de l'équation de propagation (3.7).

Il existe un certain nombre de méthodes numériques pour résoudre l'équation de propagation (3.7) définie plus haut. Les méthodes se distinguent soit par le modèle du milieu adopté, soit par la technique numérique employée pour la résolution des équations.

Différents codes de calcul peuvent être développés, en relation étroite avec le type de représentation physique choisie. La différence entre ces codes vient principalement de la modélisation du milieu dans lequel se propage l'impulsion laser. Ainsi les codes "P.I.C." (« Particules In Cells ») sont théoriquement capables de traduire les mouvements des particules et leurs échanges entre elles ou avec l'onde [3.7]. Leur avantage réside en le fait que l'on peut traiter tous les problèmes microscopiques, mais leur principal défaut est leur lenteur et les énormes capacités machines demandées. Un défaut supplémentaire est leur précision assez faible pour les particules de faible énergie.
Les codes "fluides" modélisent les différentes espèces présentes dans le milieu sous forme de fluides et, ils ont donc une approche macroscopique des phénomènes. Ils permettent des calculs plus rapides que les codes "P.I.C." mais d'un autre côté ils ne tiennent pas compte des interactions onde - particule ou particule - particule, comme l'effet Landau dans les plasmas. Il faut alors recourir à des modélisations empiriques de ces effets.
Il existe des codes intermédiaires entre les deux précédents, les codes "Vlasov" ou "Boltzmann". Chaque espèce de particules est présentée sous la forme d'une fonction de distribution décrivant le nombre de particules possédant une énergie donnée. On peut, par cette approche, traiter de façon assez précise les collisions intra-particules.
Pour chacun de ces codes, il existe de plus des techniques d'accélération des calculs, liées à la physique des phénomènes à reproduire. Dans le cas de la propagation dans les plasmas, il est possible sous certaines conditions de développer les équations à résoudre sur plusieurs échelles de temps, notamment une échelle rapidement variable (de l'ordre de la période laser ou de la période plasma électronique) et une échelle de temps lentement variable (de l'ordre de la période plasma ionique ou de l'ordre de la période de collision inter particules). De plus, il est possible dans la modélisation de ne tenir

compte que de certains types de phénomènes : il est par exemple inutile de tenir compte d'éventuels effets relativistes pour des propagation dont l'éclairement ne dépasse jamais quelques 10^{14} W/cm^2.

Du point de vue purement numérique, il est possible de résoudre l'équation (3.7) soit par une approche aux différences finies, soit par une méthode aux éléments finis ou encore par une méthode spectrale. Aucune de ces méthodes ne présente en soi un avantage décisif. La méthode des éléments finis permet d'étudier la propagation en géométrie complexe et pour ce faire, elle est un peu lourde à employer. Les méthodes spectrales ont comme avantage une implémentation plus simple grâce au couplage spatio-temporel inclus dans le maillage. Leur utilisation peut générer par contre un temps de calcul plus long que dans le cas des différences finies, notamment s'il faut calculer à chaque pas z, en plus du domaine spectral, des variations dans le domaine temporel.

Dans le cas de notre étude, nous utiliserons un code basé sur la méthode des différences finies développé par Chiron et al. [3.8] pour la propagation dans le domaine temporel. Le choix de la méthode des différences finies est motivé par deux réflexions. D'une part, la géométrie de la filamentation d'un faisceau gaussien peut être approximée par une symétrie de révolution. Cela nous permet d'utiliser le maillage simple des différences finies sans avoir recours au maillage plus complexe des éléments finis. D'autre part, un code de différences finies nous permet de résoudre d'abord l'équation de propagation avec une bonne résolution en temps et de ne calculer les spectres qu'à postériori, à partir du champ temporel complexe. C'est un avantage, comparé avec les méthodes spectrales qui requièrent à la fois une bonne résolution temporelle et spectrale et sont alors plus exigeants en capacité de calcul de l'ordinateur.

3.3.1 Schéma numérique utilisé

Le code utilisé pour résoudre numériquement l'équation (3.5) est illustré dans la Figure 3.1 : la propagation est calculée dans une boucle extérieure selon l'axe de propagation z (le terme $2ik_0\partial E/\partial\zeta$) et une boucle de temps intérieure à chaque pas de z. La boucle temporelle consiste dans une discrétisation du profil temporel E(t) en « tranches » E_i .

Pour chaque point temporel le terme transverse de diffraction $\nabla_{\perp}^{2}E$ est calculé par une méthode Cranck-Nicholson. Chaque tranche temporelle se propage indépendamment des autres dans l'espace

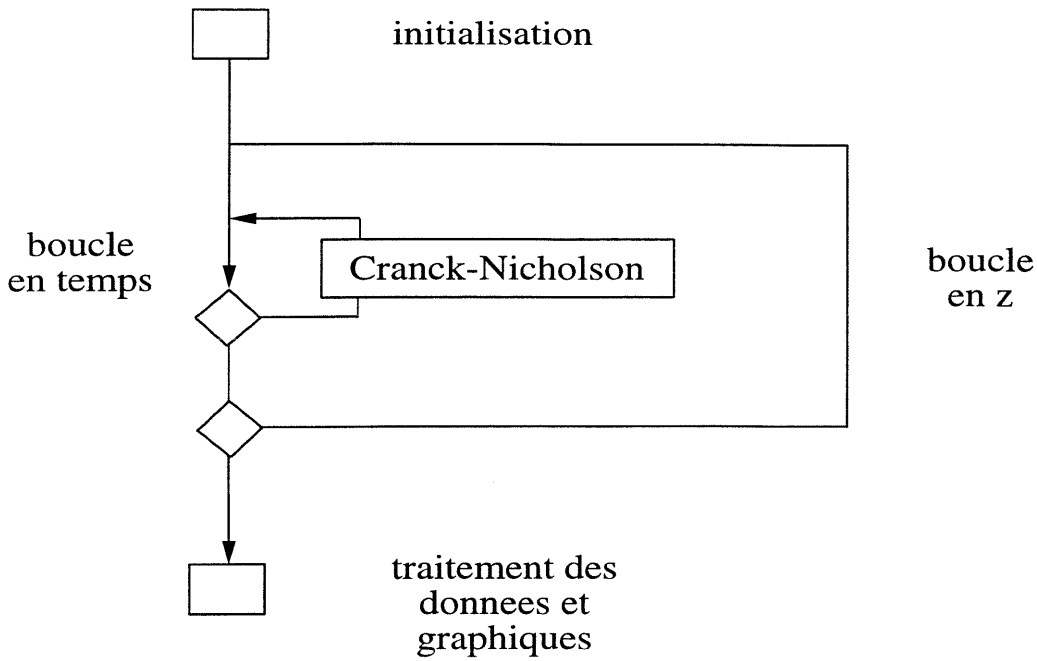


Figure 3.1: Schéma numérique du code de propagation. La propagation en z est réalisée dans une boucle extérieure. Pour chaque pas de z une boucle intérieure calcule le champ pour tous les points de temps. A chaque point de temps la diffraction est prise en compte par un schéma de Crank-Nicholson.

de z à z+dz. Le couplage entre les tranches temporelles se fait uniquement par la mémoire du milieu: pour chaque point d'espace on prend en compte le passage des tranches temporelles antérieures par une intégration de la réponse non-linéaire (soit la densité électronique pour l'ionisation soit la réponse non-instantanée pour l'effet Kerr).

Pour la résolution de l'équation (3.5) nous discrétisons le champ électrique en r et z, ce qui amène à une matrice $E_{m,n}$ avec un espacement transverse Δr (variable m) et longitudinal $\Delta\xi$ (variable n). La méthode Cranck-Nicholson est un schéma spécifique qui permet de remplacer les dérivées partielles en deux dimensions par des différences entre les valeurs du champ aux points adjacents. Cette méthode assure que le couplage entre le terme de diffraction et le terme de propagation en z est inconditionnellement stable [3.9]. Les différents termes de l'équation (3.5) sont évalués comme suit. Le terme de propagation s'écrit:

$$\frac{\partial E}{\partial \xi} = \frac{E_{n,m} - E_{n-1,m}}{\Delta \xi} .$$

Le terme de diffraction en géométrie cylindrique est donné par

$$\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial E}{\partial r}\right) = \frac{1}{\Delta r^2}\left[\left(1+\frac{1}{2(m-1)}\right)E_{n,m+1} + \left(1-\frac{1}{2(m-1)}\right)E_{n,m-1} - 2E_{n,m}\right].$$

Pour éviter une divergence à r=0 on remplace l'équation précédente sur l'axe par

$$\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial E}{\partial r}\right) = \frac{4}{\Delta r^2}\left[E_{n,2} - E_{n,1}\right].$$

L'indice non-linéaire $\Delta n_{n,m}$ est calculé en supposant que la variation dans un pas de propagation reste faible devant Δn_0 . Avec la notation $\eta = \xi/(2v_g)$ de sorte que

$$\Delta n(E(\eta+d\eta)) + \Delta n(E(\eta)) = 2\Delta n(E(\eta)) \,.\, \Delta n.E$$

Pour la contribution de la non-linéarité Kerr à l'indice de réfraction on obtient ainsi :

$$\frac{\Delta N}{2}\left[E_{n,m} + E_{n-1,m}\right]$$

Par cette méthode des différences finies, la solution de l'équation différentielle de propagation peut être ramenée à la résolution d'un système d'équations linéaires et donc à la simple inversion d'une matrice. Pour cela, nous réécrivons les termes de l'équation de propagation dans deux équations avec les opérateurs $\eta_1 = \dfrac{i\Delta\xi}{2\Delta_{r^2}}$ et $p\pm = 1 \pm 2\eta_1$

où $u_m = 1 / 2(m - 1)$:

$$E_{n,m}\left[p_+ - \frac{i\Delta\xi}{2}d\varepsilon\right] - \eta_1\left[(1+u_m)E_{n,m+1} + (1-u_m)E_{n,m-1}\right]$$
$$= E_{n-1,m}\left[p_- + \frac{i\Delta\xi}{2}d\varepsilon\right] + \eta_1\left[(1+u_m)E_{n-1,m+1} + (1-u_m)E_{n-1,m-1}\right]$$

Le système est du type Y=AX et il est résolu par l'inversion de la matrice A tridiagonale. En résolvant ce système pour chaque segment de temps, il est possible d'avoir le champ électrique E à chaque pas de propagation z.

3.3.2 Processus de simulation

Le calcul d'un cas précis simulant une expérience se fait en deux parties: le calcul de la propagation et le traitement des données. Dans la première partie la propagation est découpée en plusieurs blocs en z, où on rééchantillonne selon l'auto-focalisation à plusieurs reprises sur une boite de calcul qu'on adapte chaque fois à l'extension transversale du faisceau laser. Cela peut réduire le temps de calcul et également la taille de mémoire nécessaire pour le stockage des données par typiquement un facteur 2 à 5. Dans le cas d'une réduction des dimensions de la boite de calcul, les conditions aux bornes posent un problème important pour la diffraction. C'est pourquoi le code contient des bornes absorbantes sur les derniers cinq pour cent du maillage transverse.

La discrétisation temporelle se fait dans une fenêtre temporelle d'au moins quatre fois la durée de l'impulsion à mi-largeur, soit typiquement 256 points. La coordonnée transverse contient typiquement 1000 points. Un calcul dure ensuite une à deux heures sur une station Hewlett-Packard C160. Pour calculer l'auto-focalisation assistée par une lentille il faut typiquement un dizaine de tel calculs.

La sortie des données peut se faire sous deux formes: les points d'analyse en z et en temps où on veut étudier les résultats et les distances et surfaces d'intégration. Le choix des paramètres de l'intégration se fait en général en comparaison avec la résolution expérimentale. Ainsi, les données sur le niveau temporel et spatial sont en général des données intégrées en espace (en général sur la largeur du filament) et temporellement (toute l'impulsion) - sauf indiqué autrement.

Une limite inhérente de tout code de propagation est donnée par la résolution temporelle ou spatiale dictée par le maillage: le choix des pas Δt , $\Delta\zeta$ et Δr ne permet pas de traiter

des phénomènes qui se développent sur un échelle plus petite. Dans le cas d'un couplage entre domaine spectral et domaine temporel, ces considérations peuvent devenir particulièrement importantes.

[3.1] J.K. Ranka, A.L. Gaeta : Breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of ultra-short pulses, Opt. Lett. 23, 534 (1998).

[3.2] L. Gorbunov, V.I. Kirsanov: Excitation of plasma waves by an electromagnetic wave packet, Sov. Phys. JETP 66, 290 (1987).

[3.3] G. P. Agrawal : Nonlinear Fiber Optics, Academic Press Inc., Boston (1989). (Attention à la définition différente de la durée de l'impulsion dans ce livre, p.56).

[3.4] E. Esarey, P. Sprangle, M. Pilloff, J. Krall : Theory and group velocity of ultrashort, tightly focused laser pulses, J. Opt. Soc. Am. B 12, 1695 (1995); M. Nisoli, S.D. Silvestri, O. Svelto : Generation of high 10 fs pulses by a new pulse compression technique, Appl. Phys. Lett. 68, 2793 (1996).

[3.5] A.A. Zozulya,S.A. Diddams, T.S. Clement :Numerical investigation of nonlinear femtosecond pulse propagation with the inclusion of Raman, shock, and third-order phase effects, soumis à Phys. Rev. A (1998).

[3.6] J.J. Rasmussen and K. Rypdal : Blow-up in nonlinear Schroedinger equations - I, a general review, Physica Scripta 33, 481 (1986).

[3.7] P. Chessa : Interaction d'une impulsion laser ultra-brève et ultra-intense avec un plasma sous-dense ou avec un gaz, thèse de doctorat de l'université Pierre et Marie Curie, Paris (1996).

[3.8] A. Chiron, B. Bonnaud, A. Dulieu, J.L. Miquel, G. Malka, M. Louis-Jacquet, G. Mainfray : Experimental observations and simulations on relativistic self-guiding of an ultra-intense laser pulse in underdense plasmas, Phys. Plasmas 3, 1373 (1996) ; A. Chiron, B. Lamouroux, R. Lange, J.-F. Ripoche, M. Franco, B. Prade, G. Bonnaud, G. Riazuelo and A. Mysyrowicz : Numerical Simulations of the nonlinear propagation of femtosecond optical pulses in gases, soumis à European Journal of Physics D.

[3.9] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T Vetterling, B.P. Flannery: Numerical recipes for C, 2nd edition, Cambridge University Press, Cambridge (1992).

4. Solution de l'équation de propagation non-linéaire

Dans ce chapitre nous présenterons des solutions numériques de l'équation de propagation obtenues en introduisant les différents termes séparément. Nous examinerons successivement les effets suivants :

1. la diffraction seule
2. l'effet Kerr seul et avec diffraction
3. l'ionisation seule, avec diffraction et puis avec diffraction et effet Kerr.

L'étude de la diffraction seule permet de valider le code numérique par comparaison à des solutions analytiques connues. Ensuite, en prenant en compte l'effet Kerr et la diffraction nous mettrons en évidence la notation de puissance critique d'auto-focalisation.
L'analyse des différents termes permet également de calculer dans l'interaction entre diffraction, effet Kerr et ionisation la contribution de chaque terme. Finalement, nous montrerons, en introduisant tous les termes, que la propagation d'un faisceau laser peut conduire à la formation d'un filament et nous en donnerons une interprétation en terme de quasi-équilibre dynamique entre l'effet Kerr et l'ionisation.

4.1 Diffraction

La simulation de la diffraction seule nous permet d'introduire quelques notations de base utiles pour décrire la propagation d'un faisceau laser. De même l'existence de solutions analytiques nous permet de valider le code. Les expressions analytiques décrivant la propagation d'un faisceau gaussien $E(t,r) = u(x,y,z)f(t)$ qui subit la diffraction sont données par

$$u(x,y,z)=\frac{u_0}{\sqrt{1+z^2/z_R^2}}\exp(-i\Theta(z)) \tag{4.1}$$

$$\cdot\exp\left(-ik_0\left(x^2+y^2\right)/2R(z)\right)\exp\left(-\left(x^2+y^2\right)/w^2(z)\right)$$

avec $R(z)=z+z_R^2/z$ et $\Theta(z)=\arctan\left(z/z_R^2\right)$.

R(z) décrit la courbure du front de phase et tend vers l'infini quand la distance de propagation augmente et $\Theta(z)$ représente la phase sur l'axe de propagation. L'évolution du diamètre w(z) à mi-largeur est donnée par $w(z)=w_0\sqrt{1+z^2/z_R^2}$ avec la taille du faisceau $w_0=w(0)$ défini à l'origine z=0 . La longueur de Rayleigh est $z_R=\pi\ w_0^2/\lambda_0$, le paramètre confocal est défini comme b=2 z_R. Le paramètre confocal donne la distance pendant laquelle w(z) reste inférieur ou égal à $\sqrt{2}\,w_0$. Pour un faisceau gaussien de diamètre initiale a_0 focalisé par une lentille de focale f, le diamètre minimal d_0 au point de focalisation est donné par $d_0\approx\sqrt{2}f\lambda_0/\pi w_0$. Pour un faisceau typique de taille w_0=4 mm à 800 nm, focalisé avec une lentille de focale 1 m nous obtenons une taille minimale au foyer de l'ordre de 90 µm.

La diffraction dans le vide d'un faisceau gaussien d'un diamètre initial de w_0= 2 mm calculée selon l'équation (4.1) est comparée avec le résultat du code pour un faisceau de courbure initial R_0= 78,5 m dans la Figure 4.1. La courbe 1 montre le profil spatial initial, la courbe 3 le résultat du calcul analytique selon l'équation (4.1) enfin la courbe 2 correspond au calcul numérique. Le calcul numérique est en excellent accord avec l'expression analytique à une précision de 10^{-9} près. Le calcul complet de l'effet d'une lentille sur la distribution spatio-temporelle d'une impulsion femtoseconde en tenant compte des aberration est discuté dans [4.1].

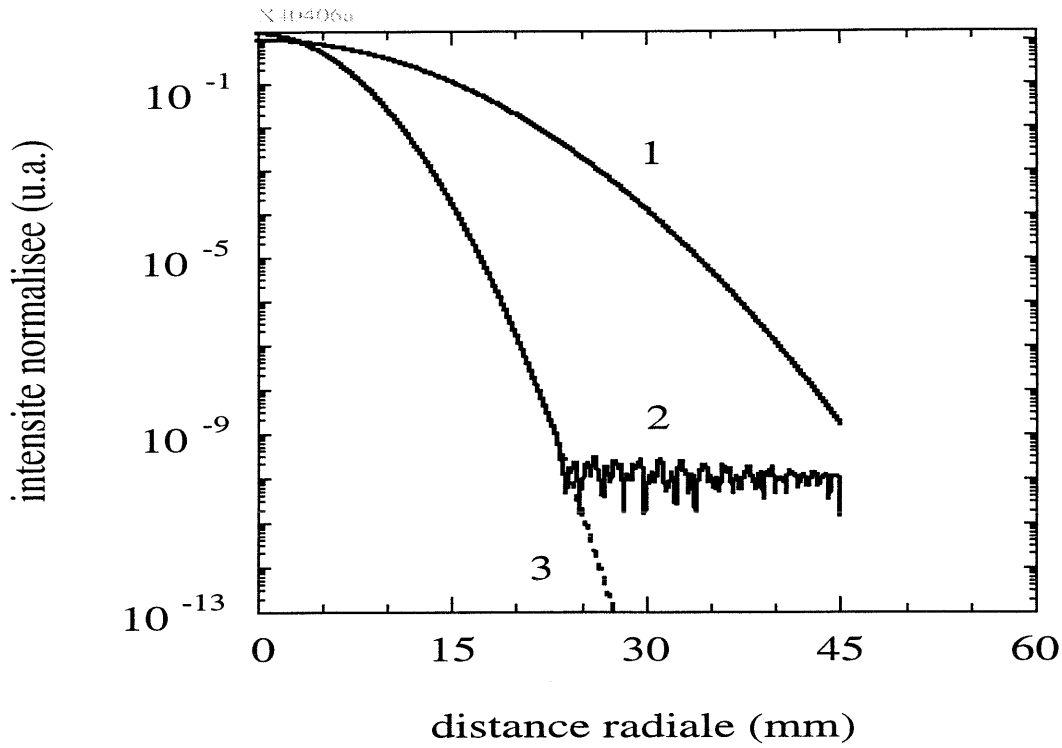


Figure 4.1: Diffraction dans le vide - pour un faisceau gaussien initial qui est défini par w_0=2 mm pour une longueur d'onde centrale de 800 nm. Avec une longueur de Rayleigh z_R=15,7 m, le rayon de courbure est R_0=5 z_R m. Les courbes montrent le profil initial du faisceau (1), le profil à R_0 obtenu par calcul analytique (3) et le profil au foyer calculé par le code numérique (2).

4.2 Effet Kerr sans diffraction

Afin de mettre en évidence l'origine des changements spectraux durant la propagation d'une impulsion, nous regardons la propagation sur une distance petite devant la longueur de Rayleigh du faisceau. Dans ce cas le rôle de la diffraction est négligeable et la propagation peut être décrite par un système à une dimension d'espace et une dimension temporelle. Des expériences qui ont été faites sous ces conditions sont par exemple celles de Nibbering et al. [4.2] qui ont utilisé des faisceaux de grands diamètres. La propagation des impulsions lumineuses dans les fibres optiques peut être également modélisée à l'aide d'un modèle unidimensionnel [4.3]. La propagation du champ électrique d'un pas à l'autre se réduit à une simple multiplication du champ initial par une phase proportionnelle à l'intensité:

$$E(z,t) = E(z - dz, t) \cdot \exp\left(ik_0 n_2 I(t) dz\right) \tag{4.2}$$

Dans ce modèle le profil temporel de l'impulsion $|E(z,t)|^2$ reste invariant. L'évolution du spectre durant la propagation est décrite par:

$$F(z+dz,\omega)=\int_{-\infty}^{\infty} E(z,t)\, e^{ik_0 n_2 I(t)dz} e^{i\omega t} dt \tag{4.3}$$

Chaque composante de Fourier $E(z,t)$ dans le domaine temporel est affectée d'une phase instantanée non-linéaire.

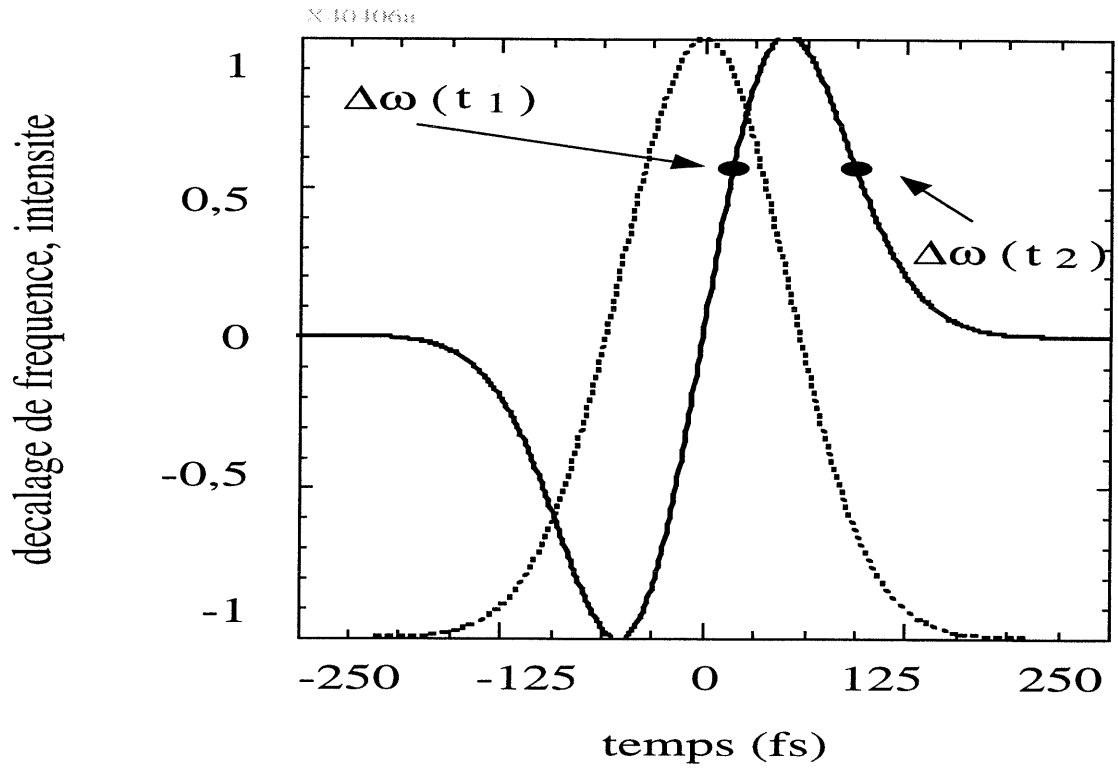


Figure 4.2: Illustration schématique de la phase non-linéaire d'une impulsion. Le trait pointillé montre le profil de l'impulsion, le trait continu représente les fréquences instantanées créées. Deux fréquences identiques créées à des instants t_1 et t_2 interfèrent et produisent des structures dans le spectre.

La phase instantanée introduit un déplacement spectral $\Delta\omega = -d\phi_{NL}(t)/dt = -k_0 n_2\, \Delta z\, dI(t)/dt$. Par conséquent, l'action de l'effet Kerr consiste dans la création de nouvelles fréquences et favorise ainsi l'apparition des

structures dans le spectre. Pour illustrer ce phénomène, nous considérons le cas simple d'une impulsion gaussienne à phase constante en temps. Comme montré dans la Figure 4.2, les fréquences $\Delta\omega(t)$ générées sur le flanc montant de l'impulsion sont négatives et l'intensité spectrale est déplacée vers le rouge. Sur le flanc arrière de l'impulsion, $\Delta\omega(t)$ est positif et les fréquences sont déplacées vers le bleu. Il existe pour la plupart des fréquences instantanées $\Delta\omega(t_1)$ une deuxième fréquence identique $\Delta\omega(t_2)$ générée sur le même coté de l'impulsion mais à un instant t_2. L'interférence des deux fréquences est maximale quand la différence de phase est un multiple entier m de π. Lorsque m est pair, nous observons un maximum en intensité spectrale, pour m impair, nous observons un minimum.

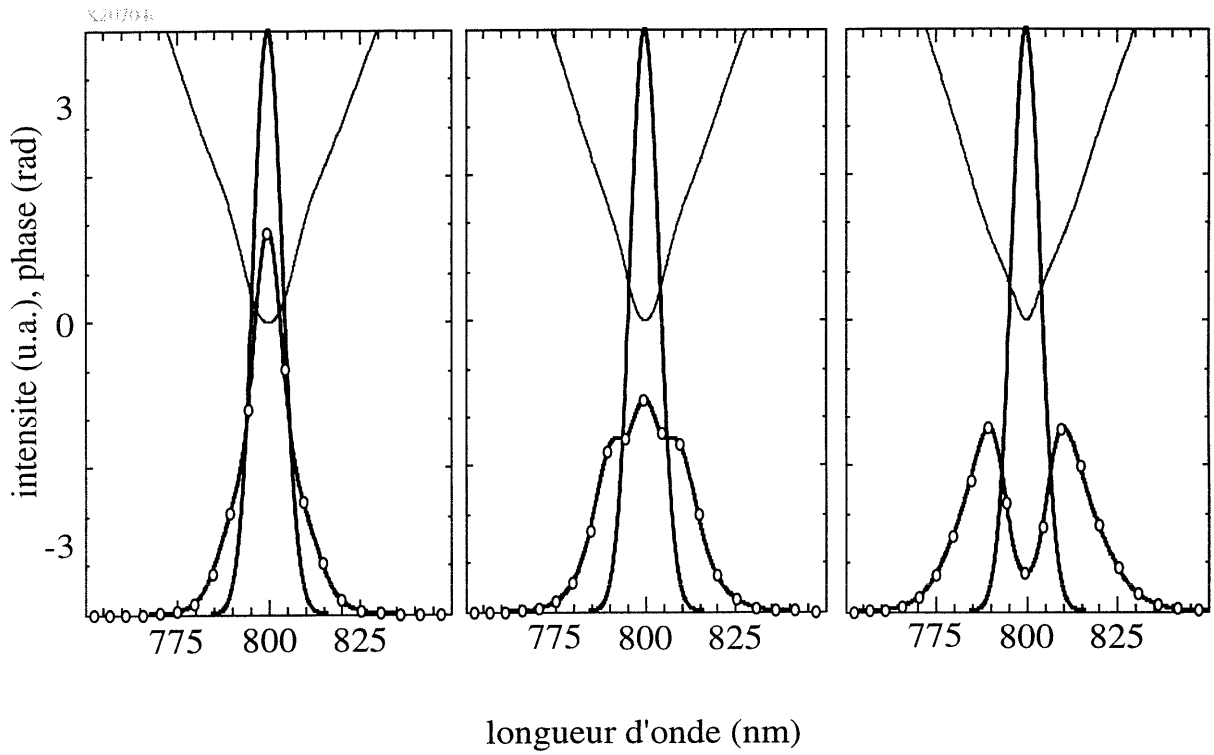


Figure 4.3: Modulation spectrale introduite par l'effet Kerr pour la même forme temporelle sans glissement de fréquence à trois énergies W différentes: a) W, b) 2 W et c) 3 W. Les graphes montrent le spectre initial (trait continu), le spectre après propagation dans le milieu non-linéaire (trait avec cercles) et la phase spectrale après propagation (trait fin).

En conclusion, l'action de l'effet Kerr fait apparaître des franges d'interférences dans le spectre, comme illustré dans la Figure 4.3 pour une impulsion gaussienne pour trois énergies différentes. Pour une impulsion avec une phase initiale compliquée ou avec un profil temporel asymétrique, la structure d'interférence devient rapidement très complexe.

4.3 Effet Kerr avec diffraction

Nous venons de voir dans le cas d'un système à une dimension spatiale comment la variation temporelle de l'impulsion donnait lieu à des interférences dans le domaine spectral par l'intermédiaire de l'effet Kerr. Un phénomène équivalent est observable en permutant les variables temps-fréquences avec les variables rayon-vecteur d'onde. Dans le cas d'une variation spatiale I(r) de l'intensité, l'effet Kerr modifie la distribution spatiale durant la propagation. Pour rendre compte de cette modification du profil transverse de l'intensité, il faut inclure la diffraction dans l'équation de propagation. Nous résoudrons l'équation avec la variation de la constante diélectrique $d\varepsilon_{NL}$ donnée par l'effet Kerr comme décrit dans le paragraphe 2.2 :

$$\left(2ik_0\frac{\partial E}{\partial \zeta}+\nabla_\perp^2 E+d\varepsilon_{NL}E\right)=0 \tag{4.4}$$

Nous étudierons d'abord l'effet Kerr instantané avant d'introduire la réponse non-instantanée dans la deuxième partie de ce paragraphe.

4.3.1 Effet Kerr instantané pur

Dans un système à une dimension transverse, une dimension de propagation et la dimension temporelle l'équation (4.4) possède des solutions propagatrices stables: les solitons spatiaux [4.4]. Par contre, dans le cas de trois dimensions spatiales - deux transverses et une longitudinale - l'équation contenant seulement la diffraction et l'effet Kerr est extrêmement instable [4.5]. L'équation (4.4) décrit par exemple l'auto-focalisation dans un gaz. La Figure 4.4 montre l'évolution de la mi-largeur du faisceau avec la distance de propagation pour deux énergies différentes. Le faisceau initial possède un profil spatial gaussien. Le faisceau représenté par un trait fin diffracte rapidement, le faisceau en gras s'auto-focalise et se réduit à un point (flèche). Le point de focalisation est la singularité de l'équation de propagation en présence de l'effet Kerr

mentionné dans le chapitre précédent. La résolution numérique de l'équation (4.4) s'arrête à ce point singulier.

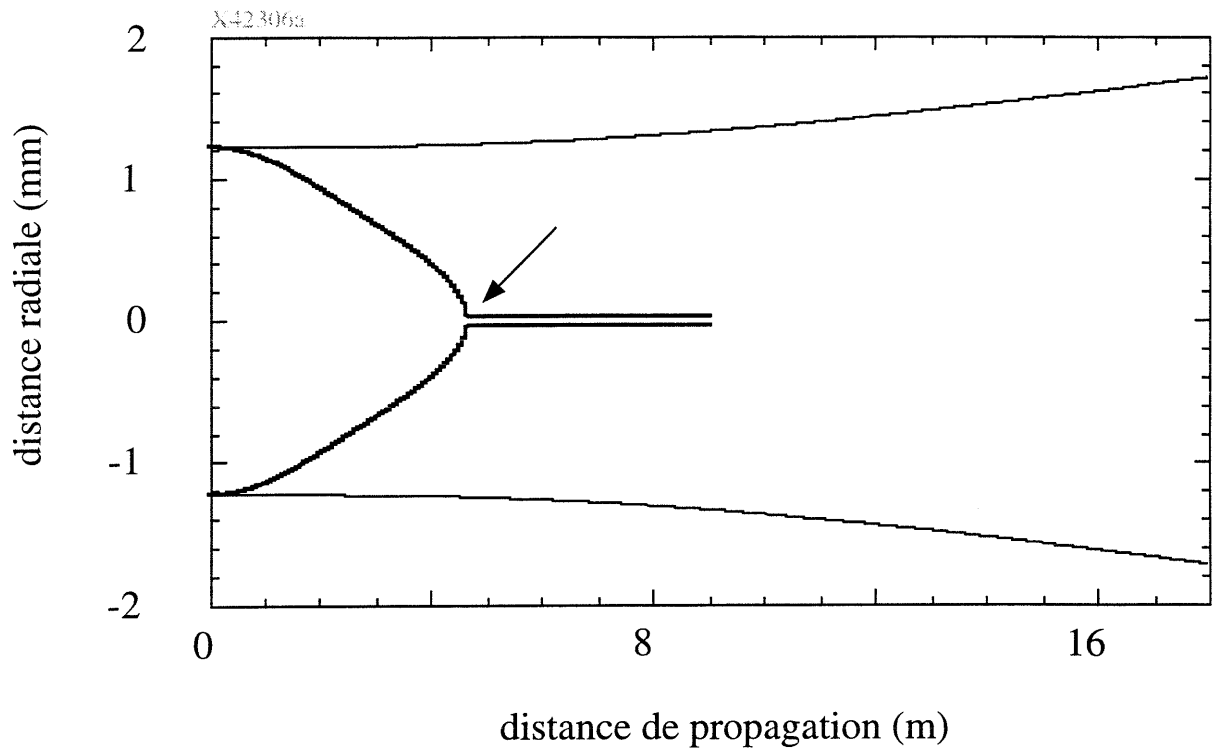


Figure 4.4: Diffraction et effet Kerr pour deux énergies différentes qui donnent des solutions qualitativement différentes: a) diffraction à faible énergie W= 0,085 mJ, b) convergence et collapse (flèche) pour une énergie W= 0,85 mJ. L'impulsion initiale est définie par $\Delta\tau$=120 fs , w_0=2 mm, $n_{2,i}$=3,2 10^{-19} cm^2/W.

La transition de la divergence à la convergence du faisceau en fonction de l'énergie conduit à la définition de la puissance critique d'auto-focalisation. Elle représente la puissance pour laquelle la convergence de l'effet Kerr est équilibrée par la diffraction du faisceau. Trois définitions différentes pour la puissance critique sont utilisées dans la littérature. La différence entre les définitions vient de l'utilisation de trois modèles physiques différents pour la définition de l'équilibre :

1) compensation entre la courbure positive du front de phase introduite par l'effet Kerr et la courbure négative de la surface d'onde due à la diffraction [4.6] :

$$P_{crit,1} = \lambda_0^2 / 8\pi n_0 n_2 \tag{4.5}$$

2) équilibre entre l'angle critique de réflexion totale et l'angle de diffraction pour un profil d'indice rectangulaire [4.7] :

$$P_{crit,2} = (1.22)^2 \pi \cdot \lambda_0^2 / 32 n_0 n_2 \tag{4.6}$$

3) équilibre défini par la stabilisation de l'effet Kerr par la diffraction dans la solution numérique de l'équation de propagation [4.8]. On obtient la grandeur $P_{crit,3}$. Ces trois puissances critiques sont reliées entre elles par la relation:

$$P_{crit,3} = 3.77 \times P_{crit,1} = 1.03 \times P_{crit,2} \tag{4.7}$$

Soulignons que le paramètre critique indiquant la capacité d'une impulsion lumineuse à s'auto-focaliser est la puissance contenue dans l'ensemble du faisceau et non son intensité. L'intensité détermine par contre la distance à laquelle l'auto-focalisation a lieu.

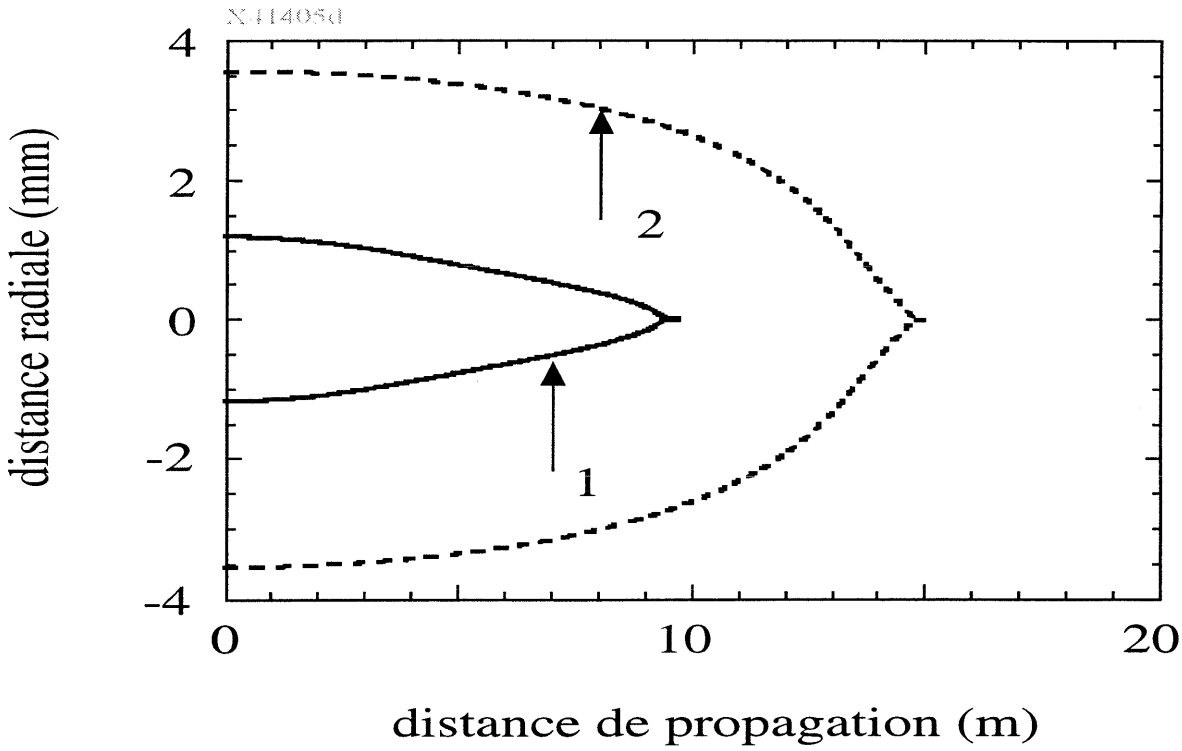


Figure 4.5: Auto-focalisation pour deux diamètres initiaux différents à puissance constante: a) 2 mm, b) 6 mm. L'impulsion initiale est définie par $\Delta\tau$=120 fs, W= 2 mJ et $n_{2,i}$=3,2 10^{-19} cm^2/W.

L'effet de l'auto-focalisation d'un faisceau laser est intuitivement compréhensible si on regarde la variation de la phase spatiale du faisceau. Pour un faisceau gaussien, la variation de l'intensité du faisceau au-dessus de la puissance critique peut être approximée par une parabole. Comme l'indice non-linéaire est proportionnel à l'intensité nous obtenons $\Delta n(I)= n_2 I(r)=n_2 (1-r^2)$. L'effet Kerr introduit une courbure du front de phase comme le fait une lentille. Cependant, la différence entre une lentille classique et une lentille Kerr consiste dans le fait que dans le cas d'une lentille classique la focale est une condition initiale, dans le cas d'une lentille Kerr la focale se réduit au cours de la propagation.

Pour quantifier le pouvoir d'auto-focalisation d'un faisceau laser donné on introduit la distance d'auto-focalisation z_f qui donne le point de collapse en fonction de l'intensité du faisceau. Une expression semi-analytique pour la distance d'auto-focalisation est obtenue par des simulations [4.8] et s'écrit :

$$z_f(t) = \frac{0.367 \cdot k_0 a_0^2}{\sqrt{P(t)/P_{crit}} - 0.852} \qquad (4.8)$$

où k_0 est le vecteur d'onde et a_0 le diamètre initial du faisceau. L'influence du diamètre a_0 du faisceau sur l'auto-focalisation est illustrée par la Figure 4.5 pour deux diamètres différents en maintenant constante la puissance du faisceau. La distance d'auto-focalisation est proportionnelle à a_0^2. Pour une impulsion focalisée, l'effet Kerr déplace le foyer vers la lentille. La distance d'auto-focalisation s'écrit dans ce cas $z_{fR} = \left(1/z_f + 1/f\right)^{-1}$. Ce déplacement du foyer est illustré dans la Figure 4.6, il peut être une source d'erreur dans les expériences à haut flux dans les gaz - comme par exemple la génération des harmoniques dans les jets [4.9].

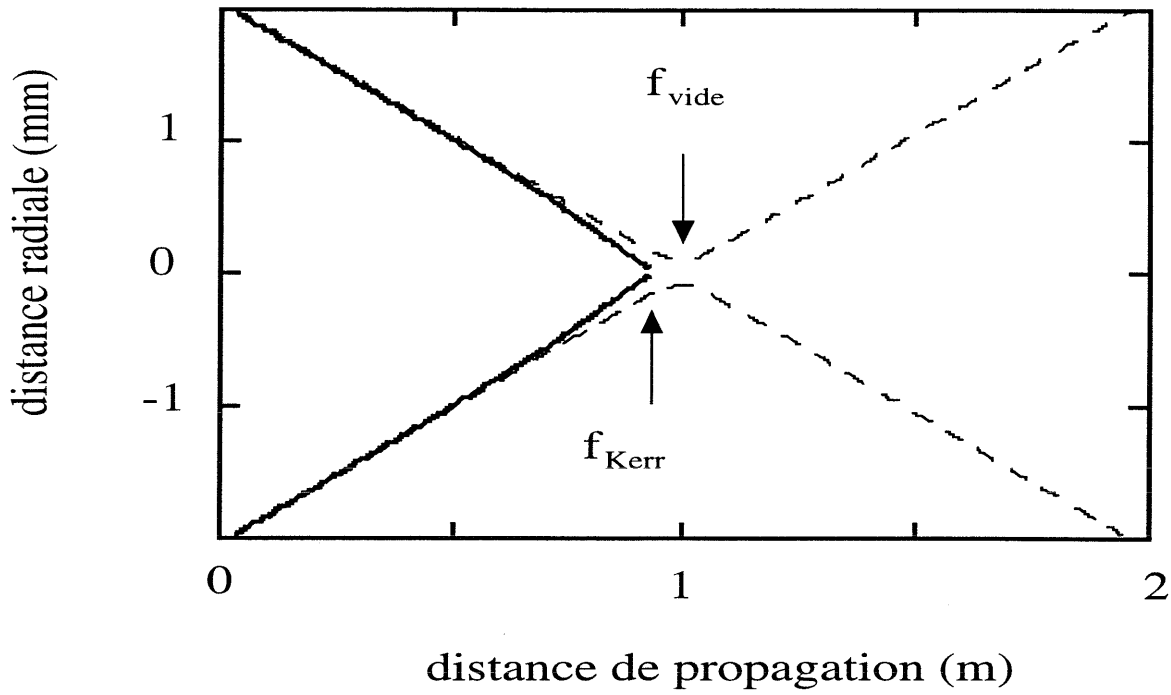


Figure 4.6: Déplacement du foyer d'une lentille de focale *f*=2 m par effet Kerr vers la lentille. Trait pointillé: propagation dans le vide, trait continu: propagation dans l'air. L'impulsion initiale est caractérisée par $\Delta\tau$=120 fs , w_0=2 mm, W= 1.5 mJ. Le milieu (l'air) est décrit par la constante $n_{2,i}$=2,8 10^{-19} cm^2/W.

La dépendance temporelle de la puissance P(t) dans l'équation (4.8) provoque une variation temporelle de la position du point d'auto-focalisation $z_f(t)$. Comme illustré dans la Figure 4.7, chaque tranche temporelle (schématisée par les segments 1,2 et 3) du faisceau subit un effet dû à une lentille Kerr proportionnelle à sa puissance P(t). La tranche de plus forte intensité va focaliser sur la distance la plus courte, encore appelée distance d'auto-focalisation. Le segment central 1 de l'impulsion correspond à une focale de la lentille Kerr courte, les segments 2 et 3 à des focales plus longues. Pour une impulsion gaussienne, la même variation de la distance d'auto-focalisation a lieu à l'avant et à l'arrière de l'impulsion. En un point de l'axe de propagation situé au delà de la distance d'auto-focalisation on voit passer deux foyers successifs. Cette dépendance temporelle de la position du foyer est appelée foyer translaté dans la littérature (" moving focus "en anglais). Cette redistribution temporelle des intensités sur l'axe de propagation a deux conséquences: d'une part la durée de l'impulsion au centre du faisceau est plus courte que dans les ailes, d'autre part le profil temporel observé pendant le passage de l'impulsion en un point donné de l'espace est fortement déformé par rapport au profil temporel initial.

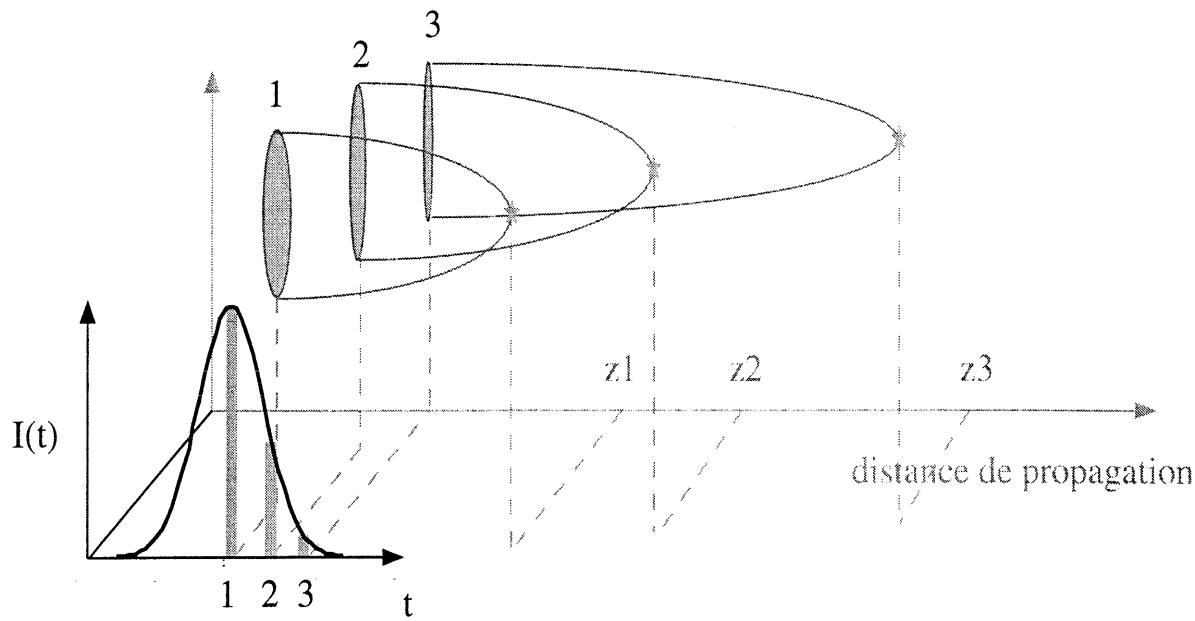


Figure 4.7: Illustration schématique de la variation de la lentille Kerr avec le temps durant l'impulsion: auto-focalisation forte au maximum (1), lentille moyenne sur le flanc (2) et lentille faible dans les ailes (3).

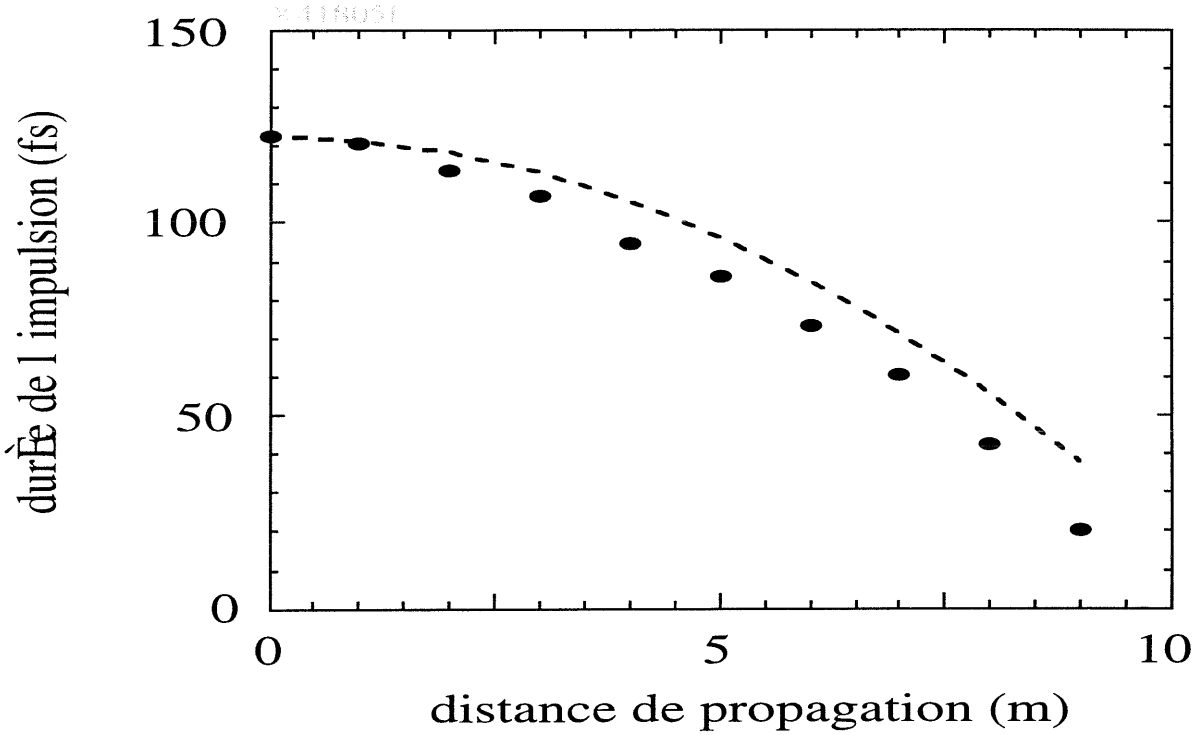


Figure 4.8: Compression de l'impulsion par effet Kerr. Trait pointillé: modèle de Marburger. Points: simulation. Paramètres de l'impulsion initiale : $\Delta\tau$=120 fs , w_0=2 mm, W= 0,85 mJ et $n_{2,i}$=3,2 10^{-19} cm^2/W.

La Figure 4.8 montre une simulation de cette compression temporelle durant l'auto-focalisation. La durée de l'impulsion est déterminée sur l'axe de propagation. Les deux courbes permettent la comparaison de la durée de l'impulsion mesurée à mi-largeur obtenue par la simulation et par l'expression semi-analytique donnée par Marburger [4.10]

$$I_{out}(t) = I_{in}(t)\left[1-\left(\frac{z}{z_f}\right)^2\right]^{-0,625}$$

La réduction de la durée de l'impulsion reflète l'augmentation de la fluence avec la progression en z. En effet, seule la partie centrale de l'impulsion initiale qui est supérieure à la puissance critique est focalisée sur l'axe. La durée de l'impulsion est donc réduite au centre du faisceau et augmentée dans la périphérie du faisceau. La comparaison montre que notre simulation donne une compression légèrement plus forte que celle prédite par Marburger .

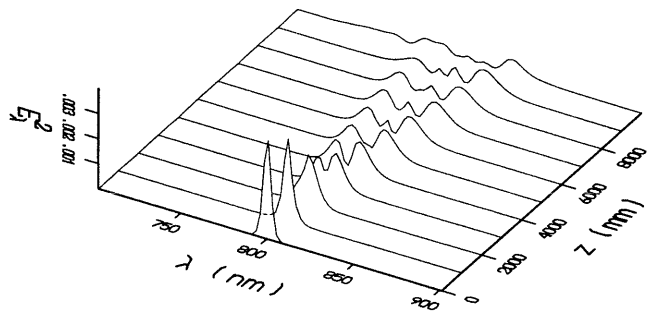


Figure 4.9: Simulation de l'évolution spectrale dans une géométrie initialement parallèle. L'impulsion initiale est définie par $\Delta\tau$=150 fs , w_0=6,5 mm, W= 50 mJ, $n_{2,i}$=3.2 10^{-23} cm^2/W et $n_{2,R}$=3,2 10^{-23} cm^2/W.

L'évolution spectrale de l'impulsion durant la propagation est montrée sur la Figure 4.9. Le spectre est calculé sur l'axe de propagation. Nous observons d'abord une modulation de phase comparable à celle montrée dans le spectre de la Figure 4.3 avec l'apparition d'un double pic, puis une explosion du spectre qui est liée à la croissance de l'intensité accompagnée d'une forte compression temporelle de l'impulsion au centre du faisceau. Cette modulation spectrale montre des aspects similaires à ceux observés dans les expériences présentées dans le chapitre 5 de cette thèse et se retrouve également dans le modèle établi par Massanah et al [4.10] . Ce modèle analytique décrit la compression spatio-temporelle d'une impulsion par une lentille Kerr et donne l'évolution du rayon laser dans le régime Kerr, en faisant l'hypothèse d'une contraction homothétique du faisceau (un profil gaussien initial se rétrécit transversalement en gardant un profil gaussien). Nous discuterons en 4.5 les limites de ce modèle.

4.3.2 Effet Kerr instantané et retardé

Avec une durée d'impulsion inférieure à une centaine de femtosecondes il est nécessaire de prendre en compte la réponse non-instantanée du milieu. Quand on réduit la durée de l'impulsion, la largeur spectrale s'accroît et permet un meilleur couplage entre champ laser et mouvement moléculaire. Cette réponse moléculaire est plus lente que la réponse électronique. Pour l'impulsion laser une telle réponse retardée signifie que une partie d'une impulsion peut être exposée à la polarisation non-linéaire induite par une partie précédente de l'impulsion. L'effet Kerr non-instantané provoque ainsi un couplage entre plusieurs tranches temporelles de l'impulsion et déforme donc son profil durant la propagation.

Il n'est pas possible de traiter ce problème de façon analytique. La simulation permet de suivre l'évolution du profil temporel sur l'axe et de mettre en évidence l'action de l'effet de la réponse retardée. La Figure 4.10 compare la propagation dans un milieu avec une réponse instantanée décrite par $n_{2,i}$=3.2 10^{-19} W/cm^2 (a) et c)) avec la propagation dans un milieu avec une réponse instantanée de $n_{2,i}$ = 1.6 10^{-19} W/cm^2 et une réponse non-instantanée de $n_{2,R}$= 1.6 10^{-19} W/cm^2 avec un temps de réponse τ = 70 fs (b) et d)). Le choix du rapport $n_{2,i}/ n_{2,R}$ =1 comparé avec $n_{2,i}/ n_{2,R}$ =3 utilisé pour la simulation de la propagation dans l'air nous permet de mettre en évidence l'effet d'une réponse retardée.

Comme un changement dans la non-linéarité change toute la propagation, les distances d'auto-focalisation sont différentes pour les deux exemples. Les graphes a) et b) montrent le profil temporel normalisé sur l'axe à des positions z=0, 4, 6 et 8 m pour l'effet Kerr instantané a) et à des positions z=0, 8, 12 et 16 m pour b) dans le cas de l'effet Kerr non-instantané. En maintenant la somme $n_{2,i} + n_{2,R}$ = const, une augmentation de la contribution retardée réduit la non-linéarité Kerr et conduit à une augmentation de la distance d'auto-focalisation. L'action de l'effet Kerr retardé sur le profil de l'impulsion conduit à une diffraction du front avant de l'impulsion et à une augmentation des intensités situées à l'arrière, car la non-linéarité Kerr prend un temps τ de réponse avant de devenir importante. Par exemple, pour une durée d'impulsion de l'ordre de la durée de la constante de retard de l'effet non-instantané, l'arrière de l'impulsion voit une non-linéarité
plus importante que l'avant de l'impulsion. Soulignons que en valeur absolue, l'intensité de l'impulsion sur l'axe diminue rapidement avec l'augmentation de l'importance de la réponse non-instanée pour une distance donnée: le rapport entre les champs à z=8 et 0 m est 8,9 dans le cas de la réponse instantanée, et le rapport à z=8 et 0 m dans le cas de la réponse non-instantanée est 2,7 . Près du point d'auto-focalisation, le rapport entre champ initial et champ à 8 m pour l'effet Kerr instantané est 8,9 . Pour l'effet Kerr non-instantané le rapport à 16 m est 191 .
La comparaison des spectres montre une évolution initiale qui est comparable pour l'effet Kerr pur et l'effet Kerr retardé. La modulation spectrale en présence de la réponse non-instantanée devient plus forte à cause du raidissement de l'impulsion. On voit également apparaître une légère asymétrie dans le cas de l'effet Kerr retardé avec un décalage de l'intensité spectrale vers le rouge.

Nous venons de voir que l'étude de la diffraction et de l'effet Kerr montre que la compression spatiale et la compression temporelle sont inséparablement liées. Dans tout ce qui précède, la limite de propagation est dictée par le collapse du faisceau à la distance d'auto-focalisation. En réalité, le collapse de cette compression spatio-temporelle de l'impulsion est détourné par le déclenchement de l'ionisation. Pour comprendre l'action de l'ionisation sur les caractéristiques de l'impulsion, nous procéderons comme avec l'analyse de l'effet Kerr. Nous étudierons d'abord l'ionisation

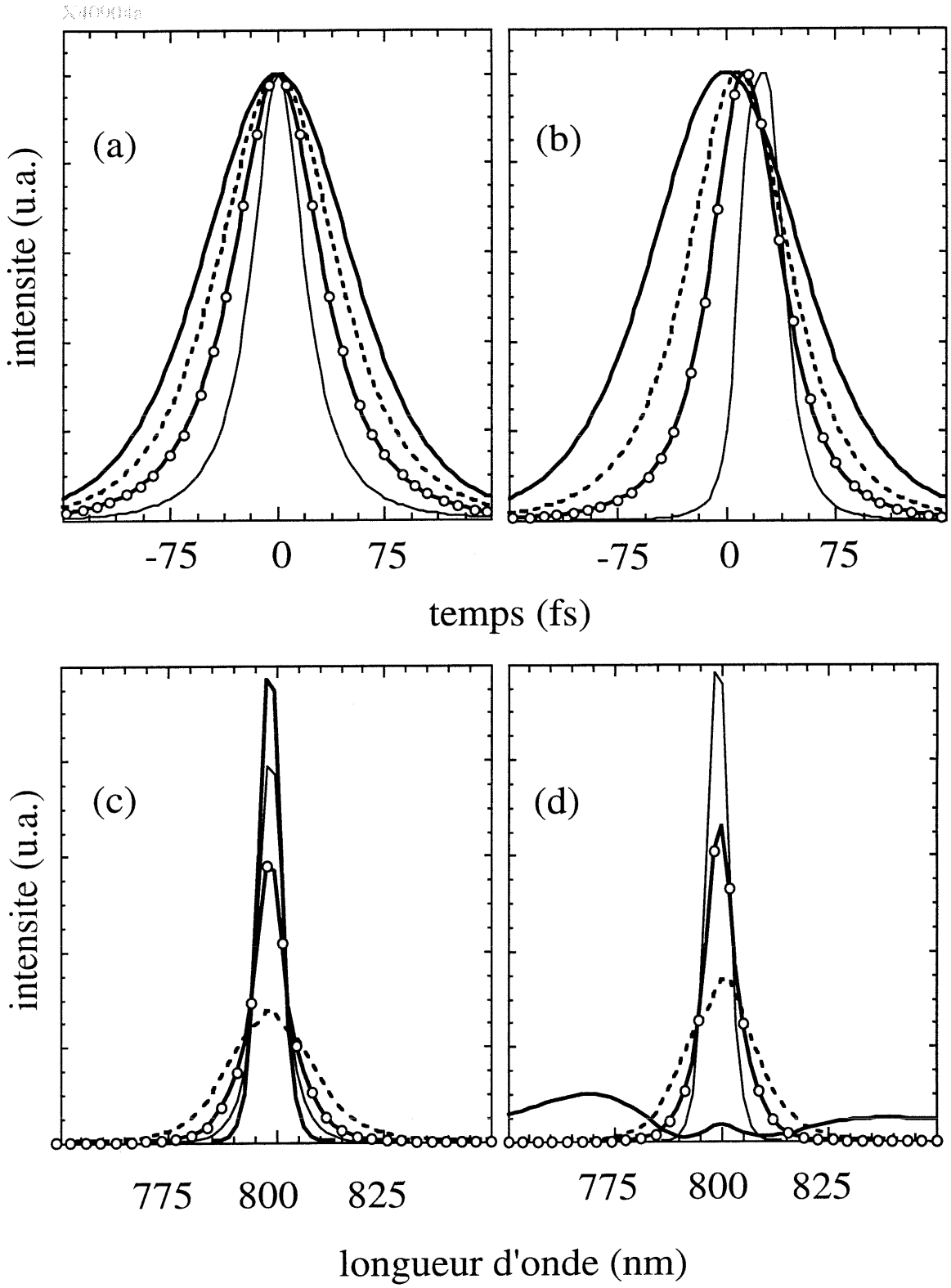


Figure 4.10: Déformation de l'impulsion pendant la propagation dans un milieu Kerr instantané et non-instantané avec la variation spectrale correspondante. Profil temporel pour l'effet Kerr a) instantané et b) non-instantané, spectre pour l'effet Kerr c) instantané et d) non-instantané. Les distances de propagation des courbes successives sont pour l'effet Kerr instantané (a) et c)) z=0, 8, 12, 16 m et pour l'effet non-instantané (b) et d)) z=0, 4, 6, 8 m. L'impulsion initiale est définie par $\Delta\tau$=120 fs , r=2 mm, W= 2 mJ, $n_{2,i}$=3,2 10^{-19} cm^2/W pour (a) et c)) et $n_{2,i}$=1,6 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,R}$=1,6 10^{-19} cm^2/W pour (b) et d)).

seule, ensuite l'ionisation et la diffraction et finalement les trois effets diffraction, effet Kerr et ionisation seront pris en compte simultanément.

4.4 Ionisation pure sans diffraction

Par analogie avec le modèle à une dimension de l'effet Kerr décrit dans le paragraphe 4.1, la propagation de l'impulsion dans un milieu ionisé se réduit à une multiplication du champ initial par un facteur complexe qui contient la phase introduite par le plasma des électrons :

$$E(z,t) = E(z - dz,t) \cdot \exp(ik_0 \Delta n(t) dz)$$

où $\Delta n(t)$ est donné par l'équation (2.13). La Figure 4.11 montre la variation spectrale d'une impulsion après propagation dans un milieu ionisable comme l'air. En contraste avec l'auto-modulation spectrale introduite par l'effet Kerr instantané qui génère des nouvelles fréquences pendant toute la durée de l'impulsion (Figure 4.2), l'ionisation est un effet asymétrique dans le temps et génère des fréquences nouvelles seulement pendant le front montant de l'impulsion. En effet, les molécules sont ionisées pendant la croissance du champ mais ne se recombinent pas avec les électrons, du moins à une échelle de temps d'une centaine de femtosecondes correspondant à la durée de l'impulsion. Par conséquent, on observe uniquement des fréquences positives $\Delta\omega = -d\phi_{ion}(t)/dt = \alpha\, d(\Delta n(t))/dt$ et donc un décalage du spectre vers le bleu (rappelons que la constante α est négative).

Il est facile d'observer expérimentalement cet effet de décalage vers le bleu: pour un faisceau focalisé avec une lentille de courte focale, l'ionisation domine l'effet Kerr et on peut décrire le décalage spectral de l'impulsion avec un système à une dimension. Nous avons utilisé ce décalage spectral pour mesurer la durée de l'impulsion. La variation du décalage du spectre d'un faisceau test en fonction du retard entre une pompe et un test

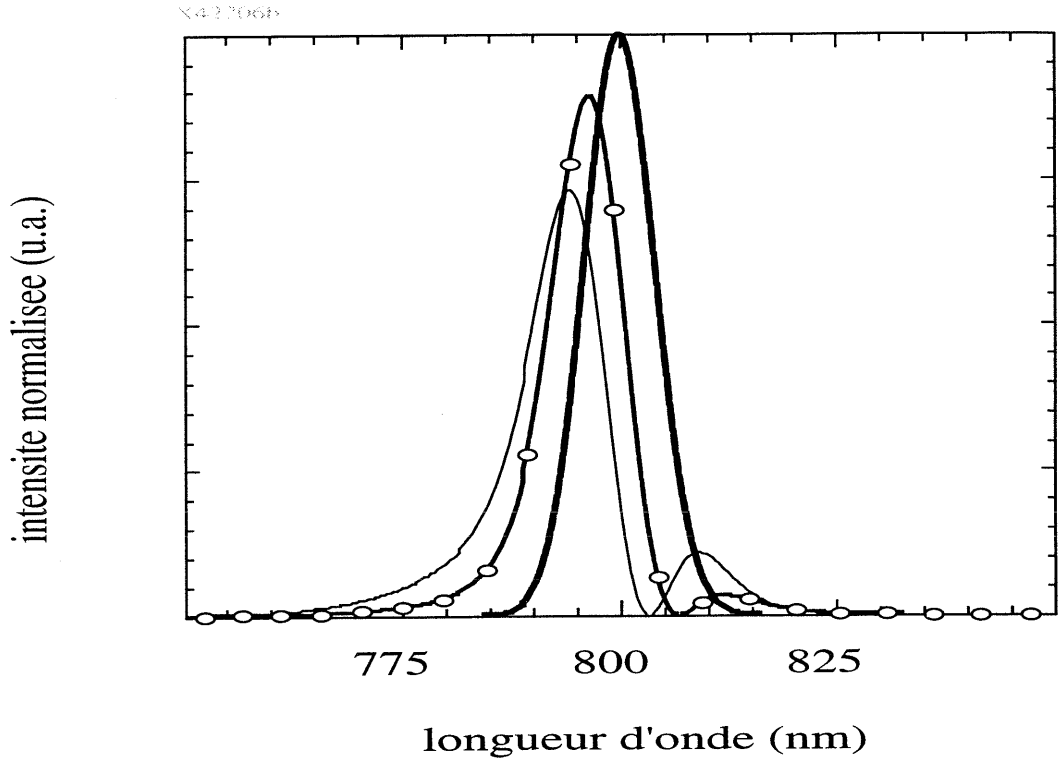


Figure 4.11: Illustration du changement spectral d'impulsion après propagation dans un milieu ionisable. La courbe continue représente le spectre initial, la courbe continue avec cercles montre le spectre après 4 mm de propagation et la courbe continue fine le spectre après 1 cm de propagation. Le maximum du changement d'indice est $\Delta n=3{,}2\ 10^{-5}$. L'impulsion initiale possède une durée de $\Delta\tau=100$ fs. L'ionisation est modélisée par le modèle multiphotonique (voir le paragraphe 2.3) avec p=10.

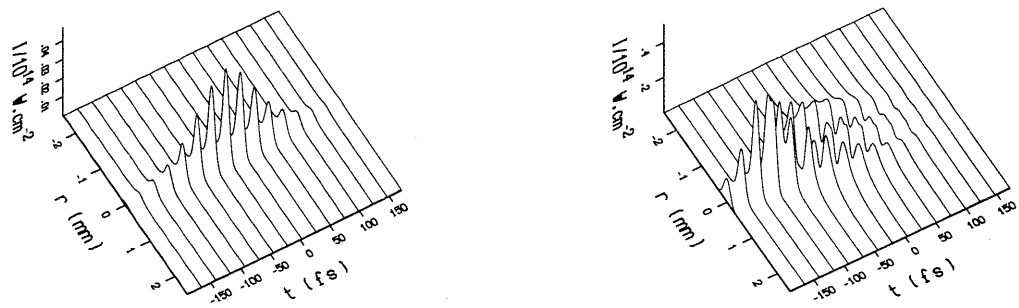
est proportionnel à $\int_{-\infty}^{\infty} I(t) I^{p}(t-\tau) dt$ dans le régime de l'ionisation multiphotonique [4.11].

La courbe du décalage spectral en fonction de τ peut être utilisée pour donner une estimation de la durée temporelle de l'impulsion par meilleur ajustement avec une impulsion gaussienne. La déformation spectrale d'une impulsion focalisée peut être exploitée également pour caractériser la dynamique d'ionisation [4.12].

4.5 Ionisation avec diffraction

La variation du profil transversal I(r) de l'intensité du faisceau provoque comme dans un milieu Kerr une déformation spatiale du faisceau à cause du changement de phase introduite par ionisation. Le signe négatif de la variation d'indice (paragraphe 2.3)

amène à un effet de lentille divergente. La Figure 4.12 montre la distribution spatio-temporelle de l'intensité à z=0.95 m pour une simulation d'une impulsion focalisée avec une focale de f=1m. Le profil spatio-temporel initial est gaussien. Dans la Figure 4.12 a) l'impulsion est focalisée dans le vide, dans la Figure b) dans un milieu ionisable (air).



(a) (b)

Figure 4.12: Réfraction d'une impulsion au foyer d'une lentille de focale *f* = 1m dans un milieu ionisable. Comparaison de la distribution spatio-temporelle de l'intensité: a) focalisation dans le vide, b) focalisation dans un milieu ionisable comparable à l'air avec (p=9). L'impulsion initiale est définie par $\Delta\tau$=120 fs , r=2 mm et W=60 mJ.

La comparaison des deux Figures 4.12 a) et b) met en évidence l'effet du passage de l'avant de l'impulsion. Avant que l'impulsion n'atteigne son maximum, l'ionisation change l'indice par libération d'électrons. La deuxième partie de l'impulsion voit le changement d'indice et est diffractée dans un anneau avec un maximum local sur l'axe.

La simulation de la propagation montre l'impact de l'ionisation sur la forme temporelle de l'impulsion. Comme montré dans la Figure 4.13, l'ionisation est déclenchée une dizaine de centimètres en amont du foyer, elle limite l'intensité au centre de l'impulsion et diffracte ensuite considérablement le front arrière ce qui conduit au-delà du foyer à une modulation périodique dans l'arrière de l'impulsion - ce phénomène a été étudié récemment dans le travail de Esarey et al. [4.13]. L'ionisation est déclenchée au début de l'impulsion avec un front de montée rapide et demeure quasi-constante pendant le reste de l'impulsion (voir la Figure 2.4 sur la fonction de réponse d'un milieu ionisable). Comme illustré dans la Figure 4.12 b), le couplage des effets spatiaux et temporels devient rapidement complexe.

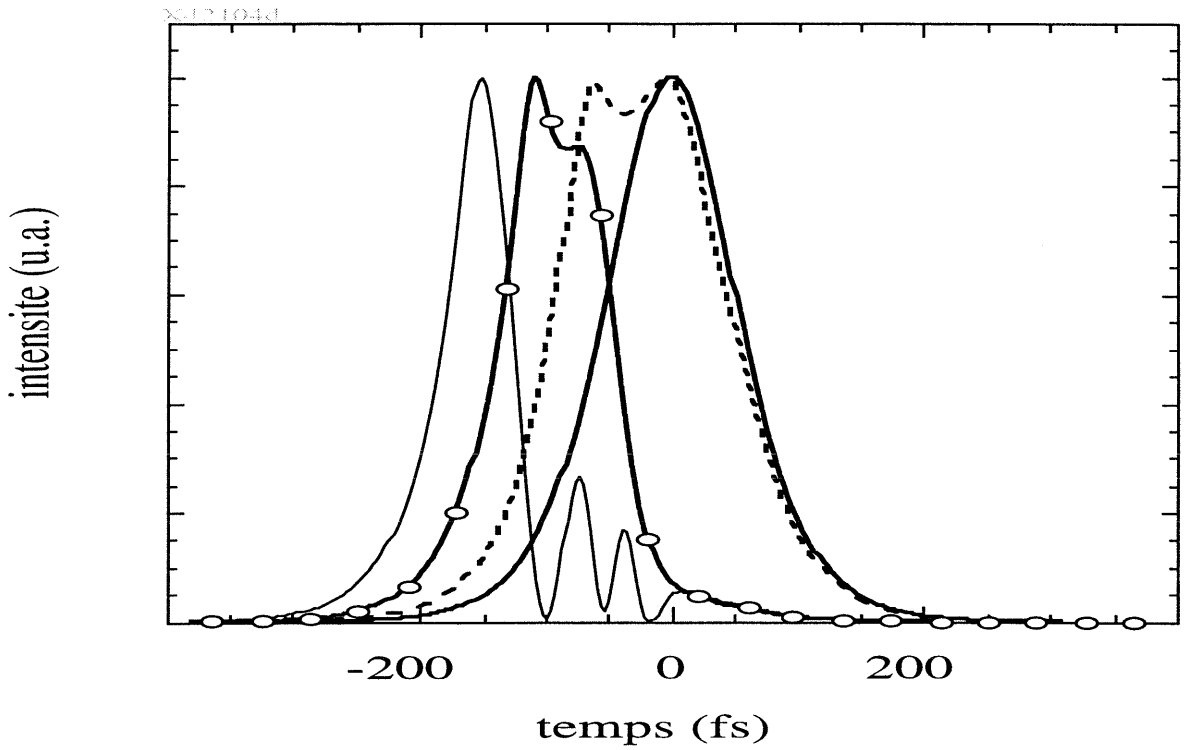


Figure 4.13 : Evolution d'une impulsion initialement gaussienne, focalisée par une lentille de focale f=1m dans un milieu ionisable. Trait continu z=0.0m, pointillé z=0.9 m, continu avec cercle z=0.95 m et trait fin z=1.2 m. Les paramètres de l'impulsion initiale sont identiques à ceux de la Figure précédente.

Nos simulations de l'action de l'ionisation peuvent être comparées avec quelques observations expérimentales et numériques données dans la littérature et montrent un accord avec les effets observés. La défocalisation décrite plus haut dans les simulations est compatible avec les études de Kandidov et al. [4.14]. Les auteurs observent un décalage spectral de quelques nanomètres dans l'argon à 1 mbar, pour une impulsion de 100 fs focalisée par une focale f=1,7 cm. Le décalage mesuré vers le bleu est plus faible que celui que nous calculons par un modèle unidimensionel à cause de la réduction de l'intensité au centre de l'impulsion.

Sergeev [4.15] montre que dans un modèle sans effet Kerr mais qui inclus la diffraction, l'ionisation et la dispersion, qu'un mode autoguidé peut se produire pour un certain choix de paramètres. Dans ce cas, une courbure convergente du front de phase est obtenue car le retard des fortes intensités par rapport aux intensités plus faibles dans les ailes. Comme le changement d'indice dû aux électrons libres Δn_{el} est négatif, le centre se propage à une vitesse de phase réduite et une lentille est formée. Dans les conditions

choisies dans cette thèse, cet effet est moins prononcé car le Δn_{Kerr} compense la variation d'indice apportée par l'ionisation. Le couplage de l'impulsion dans un mode d'autoguidage s'établit par une interaction dynamique entre l'ionisation et l'effet Kerr.

En conclusion, les simulations de la propagation d'une impulsion dans un milieu ionisable montrent que l'ionisation affecte la distribution spatio-temporelle de l'impulsion de plusieurs façons :

1. une défocalisation limite l'intensité crête et par suite la densité des électrons libres,
2. elle raidit le front arrière de l'impulsion et crée un creux au centre de l'impulsion,
3. elle déplace la position du foyer vers la lentille,
4. elle réduit l'extension en z du volume focal.

4.6 Diffraction, effet Kerr et ionisation

Le but de la résolution numérique de l'équation non-linéaire de propagation est l'analyse des rôles respectifs de la diffraction, de l'effet Kerr et de l'ionisation dans leur interaction. Nous montrerons d'abord que cette interaction permet d'établir des modes autoguidés. Ensuite nous étudierons deux détails liés aux filaments : leurs naissance en fonction des paramètres initiaux et la formation des structures annulaires dans le voisinage du point d'auto-focalisation.

4.6.1 L'autoguidage - équilibre dynamique entre diffraction, effet Kerr et ionisation

Afin de simuler le phénomène d'autoguidage dans l'air, nous utilisons un faisceau laser dont l'intensité initiale I_0 est située au-dessus de la puissance critique pour l'auto-focalisation mais inférieure au seuil de l'ionisation. L'impulsion se propage d'abord sous l'influence de l'effet Kerr seul, puis sous l'action compétitive entre l'effet Kerr et l'ionisation une fois que l'intensité crête atteint le seuil d'ionisation. La lentille Kerr induite par le profil spatial initialement gaussien redistribue vers l'axe de propagation

les intensités des ailes qui sont supérieures à la puissance critique. L'intensité au centre du faisceau s'accroît avec la propagation jusqu'au seuil de l'ionisation. L'ionisation introduit, par le changement d'indice $\Delta n = -\omega_{pl}^2/2\omega_0^2$, une phase locale de signe opposé à celui de la phase induite par l'effet Kerr $\Delta n = n_2 I$. Par conséquent, des parties de l'impulsion sont réfractées et, selon les conditions initiales, peuvent soit se refocaliser soit diffracter complètement.

Nous montrons dans ce chapitre que les traits macroscopiques des filaments mentionnés dans l'introduction sont reproduits par la résolution numérique de l'équation (3.5). D'abord, nous simulons l'autoguidage assisté par une lentille, comme illustré dans la Figure 4.14. Nous obtenons un diamètre du mode autoguidé de 100 µm, une énergie dans le filament entre 2 et 10 % de l'énergie initiale, une intensité de 6 10^{13} W/cm^2 et une durée de l'impulsion de l'ordre de 20 fs. L'évolution de la mi-largeur du faisceau est présentée dans la Figure 4.14 a). Le début de l'auto-focalisation en présence d'une

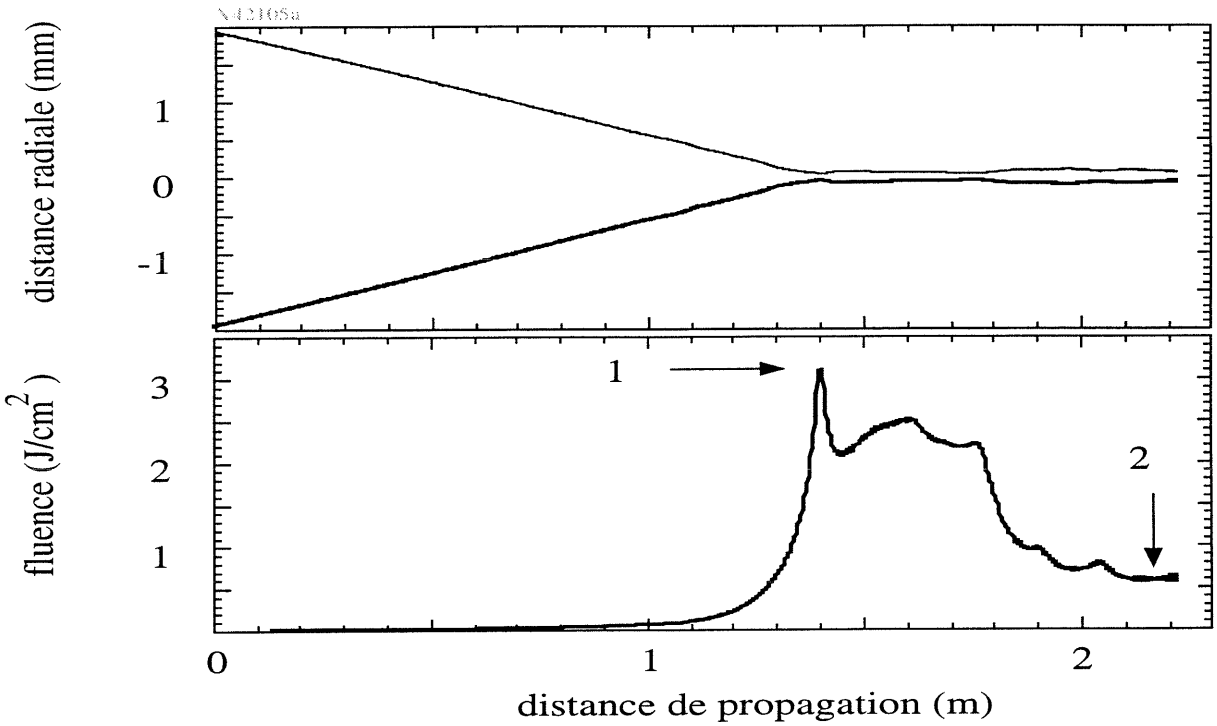


Figure 4.14: L'évolution du diamètre à mi-largeur et de l'énergie en fonction de la distance de propagation. L'impulsion initiale est définie par $\Delta\tau$=120 fs , w_0=2mm, W= 1,5mJ, $n_{2,i}$=2,8 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,R}$= 10^{-19} cm^2/W et focalisée avec une lentille de f =2 m.

lentille peut être calculée pour une réponse instantanée de l'effet Kerr et un profil gaussien initial. Elle donne z_{fR} = 1,3 m et elle est comparable avec le résultat de la simulation. La Figure 4.14 b) montre l'évolution de la fluence en fonction de la distance de propagation. L'énergie concentrée autour de l'axe de propagation est maximale au voisinage du début de la filamentation (point 1 dans Figure 4.14 b)) et atteint autour de 8% de l'énergie initiale. Elle décroît avec la distance avant de se stabiliser à 1-2 % de l'énergie initiale (point 2 dans Figure 4.20 b)).

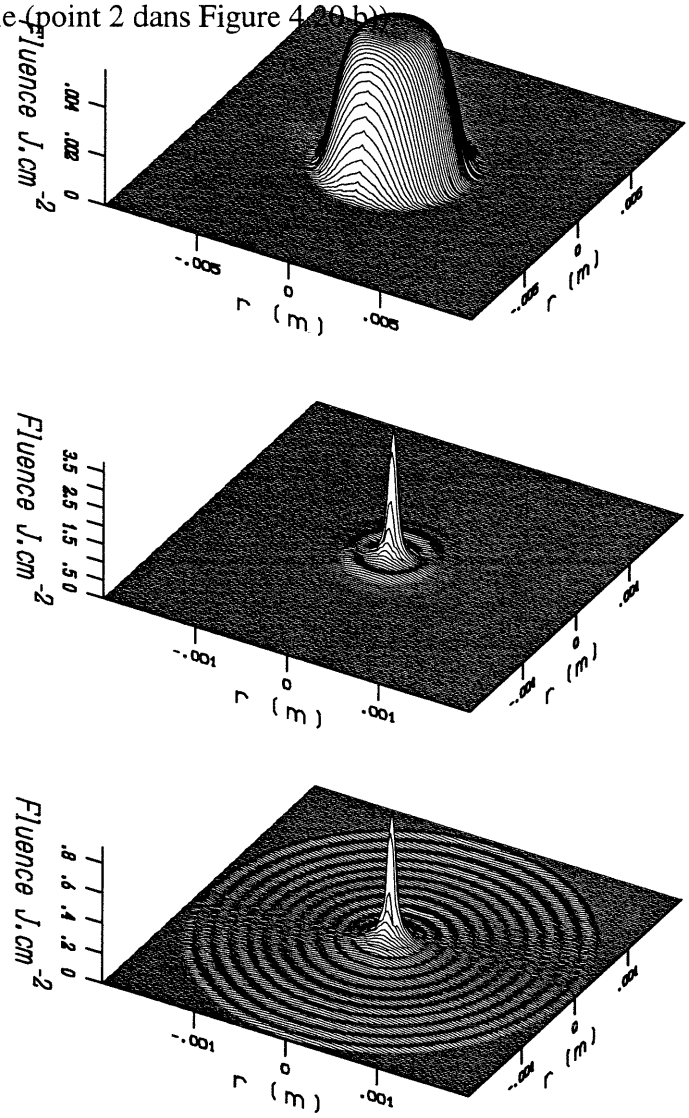


Figure 4.15: Evolution de la distribution spatiale pour trois distances de propagation différentes: a) 0 , b) 2 m et c) 2,7 m. L'impulsion initiale est définie par $\Delta\tau$=120 fs , w_0=6 mm, W= 2 mJ, $n_{2,i}$=2,4 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,R}$=0,8 10^{-19} cm^2/W et focalisée avec une lentille de f = 2m. Pour une meilleure correspondance avec le faisceau diaphragmé dans l'expérience le profil spatial à l'entrée est approximé par une super-gaussienne.

L'évolution spatiale de l'impulsion avec la propagation est illustrée dans la Figure 4.15 pour trois positions différentes : a) le profil initial sous forme d'une fonction super-gaussienne pour rendre compte d'un diaphragme qui limite la taille du faisceau, b) le faisceau au foyer de la lentille et le faisceau en mode autoguidé après 70 cm de propagation. Dans la Figure 4.15 b) on voit apparaître des anneaux. Ils ont leur origine autour du point d'auto-focalisation et ils diffractent durant la propagation comme illustré dans la Figure 4.15 c). Il faut noter que l'absence des anneaux dans la périphérie du graphe est un effet numérique lié à la représentation graphique des données.

Maintenant nous simulons la propagation d'un faisceau initialement parallèle. Dans ce cas nous nous sommes limités à la simulation des diamètres initiaux inférieurs à 12 mm à cause du grand nombre de points requis pour le maillage. Dans les expériences, nous utiliserons des diamètres de 20-25 mm. Dans la simulation, le mode autoguidé se forme après 10 m et possède un diamètre de 100 μm à mi-largeur. La Figure 4.16 montre l'évolution temporelle de l'impulsion normalisée à son maximum en fonction de la distance de propagation. Nous retrouvons la compression Kerr avant le seuil d'ionisation et observons près du point d'auto-focalisation la répartition de l'impulsion en double impulsion. Pour ce choix de paramètres du milieu non-linéaire, la deuxième impulsion diffracte rapidement et une seule impulsion persiste après deux mètres de propagation. La diffraction de la deuxième impulsion est cependant très sensible aux paramètres de la non-linéarité - en particulier au rapport de l'indice de réfraction non-linéaire instantané et retardé $n_{2,i}/n_{2,R}$. Souvent, deux impulsions coexistent sur de longues distances. Nous remarquons également, qu'il serait nécessaire d'inclure la dispersion dans la simulation quand on analyse la propagation de l'impulsion auto-comprimée sur une distance supérieure à quelques centimètres au delà de la distance d'auto-focalisation.
Afin de compléter la description du mode autoguidé, l'évolution spectrale est illustrée dans la Figure 4.17 dans le cas de la propagation d'un faisceau initialement parallèle. L'auto-modulation de phase caractérise le début de la propagation. L'élargissement du spectre avec la compression spatio-temporelle de l'impulsion devient important près du foyer et durant la propagation en mode autoguidé le spectre varie fortement et présente un caractère erratique. On peut cependant noter qu'une certaine récurrence quasi-périodique dans la forme des spectres est observée pour certains choix de

paramètres

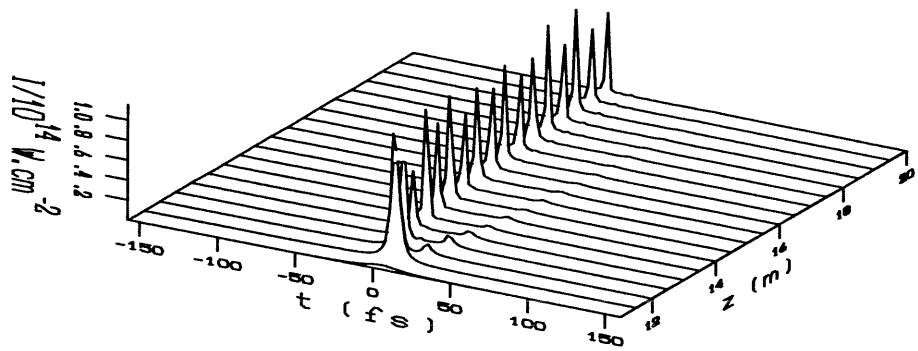


Figure 4.16: Evolution de l'impulsion avec l'auto-focalisation. Faisceau initialement parallèle. Les impulsions sont normalisées à leur valeur maximale. L'impulsion initiale est définie par $\Delta\tau$=120 fs , w_0=6 mm, W= 2 mJ, $n_{2,i}$=2,4 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,R}$=0,8 10^{-19} cm^2/W.

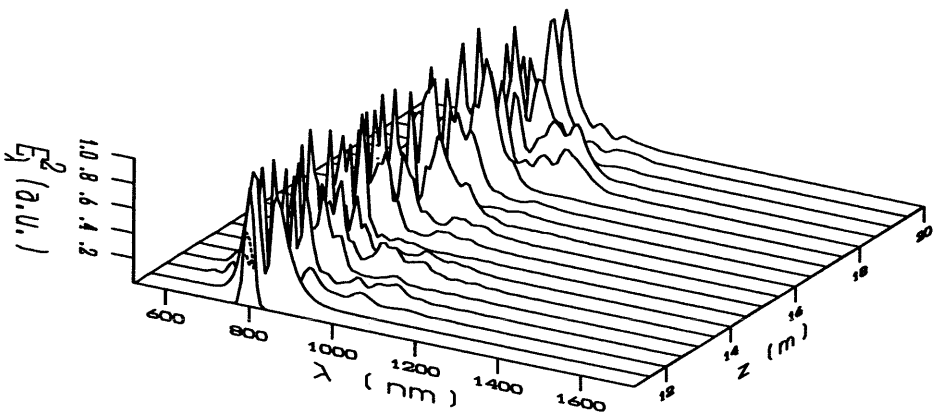


Figure 4.17: Evolution spectrale de l'impulsion en fonction de la distance de propagation pour un faisceau initialement parallèle. Les spectres sont normalisés à leur valeur maximale. L'impulsion initiale est identique à celle de la Figure précédente.

4.6.2 La formation du filament

Pour arriver à la simulation des filaments présentés dans le paragraphe précédent il a fallu adapter les conditions initiales le plus proche possible de la réalité expérimentale: un profil super-gaussien et une réponse non-instantanée. Dans une extension de cette simulation il se pose naturellement la question : sous quelles conditions initiales peut-on s'attendre à observer un mode autoguidé ? L'espace des paramètres pour l'autoguidage est grand : la durée de l'impulsion, l'énergie, le diamètre, la focale de la lentille, la phase initiale, la non-linéarité et le niveau d'ionisation en fonction de la pression influencent de manière décisive l'évolution d'un faisceau pendant sa propagation. Vu le temps de calcul requis pour une simulation, il est impossible d'explorer complètement cet espace de paramètres. Ici nous présenterons donc seulement une étude de l'existence des filaments en fonction de trois paramètres : l'énergie de l'impulsion, la taille initiale du faisceau et la pression. Nous utilisons pour cette étude la configuration d'un faisceau convergent.

La Figure 4.18 montre la propagation d'un faisceau de ΔT= 120 fs , r=2 mm, $n_{2,i}$=2.4 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,R}$=0.8 10^{-19} cm^2/W pour trois énergies **W**=1, 2, 3 et 4 mJ. Pour une énergie de 1 mJ le faisceau diffracte après une refocalisation. En augmentant l'énergie, on obtient d'abord un quasi-filament avec des refocalisations multiples et puis un filament montrant peu de variations dans le profil spatial. Une série de simulations en fonction de l'énergie et de la pression est résumée dans la Figure 4.19 . Elle montre les fenêtres d'énergie pour lesquelles nous avons simulé un filament pour une pression donnée. Les modes autoguidés sont limités vers les énergies basses par la diffraction du faisceau comme illustré dans la Figure 4.16, vers les hautes énergies de chaque fenêtre par la limite en temps de calcul du modèle numérique, car les fortes énergies demandent un pas de discrétisation Δz de plus en plus petit. D'autre part nous savons de l'expérience que la limite de la filamentation est donnée par les inhomogénéités dans le profil transverse, un effet qui n'est pas pris en compte dans la simulation.

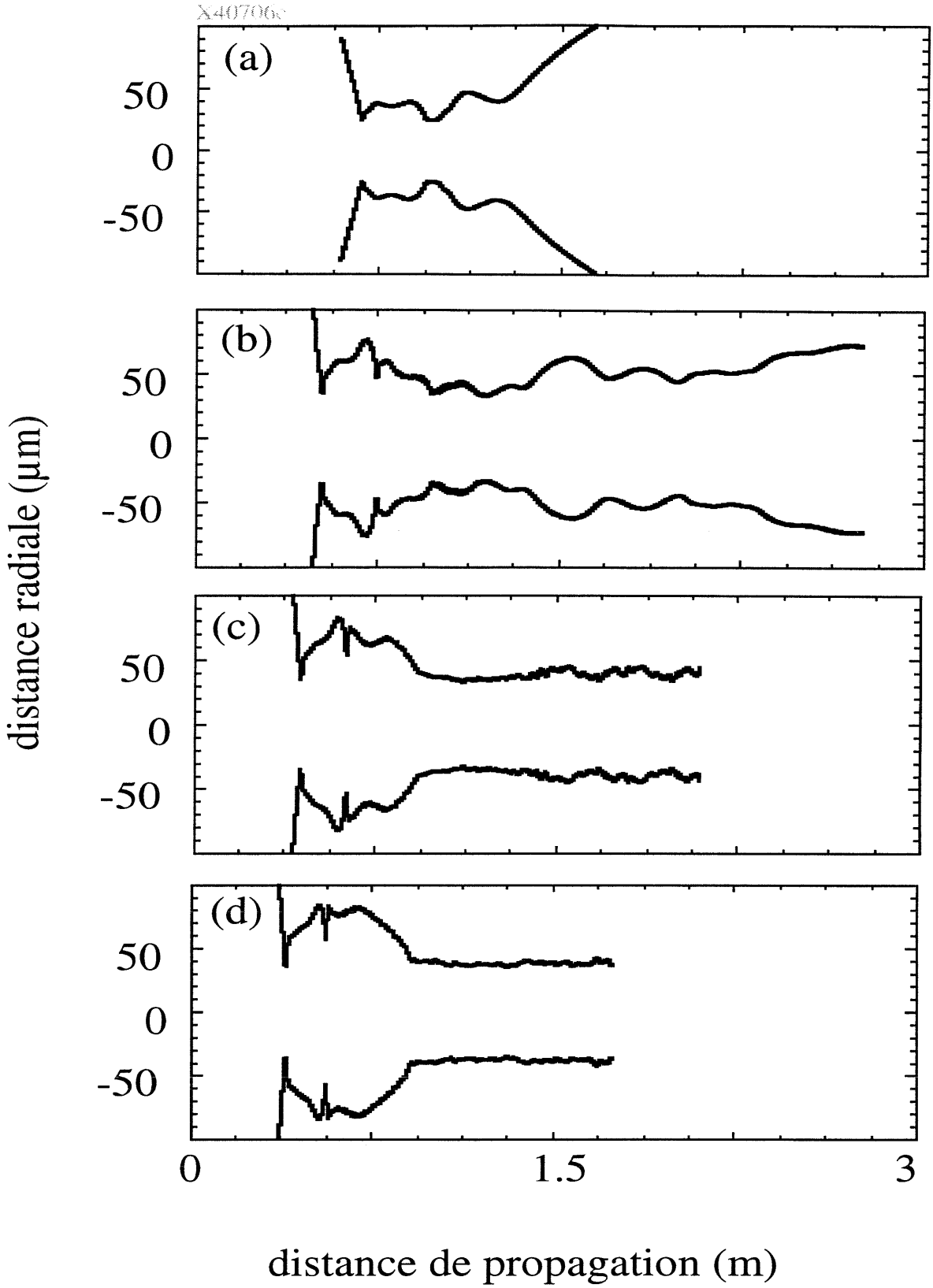


Figure 4.18: Evolution du diamètre à mi-largeur du mode autoguidé pour quatre énergies W différentes: a) 1 mJ, b) 2 mJ et c) 3 mJ d) 4 mJ. L'impulsion initiale est donnée par $\Delta\tau$=120 fs , w_0=2mm, Kerr retardé , $n_{2,i}$=2,4 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,R}$=0,8 10^{-19} cm^2/W et focalisée avec une lentille de focale f=1m. La largeur du faisceau initial est supérieure à la section montrée dans le graphe.

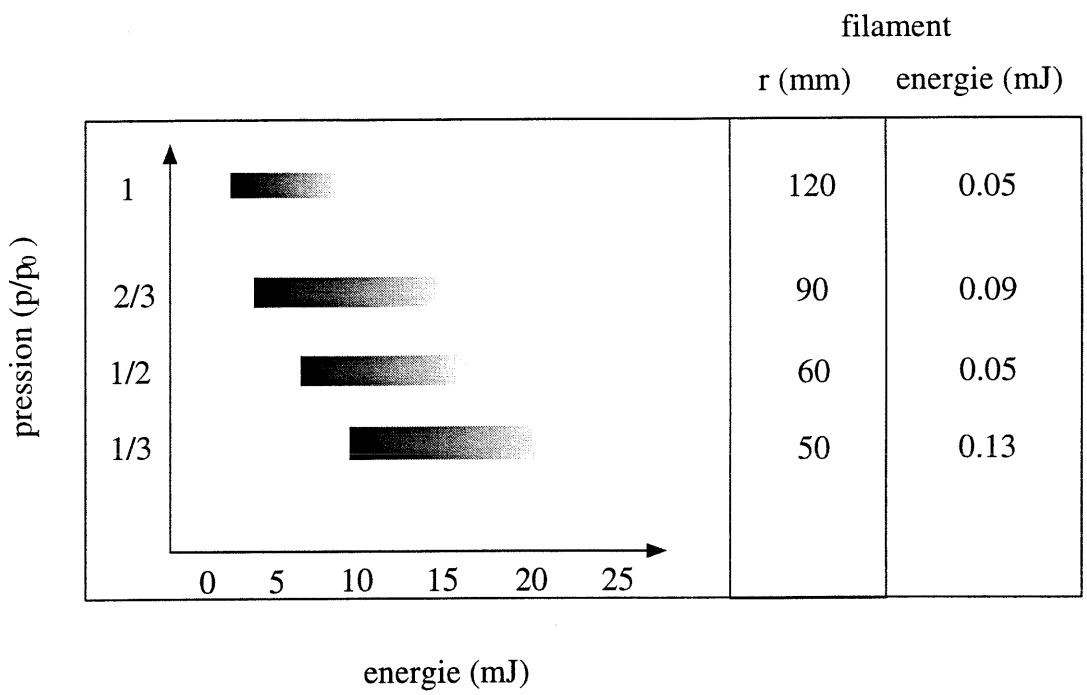


Figure 4.19: Planches de stabilité pour le mode autoguidé en fonction de l'énergie et de la pression. L'impulsion initiale est donnée par $\Delta\tau$=120 fs , w_0=2mm, Kerr retardé , $n_{2,i}$=2.4 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,R}$=0.8 10^{-19} cm^2/W et focalisée avec une lentille de f=1m.

La Figure 4.19 montre que le produit (énergie début de filamentation)*(pression) reste à peu près constant. Le produit énergie*pression est proportionnel à la non-linéarité décrite par exemple par l'intégrale B. Ce fait suggère que le début de l'établissement d'un filament est déterminé par la non-linéarité Kerr, et non par l'ionisation. Autrement dit, une réduction de l'énergie de l'impulsion à l'entrée peut être compensée par une augmentation de la pression pour assurer un mode autoguidé. Une deuxième observation concerne la réduction du diamètre du mode autoguidé quand on augmente l'énergie initiale de l'impulsion.

Il est instructif de suivre l'évolution de la fluence pendant la naissance d'un filament – cette fois en variant le diamètre initial du faisceau en gardant l'énergie constante. La Figure 4.20 résume les résultats. Une réduction de la taille du faisceau initial amène à un raccourcissement de la distance d'auto-focalisation indiqué par les flèches comme prédit par l'équation (4.8) et à un raccourcissement de la distance de refocalisation entre deux maxima : on passe de 285 mm pour 1 mJ par impulsion à 205 mm pour 2 mJ et 187 mm

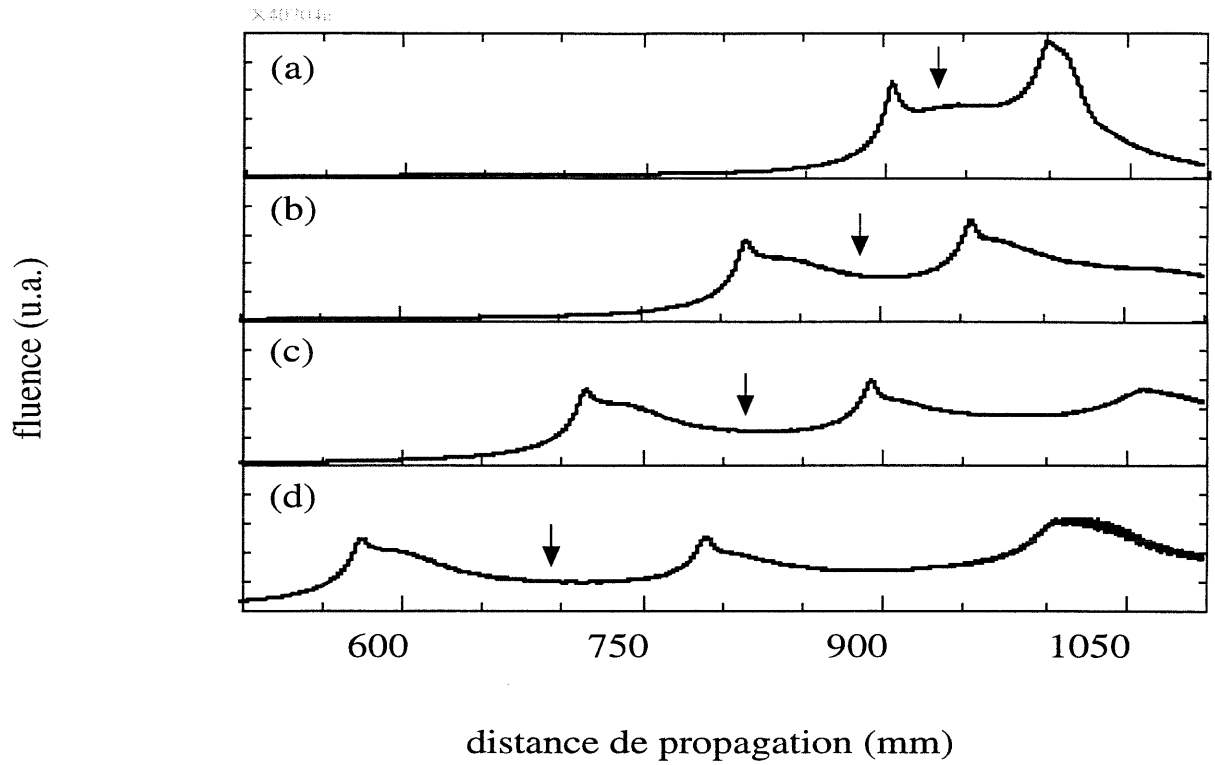


Figure 4.20: Formation des filaments en fonction du diamètre du faisceau initial. L'impulsion initiale est donnée par $\Delta\tau$=120 fs , W=2 mJ, l'indice de réfraction non-linéaire $n_{2,i}$=2,4 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,R}$=0,8 10^{-19} cm^2/W et focalisée avec une lentille de f=1m. La taille du faisceau initiale est donnée par (a) w_0= 3mm, (b) w_0= 2mm, (c) w_0= 1,5 mm et (c) w_0= 1mm.

dans le cas de 3 mJ. La taille finale du mode autoguidé reste autour de 100 µm dans les trois cas - le diamètre étant déterminé par une largeur moyenne sur les derniers 200 mm de propagation. La transition entre une seule refocalisation (voir la Figure 4.20 a)) et une multiple refocalisation (observée dans Figure 4.20 c)) correspond à la naissance d'un mode autoguidé tel qu'on peut le voir sur la Figure 4.18 . Cette observation suggère qu'un quasi-équilibre dynamique entre l'ionisation et l'effet Kerr stabilise la propagation des impulsions femtosecondes dans les filaments.

Les oscillations en diamètre dues à une refocalisation multiple sont mieux visibles dans la géométrie d'un faisceau initialement parallèle. Une telle simulation montre également la dynamique d'interaction entre l'effet Kerr et l'ionisation. Le point critique pour l'établissement d'un mode autoguidé est le moment où la forte compression du faisceau par l'effet Kerr déclenche l'ionisation. Une fois diffractées par l'ionisation, des parties de l'impulsion peuvent être refocalisées sur l'axe par l'effet Kerr. Comme nous avons déjà vu dans une géométrie de faisceau focalisé, un vrai équilibre ne peut pas s'établir du fait des temps de réponse différents des deux effets en compétition. Entre les deux

extrêmes du collapse par effet Kerr et la forte diffraction par ionisation s'établit un quasi-équilibre dynamique marqué par des phénomènes transitoires. Comme nous le montrerons dans le chapitre sur les résultats expérimentaux, nous avons pu vérifier cette nouvelle interprétation de l'autoguidage.

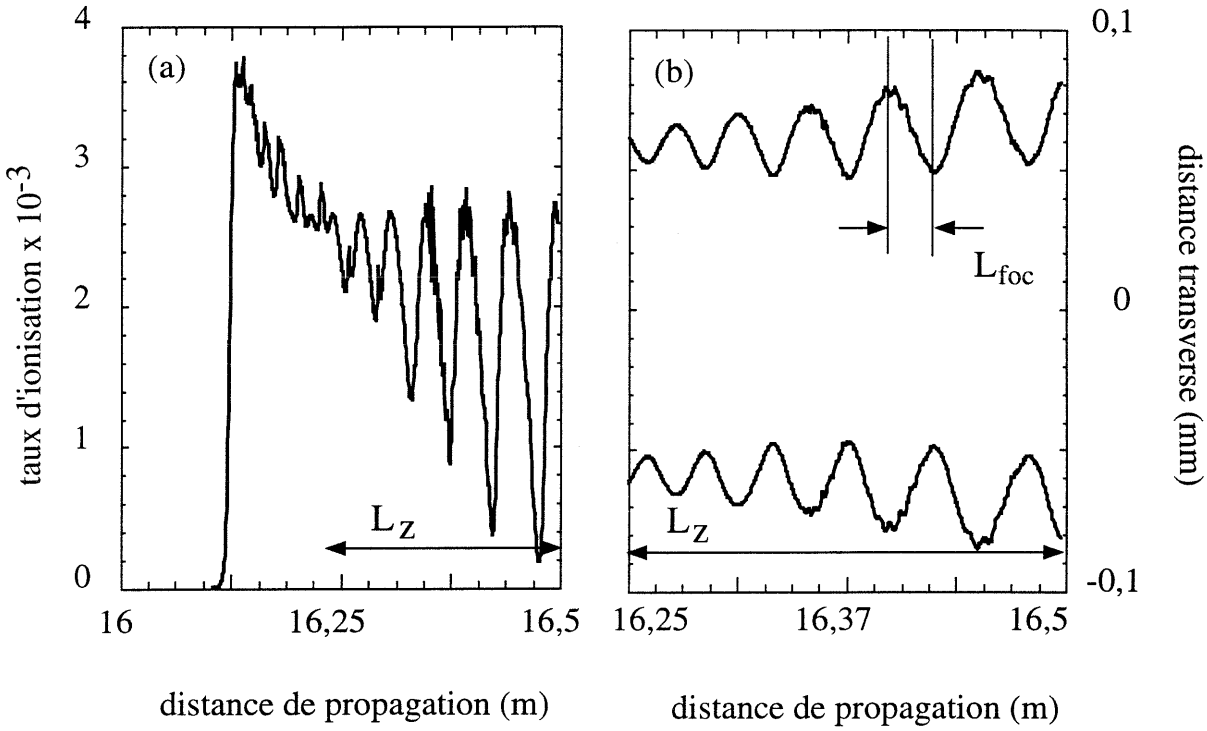


Figure 4.21: Simulation de l'instabilité de l'ionisation pour un faisceau en libre propagation. La Figure (a) présente le taux d'ionisation, (b) montre dans un détail de longueur L_z l'évolution de la mi-largeur du faisceau intégré en temps. Les paramètres de l'impulsion initiale sont: $\Delta\tau$=120 fs , w_0=2mm, W= 2 mJ, indices non-linéaire $n_{2,i}$=3,2 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,R}$=3,2 10^{-19} cm^2/W.

La Figure 4.21 a) montre l'évolution intégrée en temps de la densité d'électrons en fonction de la distance de propagation et l'évolution correspondante du rayon à mi-largeur pour un détail d'extension L_z dans la Figure 4.21 b). Les maxima de la densité électronique sont corrélés avec les oscillations du rayon à mi-largeur. Il en résulte également une oscillation entre anneaux et pics selon l'axe de propagation. La période spatiale L_{osc} des oscillations est estimée par la distance d'auto-focalisation d'un faisceau de 0.15 mm de diamètre et d'une puissance de 19,81 GW ce qui correspond aux maxima des oscillations observées sur la Figure 4.21 b). La distance d'auto-focalisation estimée donne z_f = 3 cm ce qui correspond bien aux 2.1 cm obtenus par la simulation. L'oscillation conduit de plus à une dissipation de l'énergie et amène à un ajustage de l'intensité dans le filament. La simulation montre une croissance du diamètre du filament et de l'amplitude de l'oscillation. Cela s'explique par la dissipation d'énergie

pendant la propagation: la lentille Kerr est affaiblie et des périodes de plus grandes longueurs sont nécessaires pour refocaliser l'intensité vers l'axe. Sur une distance de plus d'un mètre les oscillations disparaissent. Pour certaines conditions initiales, elles émergent à nouveau plus loin durant la propagation autoguidée.

La simulation montre un résultat supplémentaire sur la nature du plasma dans le mode autoguidé. Le filament consiste en une série de flashs d'ionisation disjoints avec une densité électronique relativement faible de 10^{15} cm^{-3} en moyenne. Ceci peut limiter l'efficacité d'un filament femtoseconde autoguidé utilisé comme paratonnerre optique [4.16].

4.6.3 Structures annulaires en présence de diffraction, d'effet Kerr et d'ionisation

Nous avons constaté la formation des structures annulaires en présence de la diffraction et de l'ionisation dans le chapitre précédent. La simulation numérique permet d'analyser une telle évolution durant la propagation dans un milieu non-linéaire de la distribution spatiale de l'intensité d'un faisceau initialement gaussien (voir la Figure 4.22). Le faisceau est focalisé en utilisant une lentille de focale f=1 m. Les images montrent les distributions radiales de l'intensité à a) 0.85 m, b) 0.95 m, c) 1.0 m et d) 1.5 m. Près du foyer des anneaux émergent à cause de l'ionisation et montrent la limite de l'approximation du profil spatial homothétique. Nous avons observé l'apparition de ces anneaux dans différentes expériences. Wood et al. [4.11] établissent un lien entre le décalage vers le bleu dans leurs spectres et la formation des structures annulaires. Peatross et al [4.17] proposent une distribution annulaire près du foyer pour expliquer la distribution spatiale de troisième harmonique dans leur expérience. L'importance de la distribution radiale et ainsi de la diffraction est illustrée par l'étude de la propagation dans le vide de faisceaux présentant différents profils transverses initiaux, comme résumé dans la Figure 4.23. Un faisceau gaussien diffracte rapidement, mais déjà un simple anneau conduit à un "foyer" étiré sur l'axe. La combinaison d'un maximum central avec un anneau permet de propager la plus grande partie de l'énergie du faisceau sur l'axe sur une distance supérieure à 10 longueurs de Rayleigh (z_R=6,28 mm pour le cas c)).

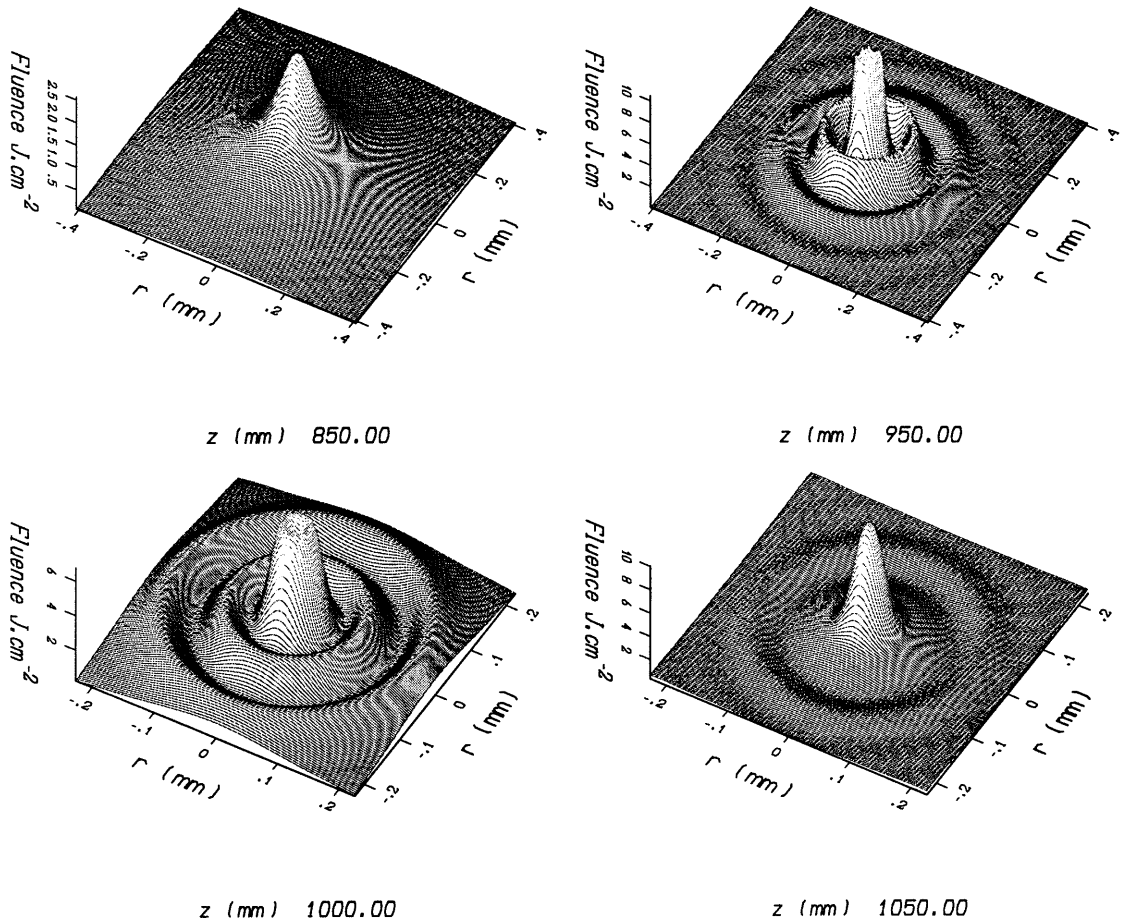


Figure 4.22: Structures annulaires autour du foyer d'auto-focalisation obtenues en présence de l'effet Kerr pour quatre positions successives z= 0,85 m, z=0,95 m , z=1 m , z=1,05 m . Paramètres de l'impulsion initiale : une lentille de focale f=1m, $\Delta\tau$=120 fs , w_0=2mm, W=0,85 mJ, $n_{2,i}$=3,2 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,r}$=3,2 10^{-19} cm^2/W.

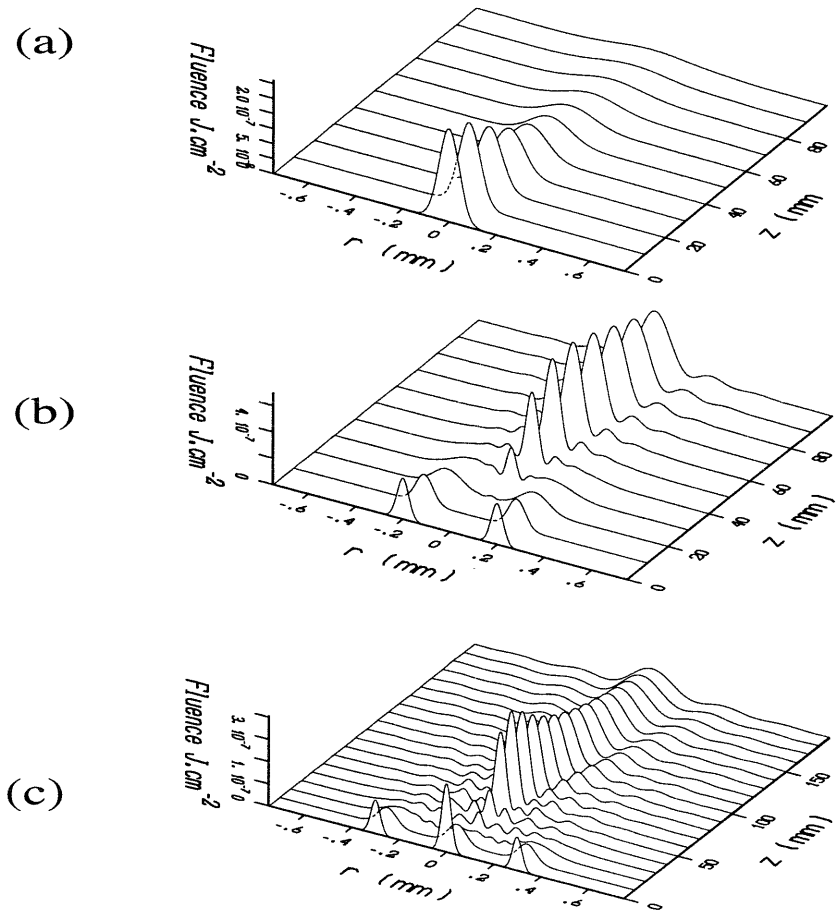


Figure 4.23: Rôle de la distribution radiale de l'intensité illustré par la propagation dans le vide: a) profil gaussien (w_0= 85 µm), b) anneau de 4 mm de diamètre (w_0= 50 µm), c) anneau de 6 mm (w_0= 40 µm) de diamètre avec un profil gaussien de double fluence au centre (w_0= 40 µm).

4.7 Conclusion

En résumant, nous avons étudié d'abord les caractéristiques de la diffraction, de l'effet Kerr et de l'ionisation et nous venons de voir comment ces effets interagissent dans un quasi-équilibre qui permet d'établir un mode auto-guidé de propagation. Dans trois

études détaillées nous avons montré qu'un filament se forme après une phase transitoire de multiples défocalisations et refocalisations et conduit finalement à un filament stable. Par conséquent, un filament est un mode autoguidé dans lequel des intensités sont capturées près de l'axe de propagation. Dans l'analyse de ce mode auto-guidé nous avons observé une oscillation quasi-périodique qui peut être observée en principe avec les méthodes expérimentales disponibles. Dans le chapitre suivant, nous présenterons les résultats expérimentaux qui permettent une comparaison avec les résultats numériques obtenus dans ce chapitre.

[4.1] J.-C. Diels, W. Rudolph : *Ultrashort laser pulse phenomena*, Academic Press San Diego (1995).

[4.2] E.T.J. Nibbering, M.A. Franco, B.S. Prade, G. Grillon, C. LeBlanc, A. Mysyrowicz : *Measurement of the nonlinear refractive index of transparent materials by spectral analysis after nonlinear propagation*, Opt. Comm. **119**, 479 (1995).

[4.3] G. P. Agrawal : *Nonlinear Fiber Optics*, Academic Press Inc., Boston (1989).

[4.4] S. Henz and J. Herrmann : *Two-dimensional spatial optical solitons in bulk Kerr-media stabilized by self-induced multiphoton-ionization : variational approach*, Phys. Rev. E **53**, 4092 (1996).

[4.5] J.J. Rasmussen and K. Rypdal : *Blow-up in nonlinear Schroedinger equations - I, a general review*, Physica Scripta **33**, 481 (1986).

[4.6] Y.R.Shen : *The principles of nonlinear optics*, John Wiley&Sons, New York (1984).

[4.7] R.W. Boyd : *Nonlinear Optics*, Academic Press, San Diego (1992).

[4.8] J.H. Marburger : *Self-focusing : theory*, Prog. Quant. Electr. **4**, 35 (1975).

[4.9] M.S. Malcuit, R.W. Boyd, W.V. Davis and K. Rzazewski : *Anomalies in optical harmonic generation using-high intensity laser radiation*, Phys. Rev. A **41**, 3822 (1990).

[4.10] J. T. Massanah, P.L. Baldeck, R.R. Alfano : *Self-focusing, self-phase modulation, and diffraction in bulk homogeneous material*, Opt. Lett. **13**, 1090 (1988).

[4.11] J.-F. Ripoche, R. Lange, M. Franco, B. Prade, P. Rousseau et A. Mysyrowicz: *Measurement of femtosecond pulseshapes via ionisation of air*, IEEE Journal of selected topics in quantum electronics **4**, 301 (1998).

[4.12] W.M. Wood, C.A. Siders and M.C. Downer : *Measurement of femtosecond ionization dynamics of atmospheric density gases by spectral blueshifting*, Phys. Rev. Lett. **67**, 3523 (1991).

[4.13] E. Esarey, P. Sprangle, J. Krall, A. Ting : *Self-focusing and guiding of short laser pulses in ionized gases and plasmas*, IEEE J. Quantum Electron. **33**, 1879 (1997).

[4.14] V.P. Kandidov, O.G.Kosareva, S.A. Shlenov : *Influence of transient self-defocusing on the propagation of high-power femtosecond laser pulses in gases under ionisation conditions*, Quantum Electronics **24**, 905 (1994).

[4.15] A. Sergeev, E. Vanin, L. Stenflo, D. Anderson, M. Lisak, M.L. Quiroga-Teixeiro : *Nonlinear shaping of a two-dimensional ultrashort ionizing pulse*, Phys. Rev. A **46**, 7830 (1992).

[4.16] X.M. Zhao: *Femtosecond ultraviolet pulses triggering of ground to cloud lightening*, thèse de doctorat, University of Mexico, juillet 1993; X.M. Zhao, J.-C. Diels, C.Y. Wang, J.M. Elizondo: *Electrical discharges in gases with femtosecond ultraviolet laser pulses*, IEEE J. Quantum Electronics **31**, 599 (1995).

[4.17] J. Peatross, S. Backus, J. Zhou, M.M. Murnane, H.C. Kapteyn : *Spectral-spatial measurements of fundamental and third-harmonic light of intense 25-fs laser pulses focused in a gas cell*, J. Opt. Soc. Am. B **15**, 186 (1998).

5. Etude expérimentale

L'analyse numérique de l'autoguidage a donné une interprétation de la filamentation comme étant un quasi-équilibre à l'échelle macroscopique avec cependant une dynamique complexe sur l'échelle microscopique. On retrouve ce quasi-équilibre macroscopique dans la stabilité des valeurs comme l'intensité maximale de $6x10^{13}$ W/cm^2 et la densité électronique de 10^{15} cm^{-3} sur un large domaine de variations des paramètres initiaux. La complexité microscopique se révèle dans le détail des résultats numériques obtenus : structure complexe des spectres, fragmentation de l'impulsion en sous-impulsions et instabilités oscillatoires de l'ionisation.

Une étude expérimentale va nous permettre de vérifier les prédictions du modèle numérique. Pour atteindre cet objectif, il faut affronter une double difficulté dans la caractérisation expérimentale de la filamentation des impulsions laser femtosecondes. Premièrement, la filamentation usuellement décrite dans la littérature [5.1] se forme sur 10 à 100 m. Ces distances nécessaires pour obtenir un effet observable exigent beaucoup de place et une installation expérimentale encombrante. Deuxièmement, le petit diamètre du filament et la courte durée de l'impulsion présentent des variations rapides en r et z. Les mesures expérimentales reposant en général sur des moyennes, les fluctuations d'un tir laser à l'autre ne permettent pas d'accéder facilement à ces informations. Bien que les filaments à l'échelle macroscopique soient stables, les positions transversales du filament et les positions exactes de l'autofocalisation selon l'axe z sont très sensibles aux conditions initiales.

Dans la première partie de ce chapitre, nous développerons une double réponse à ces difficultés expérimentales. Après une brève description du système laser, nous introduirons deux améliorations du dispositif expérimental afin de mieux contrôler les conditions initiales. Dans la seconde partie nous présenterons les résultats de la caractérisation expérimentale des filaments. Cela nous permettra la vérification des prédictions du code et une comparaison de notre interprétation de la filamentation comme quasi-équilibre dynamique avec les résultats donnés dans la littérature.

5.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est composé de deux éléments: la source délivrant des impulsions et les diagnostics, le dispositif permettant la génération des modes autoguidés et les instruments de caractérisation. Le système laser comme source des impulsions est rappelé en toute brièveté dans ses traits fondamentaux dans le paragraphe suivant : on trouve d'excellentes descriptions complètes de la génération des impulsions ultracourtes dans les thèses de C. LeBlanc [5.2] et G. Chériaux [5.3]. La double amélioration du dispositif expérimental concerne 1) un contrôle plus complet de l'impulsion initiale par la caractérisation complète de la phase des impulsions et 2) une géométrie améliorée pour la génération des filaments. Les diagnostics de la mesure de la durée des impulsions utilisés couramment permettent seulement une estimation de la durée à mi-largeur. La phase de l'impulsion reste par contre inconnue. Afin de réduire cette incertitude sur la condition initiale de l'impulsion et ainsi mieux contrôler la filamentation, nous avons mis en place un diagnostic originale de mesure de phase. La deuxième amélioration (la nouvelle géométrie pour la génération des filaments) ramène la distance nécessaire pour obtenir la filamentation de quelques dizaines de mètres à deux mètres. En plus de la maîtrise des filaments sur une dalle optique, cette nouvelle géométrie rend la formation d'un filament beaucoup moins sensible aux fluctuations du laser et permet ainsi leur étude détaillée.

5.1.1 Système laser

Produire une impulsion intense et ultracourte demande deux opérations: créer une impulsion courte et l'amplifier. Dans le Laboratoire d'Optique Appliquée, ces deux opérations sont réalisées dans des chaînes laser illustrées schématiquement dans la Figure 5.1. Un tel système d'amplification de l'impulsion par technique à dérive de fréquence ("chirped pulse amplification", CPA) permet d'amplifier une impulsion sans endommager les composants optiques du système. La technique d'amplification consiste à étirer l'impulsion dans le temps, à l'amplifier, et à la recomprimer temporellement pour fournir une puissance maximale.

Le système laser utilisé dans les expériences consiste en un oscillateur titane-saphir pompé par un laser à argon de 8 Watts. Cet oscillateur produit un train d'impulsions de 90 fs et une énergie de 3 nJ par impulsion à une cadence de 100 MHz. Les impulsions courtes sont obtenues par le principe du "Kerr-lens-mode locking" comme l'illustre la Figure 5.2. Si le laser fonctionne en mode pulsé, les parties intenses de l'onde dans la cavité sont focalisées par l'effet Kerr dans le milieu amplificateur et peuvent passer dans le diaphragme introduit sur le trajet du faisceau. Par contre, en mode continu, l'auto-focalisation ne se produit pas et le diaphragme introduit des pertes tellement importantes que le régime laser ne peut s'établir.

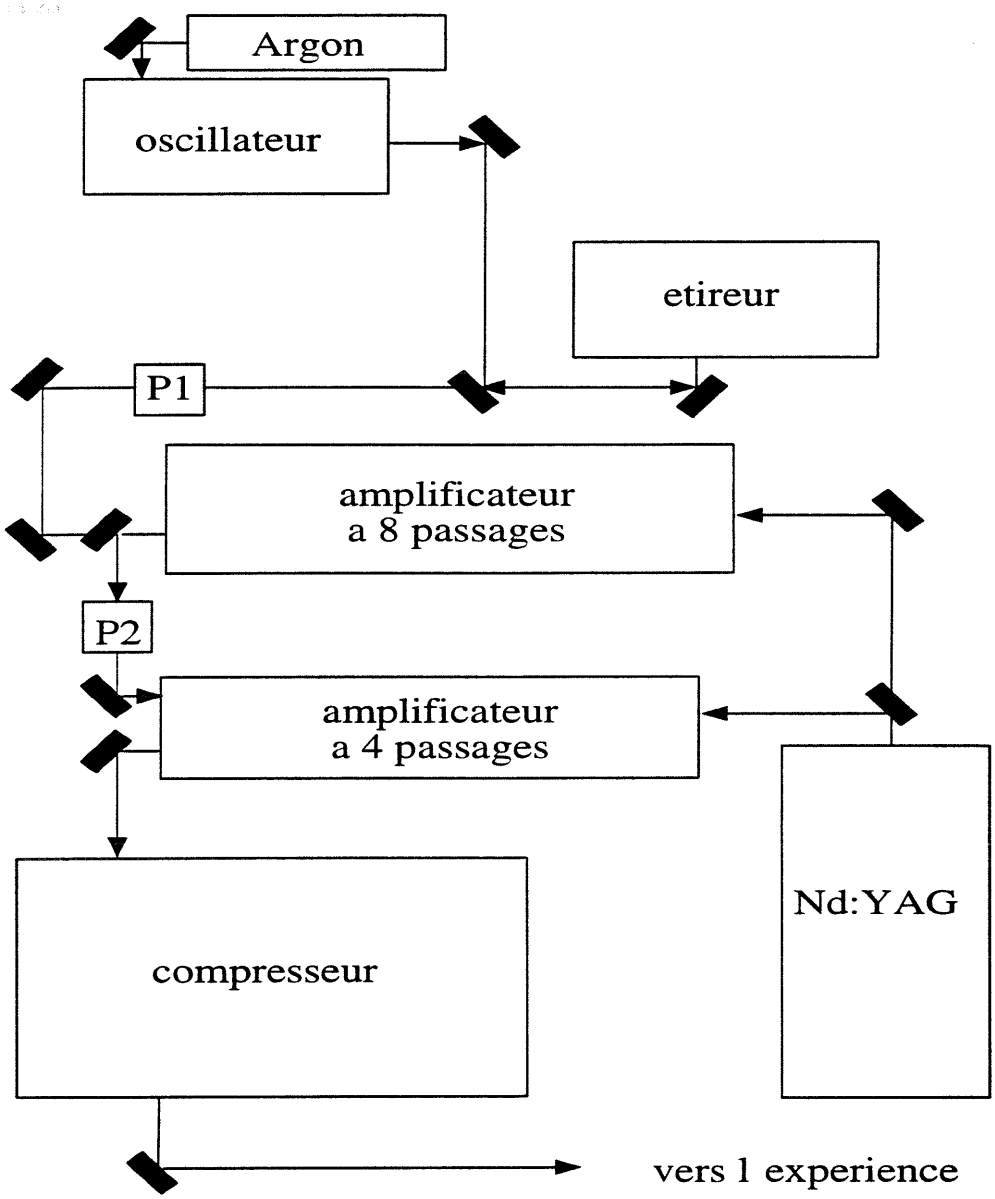


Figure 5.1: Schéma du système laser. Les cellules de Pockels sont indiquées par P1 et P2. La description du système est donnée dans le texte du paragraphe 5.1.1 .

En conséquence de cette sélectivité, seule une impulsion courte et intense peut se développer dans la cavité laser. Une fois générées, ces impulsions de 90 fs sont étirées dans le temps jusqu'à environ 400 picosecondes. Une de ces impulsions est sélectionnée à une cadence de 10 Hz par une cellule de Pockels, puis est injectée et amplifiée à 1,5 mJ dans un premier amplificateur pompé par un laser Nd:YAG, et dans un deuxième étage d'amplification à 100 mJ. Par compresseur à réseau, l'impulsion à forte énergie est recomprimée à 130 fs.

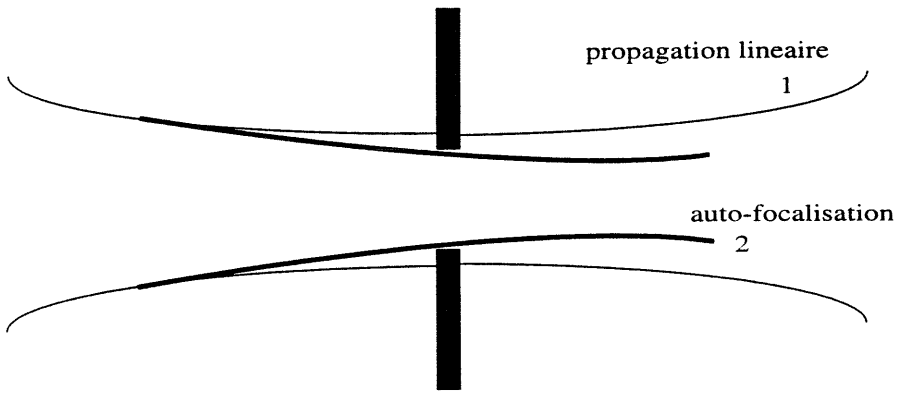


Figure 5.2: Illustration du blocage Kerr pour la génération des impulsions courtes dans l'oscillateur.

Ce compresseur nous permet également d'imprimer une phase quadratique à l'impulsion et à ainsi contrôler la durée à mi-largeur. L'expression qui lie la phase aux paramètres des deux réseaux du compresseur est donnée par [5.4]:

$$\varphi(\omega) = \frac{1}{2}\varphi''\,\Delta\omega^2 + \frac{1}{6}\varphi'''\,\Delta\omega^3 + \ldots$$

$$\varphi'' = -\frac{L\lambda_0^3}{\pi c^2 d^2 \cos^3\theta} \qquad \varphi''' = -\frac{3}{\omega_0}\left(1+\frac{\lambda_0}{d}\frac{\sin\theta}{\cos^2\theta}\right)\varphi'' \tag{5.1}$$

où c est la vitesse de la lumière, L la distance entre les réseaux, d la période des réseaux et θ l'angle de diffraction. Pour le système laser décrit plus haut, ces paramètres sont L=51.6 cm , d=500 nm et θ=46.87° pour une longueur d'onde centrale λ_0 =803 nm.

Dans le système actuel, l'impulsion mesurée avec un auto-corrélateur à la sortie du compresseur règlé pour une compression maximale, atteint 130 fs et 60 mJ, ce qui correspond à une puissance crête de 4,6 10^{11} Watts. Vu les amplifications d'un facteur de 10^7 de l'impulsion initiale, la reproductibilité de l'impulsion d'un tir à l'autre est un problème difficile, car dans un système à très fort gain, les contrastes sont souvent renforcés par l'amplification. Les fluctuations tir-à-tir de l'impulsion sont mesurables en terme d'énergie et de distribution spatiale. La fluctuation en énergie de l'impulsion initiale est de l'ordre de 10 % à 50 % selon l'alignement (optimal ou sous-optimal). Les impulsions ne diffèrent pas seulement par le contenu en énergie, mais aussi par leur longueur d'onde centrale et leur profil spatial. La variation de la fréquence moyenne est typiquement de 0,5 à 2 nm pour les impulsions de 130 fs, pour 30 mJ à 800 nm en longueur d'onde centrale. Un problème particulier concerne les dérives lentes des propriétés de l'impulsion, par exemple sur une demi-heure à cause de l'augmentation de la température de la salle laser pendant la journée.

En face de ces fluctuations, une image de la tache spatiale et un l'auto-corrélateur sont les seuls diagnostics actuels de l'impulsion et ne permettent qu'une estimation moyennée des conditions initiales temporelles et spatiales. Une partie de la difficulté de la compression optimale avec un compresseur est le manque d'une caractérisation complète de l'impulsion comprenant la variation d'intensité et de la phase temporelle.

5.1.2 Mesure temporelle d'une impulsion femtoseconde

Le fonctionnement de l'auto-corrélateur comme instrument de base pour mesurer la durée d'une impulsion sub-picoseconde est illustré schématiquement dans la Figure 5.3 a). L'impulsion à caractériser est dupliquée par une lame séparatrice. Les deux répliques sont envoyées dans les deux bras d'un dispositif analogue à un interféromètre de Michelson. L'un des deux bras est variable. Le miroir en forme d'un cube peut être déplacé par un moteur pas à pas de sorte que le retard entre les deux répliques de l'impulsion est variable. Les deux répliques sont superposées dans un cristal doubleur de fréquence de 100 µm d'épaisseur. Le signal de la seconde harmonique créée dans le cristal est détecté par un photomultiplicateur et enregistré en fonction du retard. Pour

obtenir une meilleure dynamique de la mesure temporelle, le signal du photomultiplicateur est normalisé à l'énergie du signal de l'impulsion à la fréquence ω_0. De plus, chaque point de mesure est moyenné sur dix tirs laser à chaque position et sur cinq passages du retard variant entre τ_{min} et τ_{max}. Les impulsions qui contribuent à cette statistique sont sélectionnées dans une fenêtre d'énergie définie par l'utilisateur. Ce traitement des données expérimentales permet de résoudre le signal d'auto-corrélation sur une dynamique de trois décades. Une courbe expérimentale enregistrée avec l'auto-corrélateur est montrée dans la Figure 5.3 b). La courbe théorique est un meilleur ajustement des points expérimentaux avec l'auto-corrélation d'intensité en supposant un profil en sécante hyperbolique et donne une durée de 140 fs. La définition d'un barre d'erreur pour une telle estimation de la durée des impulsions laser n'est pas simple: il faut sélectionner un sous-ensemble des impulsions pour la caractérisation. On peut alors donner une estimation de la reproductibilité de la mesure qui est de l'ordre de plus ou moins 10 fs pour une durée de 140 fs.

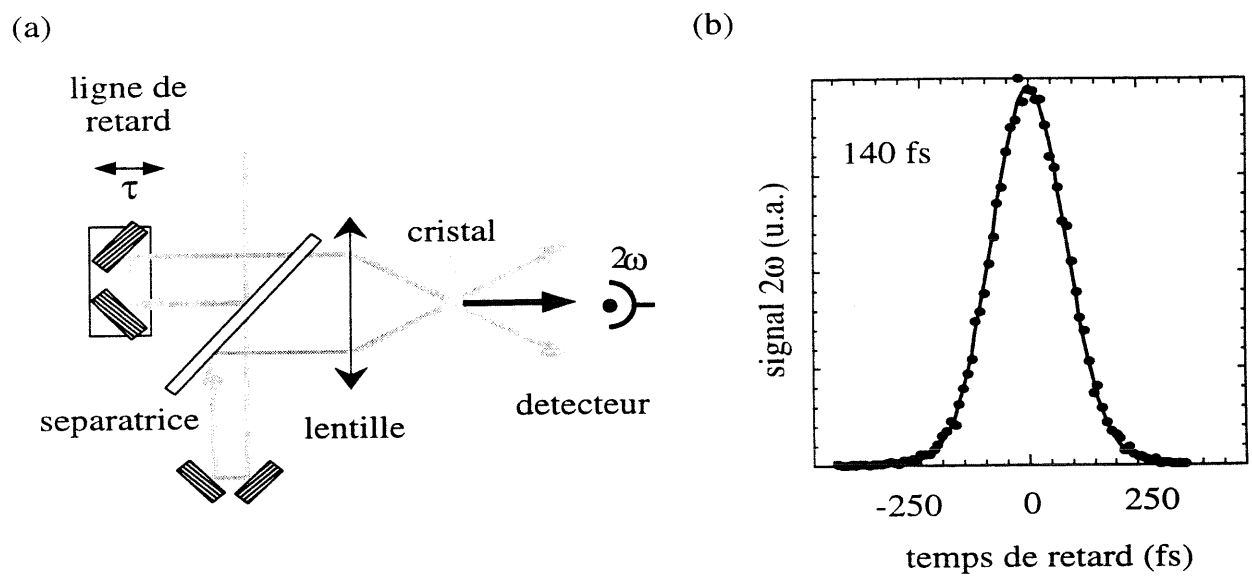


Figure 5.3: Estimation de la durée d'une impulsion par un auto-corrélateur: a) schéma expérimental et b) exemple d'une mesure de l'impulsion générée avec le système laser décrit en haut par génération de seconde harmonique dans un auto-corrélateur. Chaque point expérimental représente une moyenne sur 30 tirs laser sélectionnés dans une fourchette d'énergie (d'environ 10 %). Le fit du signal d'auto-corrélateur avec un profil temporel gaussien donne une estimation de la durée de 140 fs à mi-largeur.

L'auto-corrélateur comme seul diagnostic de l'impulsion laser est devenu pour plusieurs raisons de plus en plus insuffisant au cours du développement de nos expériences. Nous avons donné une première raison dans l'introduction de ce chapitre. Pour la comparaison des résultats expérimentaux sur la filamentation avec les résultats numériques, un meilleur contrôle des conditions initiales est une précondition. Cette exigence d'un meilleur diagnostic de l'impulsion qui permet la connaissance complète de l'impulsion avec profil d'intensité et phase temporelle est renforcée par trois tendances dans les développements de l'optique ultra rapide: 1) une réduction de la durée des impulsions vers le régime attoseconde [1,2], 2) la progression au-delà des intensités crêtes de 10^{20} W/cm^2 [3,4] et 3) la formation active des profils quelconque des impulsions. Tous ces développements demandent une caractérisation complète de l'impulsion. La réduction de la durée de l'impulsion conduit à une grande largeur spectrale et un plus grand besoin d'une phase constante sur tout le spectre. Les expériences de haute intensité sont très sensibles à des pré-impulsions qui peuvent par exemple provenir d'une phase spectrale de troisième ordre.

Mesure complète de l'impulsion

Récemment, un nombre de méthodes alternatives a été proposé pour la caractérisation complète des impulsions femtosecondes [5.5-5.8]. En contraste avec l'auto-corrélateur, ces méthodes combinent toujours un aspect d'analyse temporelle avec une analyse spectrale. La méthode la plus élaborée et répandue est devenue la méthode FROG [5.9]. Dans cette méthode un effet non-linéaire (par exemple l'auto-diffraction) entre un faisceau test et un faisceau pompe permet de faire interagir des parties différentes de l'impulsion à l'aide d'un retard variable. L'effet non-linéaire sélectionne une partie de l'impulsion (une porte optique - "optical gating"). La partie sélectionnée de l'impulsion est dans la suite résolue spectralement. La série de spectres mesurés pour chaque retard est ensuite utilisée dans un algorithme de recherche de phase pour la détermination de l'impulsion. Au Laboratoire d'Optique Appliquée, une autre méthode plus simple tant sur le plan expérimental que numérique, a été proposée par Prade et al. [5.10]. Dans ce chapitre nous développerons à partir de cette méthode initiale, un diagnostic de l'impulsion, qui nous servira de contrôle précis des conditions initiales des impulsions

laser utilisées pour la filamentation. Le développement de cette nouvelle méthode est documenté dans la thèse de Ripoche [5.11].

Méthode ENSTA

Le principe de base de la méthode de caractérisation complète de l'impulsion est lié au changement spectral introduit par l'effet Kerr. Dans le paragraphe 4.2 nous avons vu que la propagation non-linéaire dans un milieu Kerr provoque un élargissement et une modulation du spectre de l'impulsion. Comme illustré dans la Figure 5.4 par le spectre (continu) et la phase initiale (pointillé) qui produisent un spectre propagé (cercles). La signature de la modulation du spectre propagé dépend de façon critique de la phase initiale - une phase quadratique (b) produit des pieds symétriques sur le spectre, une phase de troisième ordre (c) une asymétrie spectrale. Peut-on inverser cette chaîne d'information et extraire un renseignement sur la phase à partir d'une modulation spectrale donnée? A ce jour il n'y a pas de réponse analytique à ce problème inverse. Cependant, la méthode proposée par Prade et al. génère une estimation de la phase initiale en utilisant un algorithme numérique.

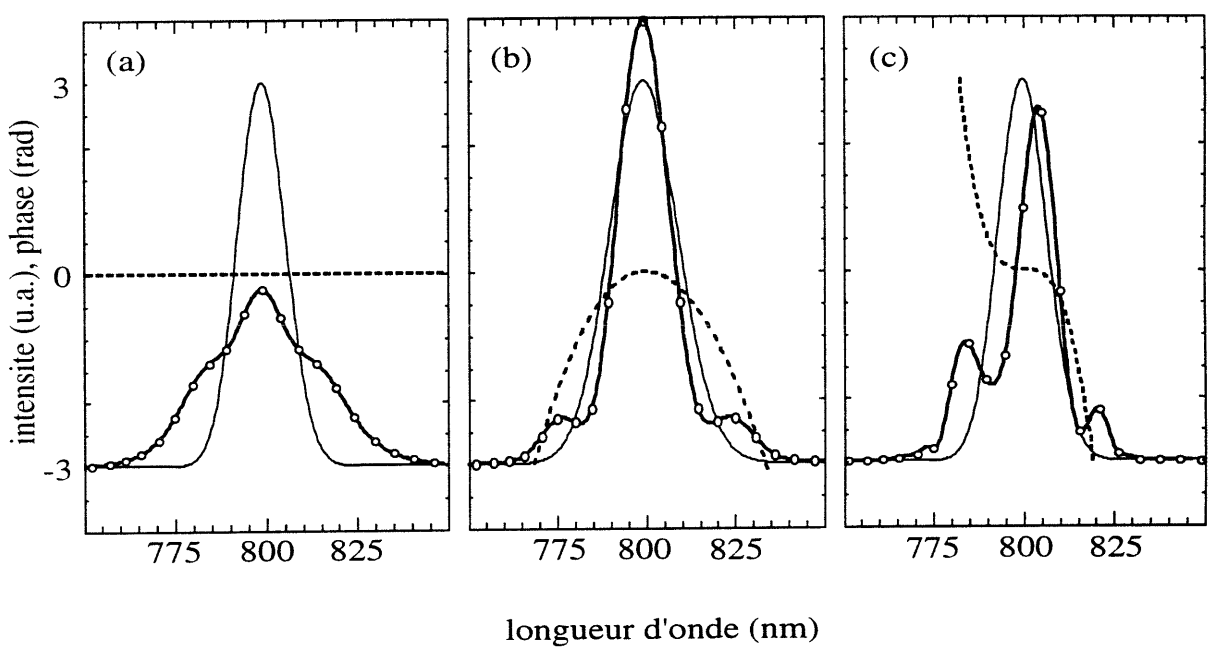


Figure 5.4: Auto-modulation spectrale d'une impulsion pour trois phases initiales différentes: (a) phase constante, (b) phase quadratique et (c) phase de troisième ordre. Spectre initial (trait continu), spectre propagé (cercles) et phase initiale (trait pointillé).

Nous introduisons le champ normalisé au champ maximal $E_0(t)= E(t)/ E_{max}$. Dans la méthode nous avons comme données expérimentales les modules du champ spectral de l'impulsion initiale $|F_0|$ et propagée $|F_p|$. Les transformées de Fourier de F_0 et F_p en fonction du champ $E_0(t)$ et $E_p(t)$ sont

$$F_0(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E_0(t)\exp(i\omega t)dt$$

$$F_p(\omega) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} E_p(t)\exp(i\omega t)d\omega$$

Sous l'hypothèse d'une propagation uni-dimensionnelle, les deux champs temporels sont liés par l'équation de propagation unidimensionnelle dans un milieu Kerr : $E_p(t) = E_0(t)\exp\left(iq_{med}\left|E_0(t)\right|^2\right)$, avec le coefficient de la non-linéarité $q_{med} = 2\pi/\lambda_0\, n_2 z I_{max}$. La quantité inconnue est la phase spectrale $\psi_0(\omega)$ initiale. Le problème posé est ainsi : quelle est la phase initiale $\psi_0(\omega)$ qui permet de restituer exactement le champ F_p à partir du champ F_0 par la propagation dans le milieu Kerr décrit par q_{med}.

La Figure 5.5 montre le schéma de la réalisation expérimentale et numérique de la méthode. L'algorithme d'optimisation est du type Gerchberg-Saxton [5.12]. Il commence avec l'injection d'une première proposition pour la phase spectrale du spectre initial $\psi_{ini}(\omega)$ (en pratique nous commençons toujours avec une phase constante $\psi_{ini}(\omega)=0$). Pour un module spectral donné (spectre de référence), l'impulsion complexe $F(\omega)\exp(\psi_{ini}(\omega))$ est alors complètement définie dans le domaine spectral. Ensuite le champ complexe est calculé dans le domaine temporel par une transformée Fourier puis propagé selon $E(t,z)=E(t,0)\exp(iq_{med}I(t))$ dans un milieu non-linéaire d'épaisseur z caractérisé par le paramètre non-linéaire q_{med}.

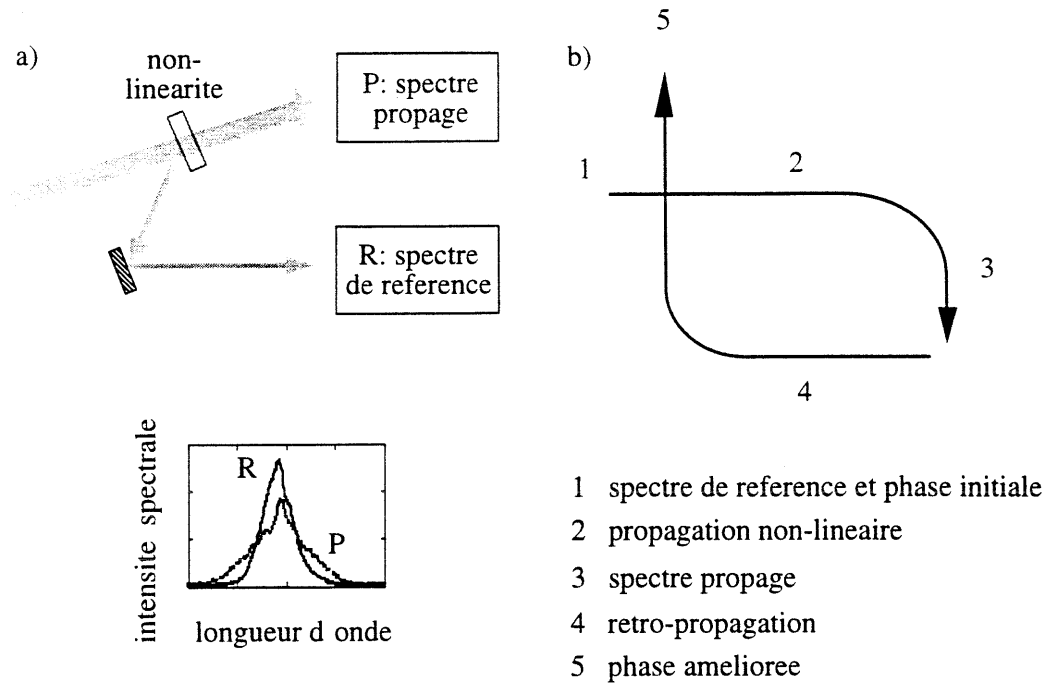


Figure 5.5 : Méthode de caractérisation de l'impulsion : a) dispositif expérimental - une réflexion donne le spectre de référence, le spectre propagé est enregistré après propagation dans un milieu de non-linéarité connue. b) Schéma de l'algorithme- l'injection du spectre de référence et du spectre propagé (1,3) donne avec la loi de propagation connue (2,4) une estimation de la phase (5).

Après propagation, le champ complexe obtenu est reconverti dans le domaine spectral et nous obtenons le spectre complexe propagé dont le module donne le spectre modulé par la non-linéarité. Au début de l'optimisation, ce spectre calculé diffère en général du spectre propagé donné par l'expérience. Le spectre mesuré est ensuite substitué au module de l'impulsion spectrale calculée en gardant la phase spectrale calculée: $F_{cal}(\omega,z)=F_p(\omega,z)\exp(i\psi_{cal}(\omega,z))$. La retransformation par une transformée de Fourier replace le spectre complexe dans le domaine temporel où un signe négatif dans l'exposant selon : $E(t,0)=E(t,z)\exp(-iq_{med}I(t))$ permet la rétro-propagation du champ vers la position z=0. Le champ est transformé dans le domaine spectral, on substitue selon : $F_{cal}(\omega,0)=F_0(\omega,0)\exp(i\psi_{cal}(\omega,0))$ le spectre expérimental au spectre calculé en gardant la phase calculée. Cette boucle de substitution des modules des spectres et de propagation est répétée jusqu'à la convergence des spectres calculés vers les spectres mesurés.

Pour quantifier la convergence de l'algorithme et donc la qualité de notre estimation obtenue pour la phase initiale $\psi_{ini}(\omega)$ nous introduisons une fonction d'erreur D_F. Elle mesure l'écart entre le module spectral $|F_{cal}|^2$ et le module $|F_{dat}|^2$ donné par l'expérience. F_{cal} et F_{dat} sont, soit le spectre de référence, soit le spectre initial.

Nous adoptons la définition de la fonction d'erreur suivante :

$$D_F = \frac{\left(\sum_{i=1}^{i=K}\left[\left|F_{dat,i}(\omega)\right| - \left|F_{calt,i}(\omega)\right|\right]^2\right)^{1/2}}{\sum_{i=1}^{i=K}\left|F_{dat,i}(\omega)\right|} \tag{5.2}$$

où on somme sur tous les K points de données qui représentent un spectre.

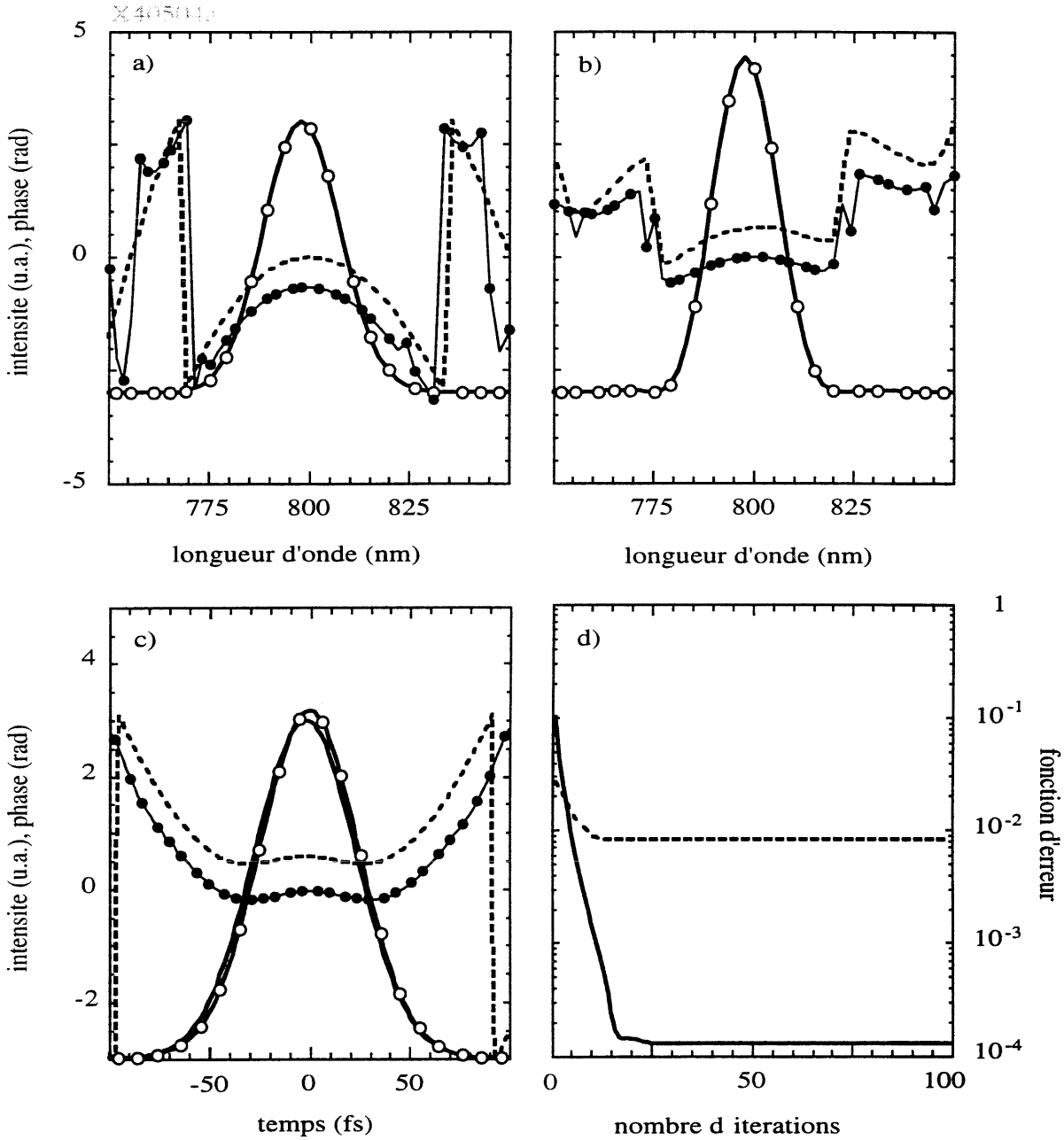


Figure 5.6: Reconstruction d'une impulsion théorique. L'impulsion de $\Delta\tau$=60 fs et un milieu décrit par q_{med} = 1 avec une phase quadratique de 4 10^{-4} fs^2. Le spectre

retrouvé est indiqué par un trait continu et des cercles opaques. L'erreur de déviation normalisée est de 10^{-3}.

En pratique, la convergence de la fonction d'erreur vers zéro est remplacée par la convergence vers une valeur déterminée par le bruit expérimental. Il est évident, qu'en présence de bruit expérimental, la reconstruction d'une impulsion ne peut être parfaite.

La Figure 5.6 illustre la recherche de la phase dans le cas d'une impulsion numérique. La recherche de phase des impulsions numériques ne permet pas seulement l'analyse détaillée de la reconstruction de la bonne solution dans le domaine spectral mais également dans le domaine temporel. En substituant les modules spectraux dans l'équation 5.2 par des modules temporels nous arrivons à une mesure de convergence comme présentée dans la Figure 5.6 (d) en trait pointillé. Le niveau de convergence dans le domaine temporel est inférieur à celui obtenu dans le domaine spectral, ce qui s'explique en grande partie par un léger décalage de l'impulsion calculée dans le temps (comme on peut le voir dans la Figure 5.6 (c)). Ce décalage temporel est un effet purement numérique. La reconstruction de la phase est en général de bonne qualité au centre des spectres, mais moins précise dans les ailes.

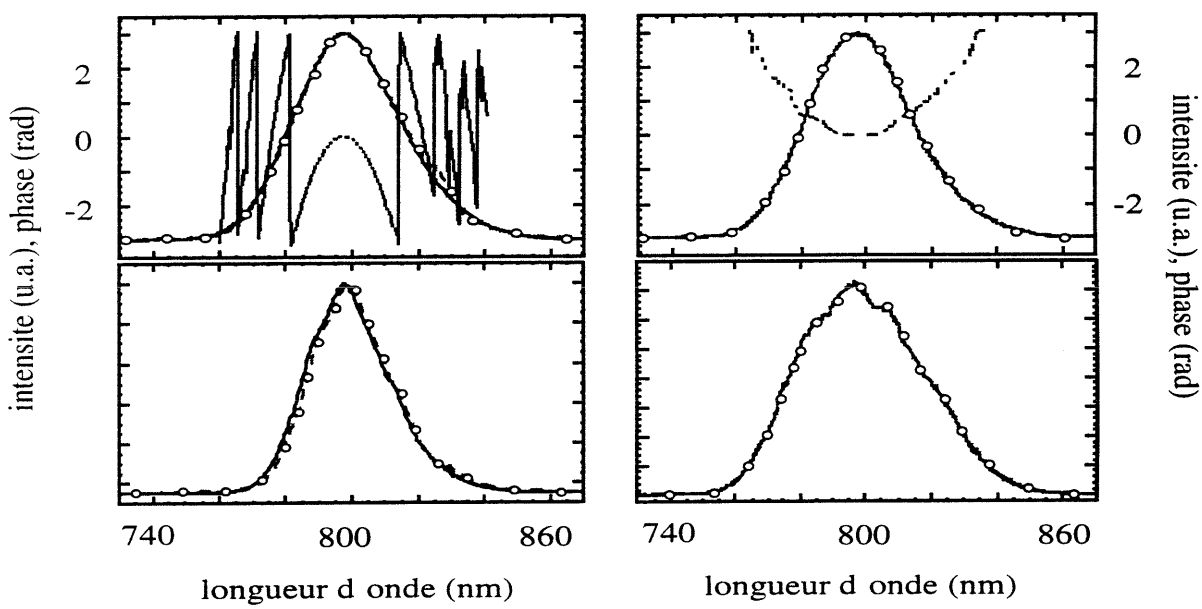


Figure 5.7: Caractérisation expérimentale de deux impulsions - trait continu données expérimentales, cercle et trait pointillé données retrouvées. a) phase et spectres initiaux, b) spectre expérimental et spectre calculé propagés pour une impulsion d'une durée mesurée de 100 fs et une phase négative de deuxième ordre ; c) phase et spectres initiaux, d) spectres expérimental et calculé

propagés d'une impulsion de durée mesurée de 35 fs et une phase positive de deuxième ordre. Le spectre propagé pour une phase initiale négative montre une forme triangulaire typique.

La réalisation expérimentale de la méthode de mesure de phase est illustrée avec une application: la caractérisation de deux impulsions de phase opposée sortant d'un oscillateur. Cet exemple montre d'un part l'utilité de la méthode, d'autre part une perspective d'adapter à des spécifications particulières, comme l'énergie faible d'un oscillateur optique.

La Figure 5.7 montre les résultats expérimentaux. La méthode a été adaptée pour caractériser un oscillateur titan-saphire de 500 nJ et de 50 fs [5.13]. Dans ce cas, le dispositif expérimental de l'expérience précédente ne permet plus d'introduire une modulation spectrale suffisante. Pour compenser l'énergie faible des impulsions de l'oscillateur, la longueur du milieu non-linéaire est augmentée par le couplage de l'impulsion dans une fibre optique. La longueur accrue du milieu non-linéaire et la durée très courte des impulsions de l'oscillateur (autour de 50 fs) exige l'inclusion de la dispersion de groupe dans le modèle de propagation ; on utilise un algorithme à pas séparés [5.13].

Le résultat de la caractérisation de deux impulsions est montré dans la Figure 5.7. La non-linéarité est fournie par une fibre d'une longueur de 10 cm et d'un diamètre de cœur de 3,2 μm. Pour éviter un élargissement dispersif de l'impulsion par une lentille, l'impulsion a été couplée dans la fibre avec un miroir hors axe. Le spectre initial avec sa phase de deuxième ordre obtenue par la méthode de caractérisation sont montrés sur le graphe gauche en haut. Le spectre propagé correspondant se trouve en dessous, avec une modulation spectrale d'une forme triangulaire qui est typique pour une phase initiale négative. A droite, on voit le spectre initial avec une phase quadratique positive et en bas le spectre propagé élargi. Le changement du signe du glissement de fréquence montré dans la Figure 5.7 correspond au déplacement des prismes dans l'oscillateur.

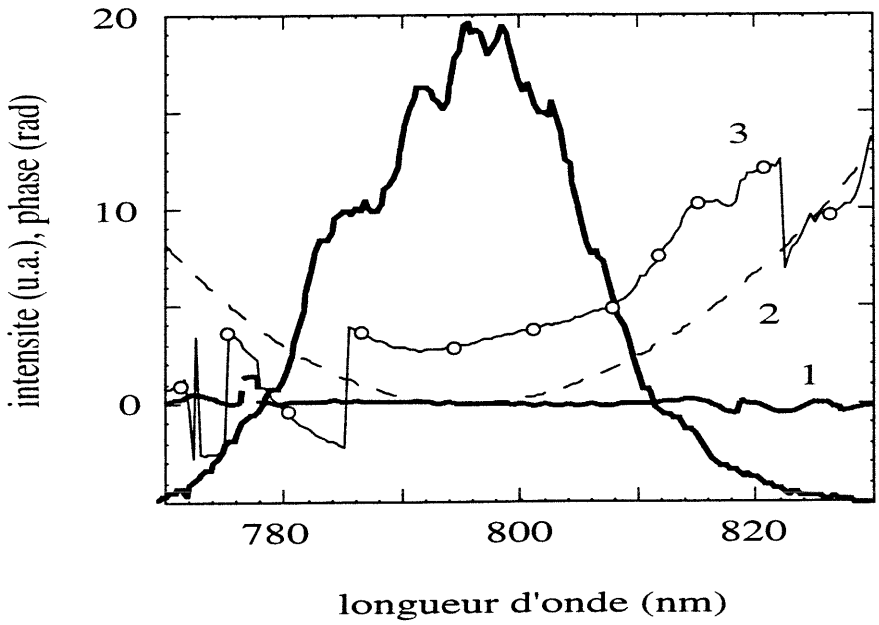


Figure 5.8: Cas ambigu de la reconstruction d'une impulsion de $\Delta\tau$=60 fs avec une phase de deuxième ordre, W= 0,64 mJ et un diamètre du faisceau de 9 mm. Les impulsions proviennent d'un système laser kHz et le spectre est moyenné sur un grand nombre d'impulsions. Spectre initial - trait continu, phase retrouvée après injection d'une phase plate comme première estimation (1), trait continu avec cercles , phase retrouvée après injection d'une phase quadratique comme première estimation (2), pointillés : phase calculée en fonction du déplacement des réseaux du compresseur.

L'étude systématique de la propagation dans la fibre révèle un problème si l'on veut appliquer cette méthode à la caractérisation de sources de faibles intensités : la phase estimée peut être ambiguë. Nous ne montrerons pas formellement la non unicité du problème inverse dans un milieu dispersif, mais des simulations montrent que deux phases quadratiques de signe opposé peuvent induire le même élargissement spectral. La dispersion normale de la fibre inverse, pendant la propagation, la phase initiale négative. L'impulsion de phase initiale positive perd rapidement l'intensité nécessaire pour une auto-modulation de phase à cause de la dispersion. Ensuite, les deux impulsions initialement différentes conduisent au même spectre propagé. Pour cette raison, l'utilisation des fibres pour la caractérisation des impulsions par cette méthode a été abandonnée.

Les expériences ont montré de plus que le problème de l'ambiguïté expérimentale apparaît également pour la méthode ENSTA de base. La Figure 5.8 montre un tel cas expérimental: l'algorithme converge vers deux solutions à partir de deux phases initiales différentes. Le cas montré correspond à une impulsion avec une phase quadratique qui

est contrôlée par le réglage du compresseur (voire paragraphe 5.1.1). La solution obtenue à partir d'une phase initiale plate par l'algorithme donne une impulsion trop courte. Avec l'injection de la phase initiale proche de la bonne solution, l'algorithme produit la solution correcte. Ce cas n'est toutefois pas une preuve de la non unicité du problème inverse en question, nous pouvons seulement constater que la convergence de l'algorithme ne permet pas de distinguer deux solutions.

Au vu de ce problème, nous suggérons deux approches pour améliorer la méthode. D'une part l'utilisation d'algorithmes d'optimisation plus complexes et plus performants comme ceux utilisés par exemple dans la méthode FROG [5.14], d'autre part l'injection de plus d'information expérimentale dans la méthode numérique. L'information expérimentale peut être créée ou bien par le signal d'auto-corrélation ou bien par des spectres supplémentaires après une propagation prolongée dans la non-linéarité - pour citer quelques exemples. Dans le paragraphe suivant nous présentons une méthode qui surmonte l'ambiguïté expérimentale de la méthode présente. Finalement, dans la discussion, nous indiquerons deux approches alternatives pour l'amélioration de la méthode initiale.

La solution du problème d'ambiguïté

Une méthode améliorée qui exploite plus d'information expérimentale en gardant la simplicité de l'algorithme Gerchberg-Saxton est présentée dans le schéma dessiné dans la Figure 5.9. La propagation sous une auto-modulation de phase est remplacée par une inter-modulation de phase d'un faisceau test par un faisceau pompe. Les équations de propagation s'écrivent avec $I_p(t)$, $I_t(t)$ pour le profil d'intensité du faisceau pompe et test respectivement comme suit:

$$E_p(t,z) = E_p(t,0)\exp\left(iq_{med}I_p(t)\right)$$

$$E_t(t,z) = E_t(t,0)\exp\left(iq_{med}I_p(t-\tau)\right)$$

où $q_{med} = 2\pi/\lambda_0\, n_2 z I_{max}$ contient l'intensité maximale de la pompe. Dans ce schéma, le retard variable τ permet de créer plusieurs spectres de l'impulsion et d'augmenter ainsi l'information injectée dans l'algorithme.

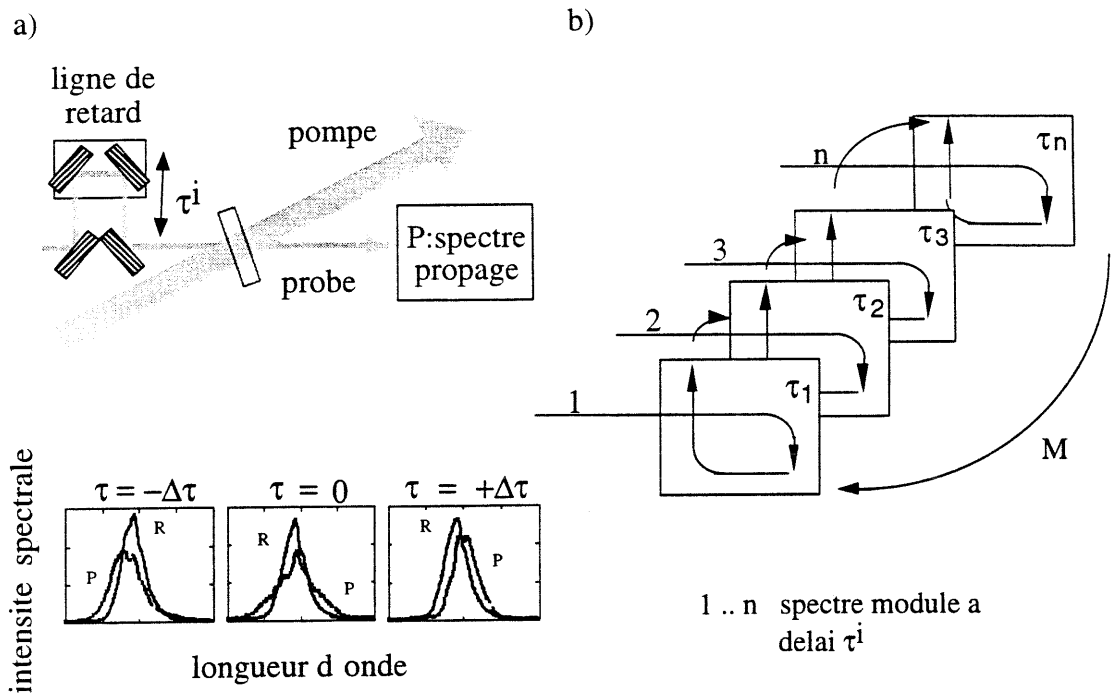


Figure 5.9: Schéma expérimental et numérique de l'algorithme amélioré. (a) Une ligne de retard permet de prendre une série de spectres propagées. Le principe est illustré par trois spectres propagés (P), leurs spectres de référence (R) pour trois retards différents. (b) L'algorithme amélioré consiste en un enchainement de boucles de propagation et de substitution analogues à la méthode ENSTA initiale (Figure 5.5).

L'information supplémentaire constituée par la série de spectre est intégrée de façon suivante dans le code. Une boucle intérieure contient la méthode ENSTA précédente: le spectre initial et une estimation de la phase initiale pour un grand retard sont propagés en utilisant l'équation $E_p(t,z) = E_p(t,0)\exp\left(iq_{med}I_p(t)\right)$. La substitution du spectre propagé et la rétro-propagation donnent une phase calculée $\psi_{cal}(\omega,\tau_1)$. Cette phase sert d'estimation initiale $\psi_{cal}(\omega,\tau_2)$ pour la boucle de "propagation-substitution-rétro-propagation" pour la valeur suivante du retard τ_2. Ensuite, à chaque retard τ_i une boucle intérieure s'enchaîne et la phase initiale calculée est passée d'une boucle intérieure à l'autre. La boucle extérieure consiste dans la répétition de cet enchaînement de boucles intérieures et est répétée typiquement une centaine de fois.

La performance d'un diagnostic peut être évaluée par des exemples numériques et par la mesure expérimentale d'une grandeur connue indépendamment. Concernant les cas de tests numériques, la littérature sur le sujet de la recherche de phase a produit quelques impulsions recensées comme difficiles à reconstruire: la double impulsion [5.15], le

train d'impulsions [5.16], l'impulsion avec un saut de phase de π [5.17] et l'impulsion pré-modulée par un milieu non-linéaire. La méthode améliorée permet de converger dans tous ces cas numériques vers une valeur de la fonction erreur D_F de l'ordre de grandeur de la précision machine ($<10^{-14}$). Le nombre maximal de spectres utilisés est inférieur à 64 et le nombre d'itérations inférieur à 500. La Figure 5.10 montre comment la nouvelle méthode permet de résoudre un cas d'ambigue pour la méthode initiale.

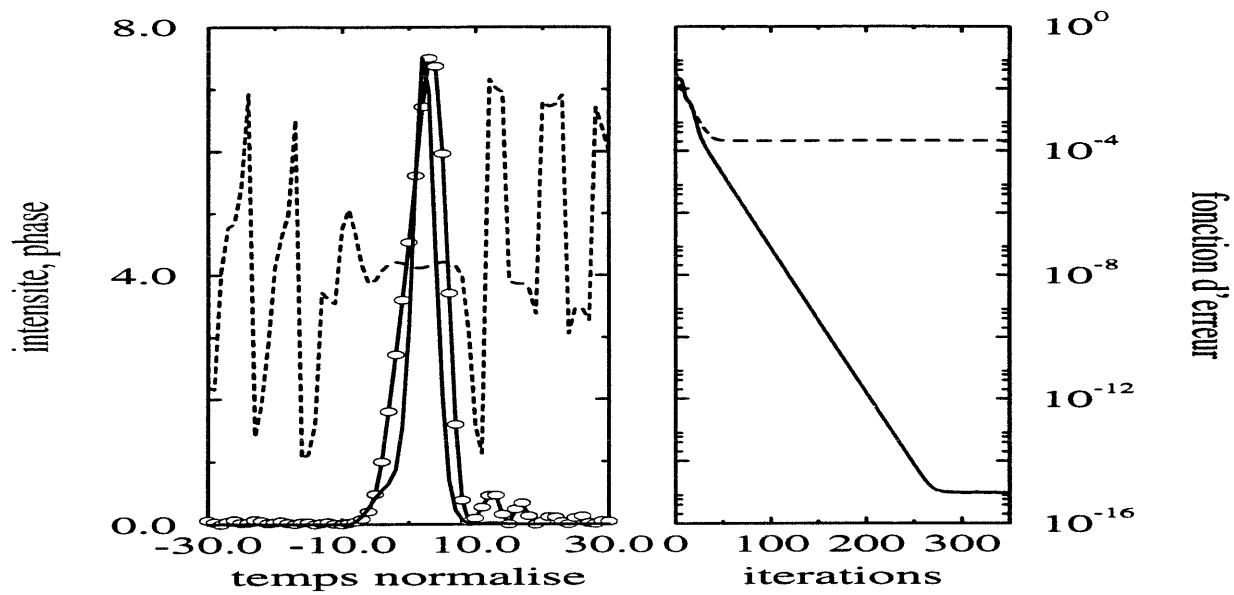


Figure 5.10: Performance de l'algorithme amélioré: exemple numérique. Une impulsion de $\Delta\tau$=60 fs avec une phase de deuxième ordre. En trait continu avec cercles l'impulsion reconstruite par la nouvelle méthode et sa phase en pointillé. La reconstruction d'une impulsion trop courte avec la méthode précédente est montrée par l'impulsion en trait continu. La fonction d'erreur converge vers 10^{-15}, limite donnée par l'erreur d'arrondi de la machine.

Une mesure d'une grandeur connue indépendamment est montrée dans la Figure 5.11. Trois impulsions avec une phase quadratique positive, une phase plate et une phase quadratique négative sont créées par la translation de l'un des réseaux du compresseur par rapport à l'autre. Cette translation ajoute une phase quadratique à la phase de l'impulsion. Ainsi, la différence de phase entre deux positions du réseau peut être déterminée par l'équation (5.1) et permet d'évaluer la performance expérimentale de l'algorithme.

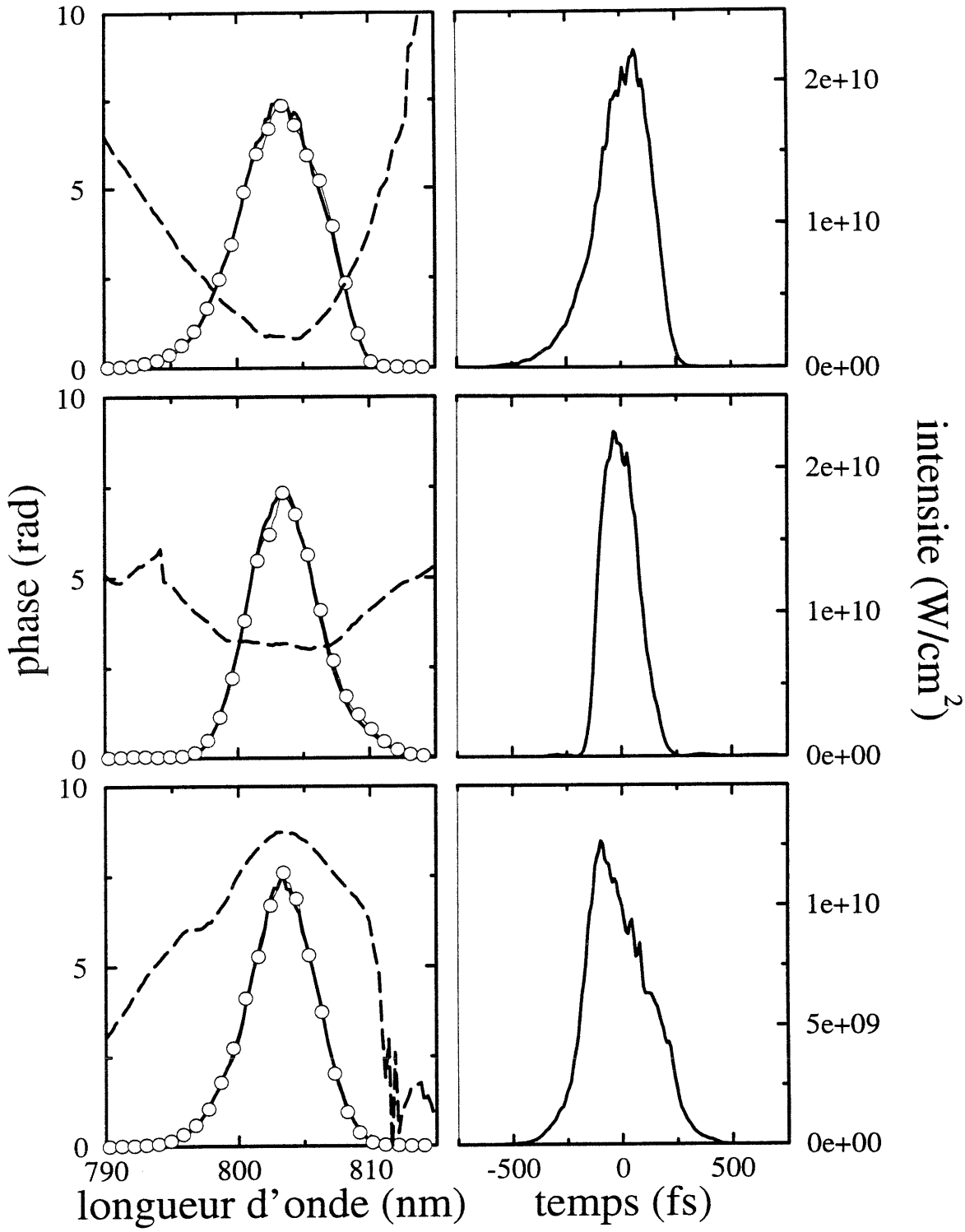


Figure 5.11: Performance de l'algorithme amélioré: exemple de trois impulsions expérimentales retrouvées avec a) une phase quadratique négative de deuxième ordre et une durée de 280 fs, b) une phase plate et une durée de 200 fs et c) une phase quadratique positive de deuxième ordre avec une durée de 310 fs. En trait continu dans la colonne de gauche le spectre avec la phase en pointillé, dans la colonne de droite le profil de l'impulsion.

Discussion

La nouvelle méthode est capable d'enlever les cas d'ambiguïtés et permet ainsi un contrôle accru des impulsions utilisées pour la filamentation. Cette solution est rendue possible en remplaçant la prise de deux spectres par la prise d'une série de spectres. Par conséquent, la méthode développée devient plus complexe tant sur le plan expérimental que numérique. Nous présenterons ici deux approches alternatives qui ont été explorées pour une éventuelle amélioration de la méthode de recherche de phase initiale. La première approche concerne l'amélioration de la méthode initiale par le choix d'un algorithme de recherche de phase plus performant sans changer l'information expérimentale utilisée dans l'algorithme. La deuxième approche consiste dans l'injection d'une information expérimentale supplémentaire dans l'algorithme : la différence de phase spectrale entre le spectre initial et le spectre propagé $\psi_{dif}(\omega)= \psi_{prop}(\omega)- \psi_{ref}(\omega)$. Ces deux approches ont été explorées sans donner une performance aussi satisfaisante que la méthode améliorée du paragraphe précédent. Mais les résultats intermédiaires obtenus avec les deux approches alternatives sont intéressants pour une éventuelle amélioration de la méthode initiale en conservant sa simplicité.

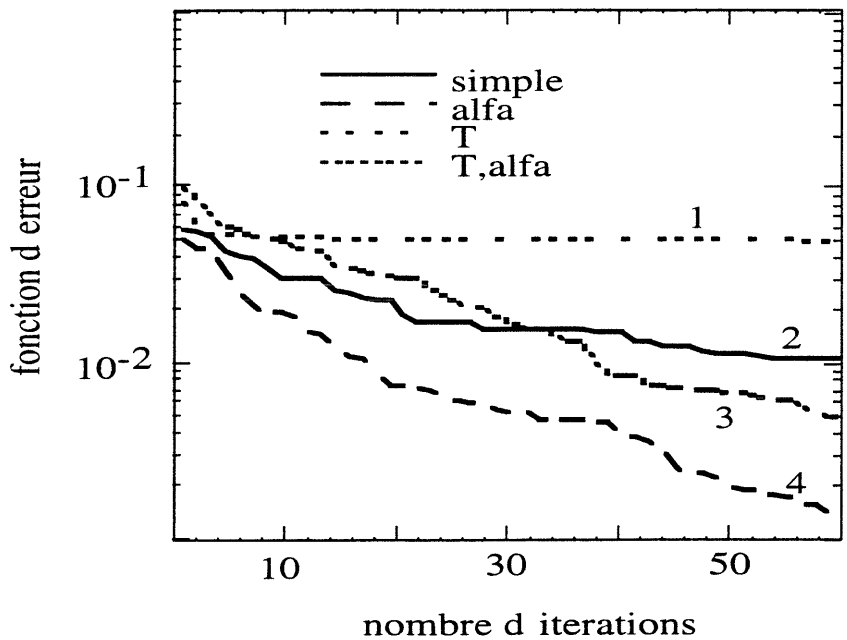


Figure 5.12: Illustration d'une amélioration de la reconstruction de l'impulsion en fonction de l'algorithme numérique employé : convergences de l'algorithme initial (1), avec l'algorithme du recuit simulé pour le choix des paramètres α et T varié (2-4).

Sur le plan numérique, des algorithmes différents ont été utilisés. L'utilisation d'un algorithme de recuit simulé montre dans la Figure 5.12 que la performance du diagnostic peut être améliorée par un meilleur choix de l'algorithme d'optimisation pour la fonction d'erreur. Le problème de l'algorithme du recuit simulé réside dans les exigences en temps de calcul et la

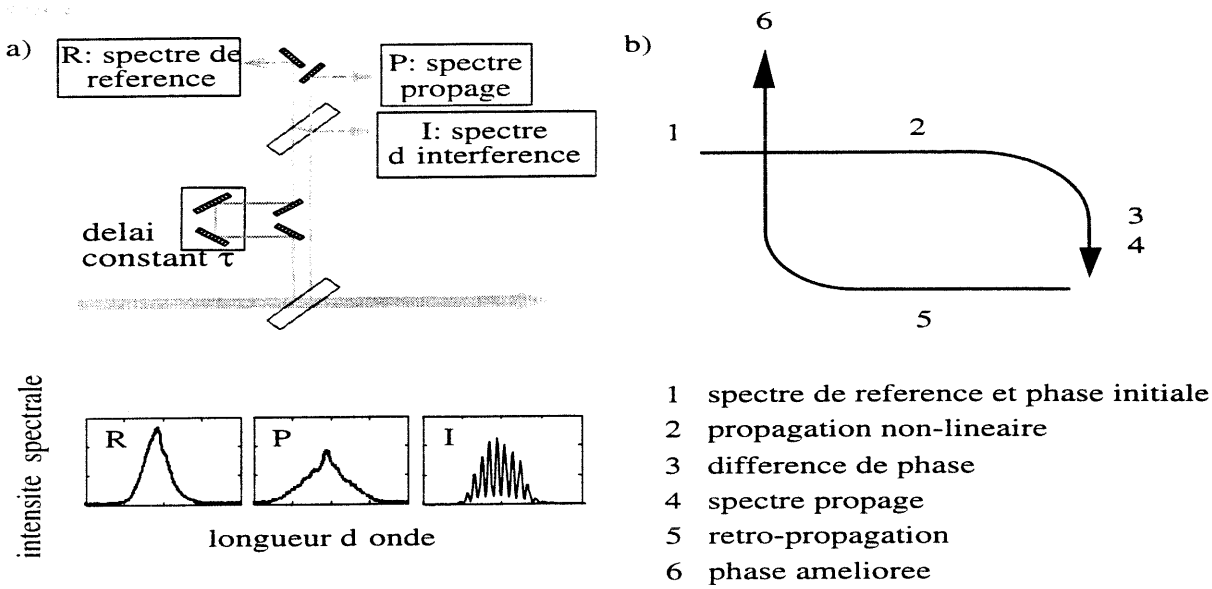


Figure 5.13: Amélioration de la méthode initiale par l'injection d'une information expérimentale supplémentaire - la différence de phase entre le spectre de référence et propagé. a) Dispositif expérimental et b) schéma numérique - la différence de phase est injectée ensemble avec le spectre de propagé (3,4) dans l'algorithme Gerchberg-Saxton.

gestion empirique des coefficients de contrôle (la "température" T et le coefficient α de variation de la température). Pour cette raison, nous avons abandonné le recuit simulé et exploré l'utilisation d'un algorithme de minimisation Polack-Ribière [5.18] en différentes combinaisons avec l'algorithme de Gerchberg-Saxton. Nous avons notamment observé que la convergence sur des cas tests, des impulsions numériques pourrait être améliorée par un facteur 10 en comparaison avec la méthode initiale en alternant une boucle utilisant l'algorithme de substitution de Gerchberg-Saxton et une boucle de minimisation de Polack-Ribière. Toutefois, la précision est loin de la précision machine obtenue par la méthode d'intermodulation de phase. L'emploi d'un algorithme Levenberg-Marquardt a été un échec pour le problème d'optimisation en question.

L'approche basée sur l'injection de la différence de phase dans la méthode initiale est décrite dans la Figure 5.13 . Le dispositif expérimental de la méthode initiale est complété par un interféromètre. Dans cet interféromètre, une réplique de l'impulsion de référence et de l'impulsion propagée sont superposées dans un spectromètre et donnent un spectre d'interférence. Dans le domaine spectral le signal d'interférence s'écrit

$$S_{\text{interf}} = |E_{ref} + E_{prop}|^2 = |E_{ref}|^2 + |E_{prop}|^2 + |E_{ref}||E_{prop}|\left[e^{i\Delta\psi} + e^{-i\Delta\psi}\right]$$

avec

$$\Delta\psi = \cos(\omega\tau + \Delta\psi_{NL}) = \cos(\omega\tau)\cos(\Delta\psi_{NL}) - \sin(\omega\tau)\sin(\Delta\psi_{NL})$$

La transformation de Fourier inverse $\Im^{-1}$ amène à

$$\Im^{-1}[S_{\text{interf}}] = \Im^{-1}\left[|E_{ref}|^2\right] + \Im^{-1}\left[|E_{prop}|^2\right]$$

$$+ \frac{1}{2}(\delta(t-\tau) + \delta(t+\tau)) \otimes \Im^{-1}\left[|E_{ref}||E_{prop}| \cos(\Delta\psi_{NL})\right] i$$

$$- i \frac{1}{2}(\delta(t-\tau) - \delta(t+\tau)) \otimes \Im^{-1}\left[|E_{ref}||E_{prop}| \sin(\Delta\psi_{NL})\right]$$

Avec la fonction de Dirac δ et une fonction de filtrage α_{HS} (fonction de Heaviside) on sélectionne une des impulsions décalées:

$$\alpha_{HS}(t) \cdot \Im^{-1}[S_{\text{interf}}] = \frac{1}{2}\delta(t-\tau) \otimes \Im^{-1}\left[|E_{ref}||E_{prop}|\cos(\Delta\psi_{NL})\right]$$

$$- i \frac{1}{2}\delta(t-\tau) \otimes \Im^{-1}\left[|E_{ref}||E_{prop}| \sin(\Delta\psi_{NL})\right]$$

après une retransformation dans l'espace des fréquences on obtient:

$$S_{filtré}(\omega) = |E_{ref}||E_{prop}| \; [\cos(\Delta\psi_{NL}) - i \cdot \sin(\Delta\psi_{NL})] = |E_{ref}||E_{prop}| e^{-i\Delta\psi}$$

Ce filtrage dans le domaine temporel permet d'extraire la différence de phase. Cette différence de phase est l'argument de la fonction complexe $S_{filtré}$. Dans la boucle d'optimisation (la Figure 5.14 b)), la différence de phase est introduite à la position 3 de l'algorithme. Au lieu de simplement retenir la phase propagée comme elle est obtenue par le calcul, la phase pour le spectre calculée est

$$\psi_{prop}(\omega) = (1-\alpha)\psi_{prop}(\omega) + \alpha\left(\psi_{ref}(\omega) + \Delta\psi(\omega)\right)$$

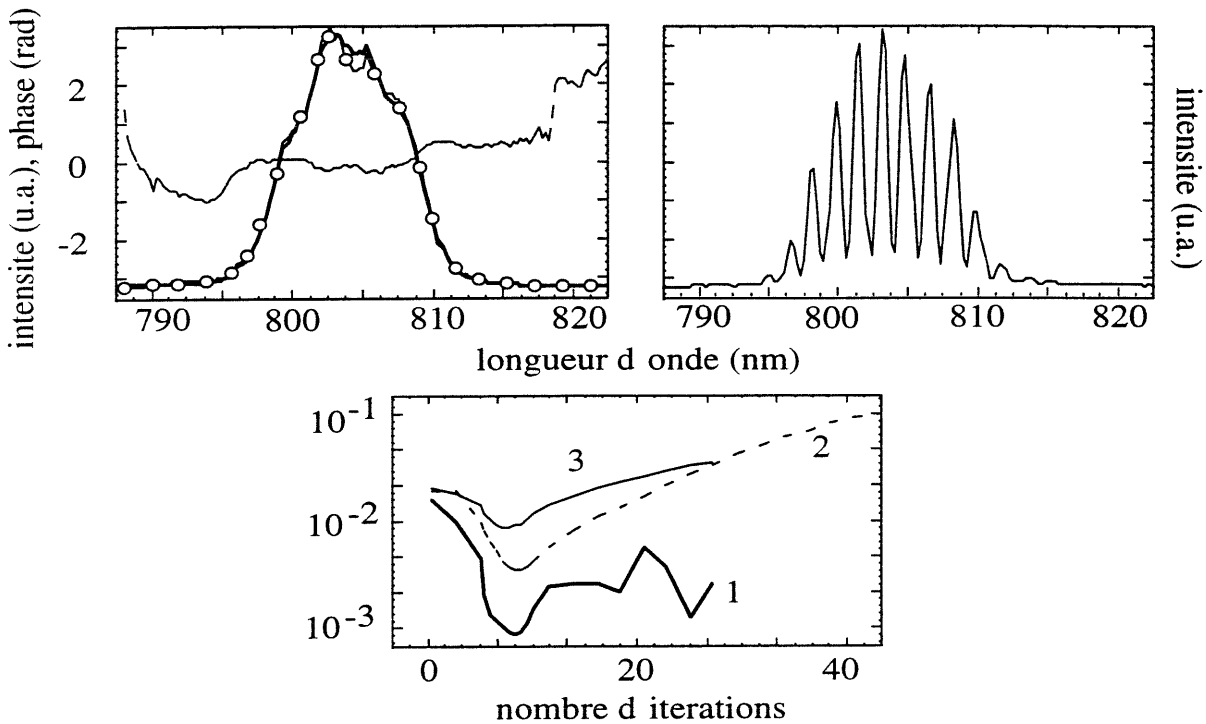


Figure 5.14: Amélioration de la méthode initiale par l'injection de la différence de phase. a) Le spectre initial - trait continu, spectre retrouvé - cercles, phase initiale reconstruite - pointillé. b) Le spectre d'interférence. c) La convergence de la méthode initiale (1), avec l'injection de la différence de phase pour deux paramètres α différents (2,3). L'impulsion est de l'ordre de 130 fs avec une phase quasi constante, une énergie W= 50 µJ par impulsion sur une section de 1 mm en diamètre d'un faisceau initial de w_0=12 mm.

où la phase $\psi_{ref}(\omega)$ est la phase calculée à la position 1 de chaque boucle. Testée sur la recherche de phase d'impulsions purement numériques, l'injection de la différence de phase permet de lever, pour une série de cas, l'ambiguïté de la méthode initiale. Par contre, aucune amélioration de la convergence dans le cas expérimental n'est observée. Dans le cas expérimental, la seule amélioration apportée par la méthode d'interférence réside dans une meilleure définition du minimum de la fonction d'erreur. La Figure 5.14 montre un exemple. L'injection de la différence de phase enlève des minima locaux.

Mais la convergence de l'algorithme reste dans les cas expérimentaux insatisfaisante car elle ne descend jamais en dessous de 10^{-3}.

En résumé de la présentation des méthodes de caractérisation des impulsions femtosecondes, nous avons développé une nouvelle méthode de mesure. Nous avons d'abord identifié un problème d'ambiguïté de la méthode initiale et développé une méthode améliorée qui permet de caractériser le profil temporel et la phase des impulsions. Dans la discussion nous avons montré que la méthode initiale peut être améliorée par un meilleur choix de l'algorithme d'optimisation et l'injection d'information supplémentaire comme la différence de phase. Cependant, ces dernières améliorations n'ont pas abouti à une performance aussi bonne que la méthode d'intermodulation de phase.

5.1.3 Dispositif expérimental pour l'observation de la filamentation

Comme nous l'avons mentionné dans l'introduction et observé dans les simulations du chapitre 4, la filamentation a lieu sur des distances de quelques dizaines de mètres. La caractérisation expérimentale de ces filaments se fait dans une configuration que nous appelons par la suite "filamentation d'un faisceau initialement parallèle". Ce dispositif est illustré dans la Figure 5.15. Le faisceau sort du laser avec un diamètre maximal de 30 mm - limité par un diaphragme dans le système laser. Le profil spatial à l'intérieur de cette ouverture est une gaussienne de typiquement 15 mm à mi-largeur. Le faisceau est dirigé par des miroirs dans un couloir dans lequel l'impulsion se propage sur une distance de 50 mètres. A la distance de propagation choisie pour la caractérisation, une série de lames est utilisée en incidence rasante pour obtenir une réplique à faible intensité de l'impulsion. Ces lames à incidence rasante servent à augmenter la surface d'interaction entre la lame et le filament. La réflexion est récupérée et redirigée vers des diagnostics.

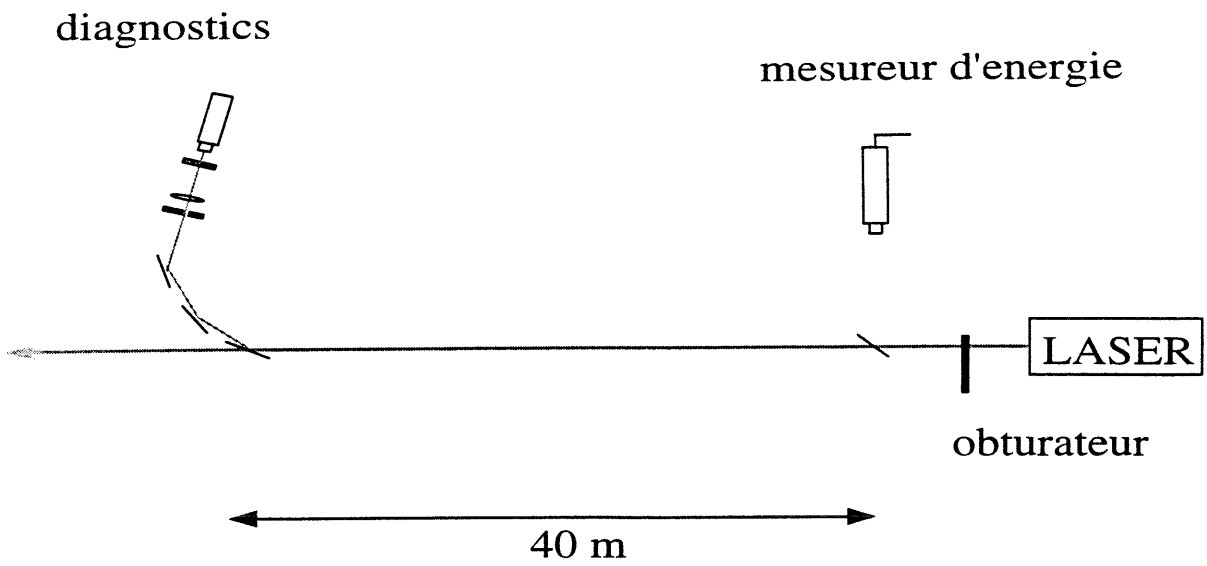


Figure 5.15: Schéma expérimental pour l'étude d'un faisceau initialement parallèle.

Comme expliqué dans l'introduction de ce chapitre, la filamentation d'un faisceau initialement parallèle présente des fluctuations tir-à-tir de la position transverse du filament de plusieurs fois son diamètre. De plus, l'expérience de propagation dans un couloir pose des problèmes de sécurité. Pour ces raisons, nous avons été amenés à modifier le dispositif expérimental.

Dispositif de filamentation d'un faisceau convergent

Nous avons mis au point un dispositif expérimental permettant d'obtenir des filaments sur une distance de 2 m ; la filamentation peut ainsi être analysée sur une dalle optique. Le nouveau montage expérimental génère un mode autoguidé à partir d'un faisceau convergent. Les avantages de cette nouvelle configuration résident dans 1) la réduction des fluctuations de la position du filament, 2) la réduction en taille de l'expérience et 3) la possibilité de confiner la filamentation dans un tube facilitant son étude en fonction de la pression ou de la nature du gaz. Une réflexion du filament sur la lame de sortie du tube est récupérée à l'aide d'une lame de silice et envoyée vers des diagnostics, comme illustré dans le schéma de la Figure 5.16. Les diagnostics qui sont utilisés pour la caractérisation spatiale, spectrale et la mesure de l'énergie sont des appareils standards spécifiés dans la suite.

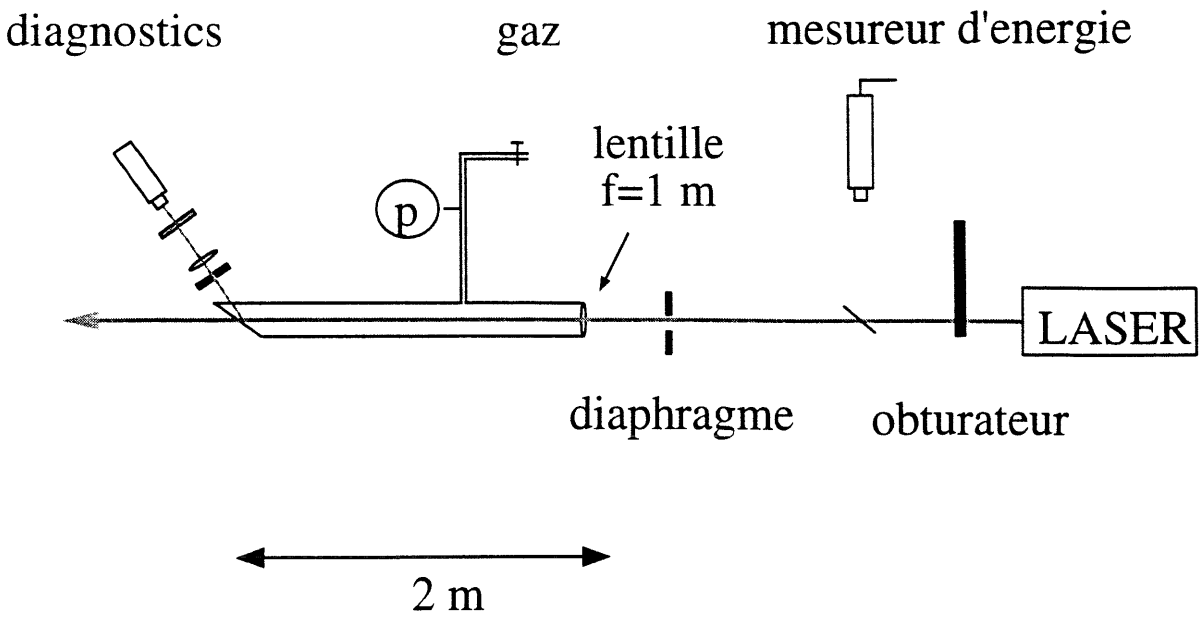


Figure 5.16: Dispositif expérimental pour l'étude de l'auto-focalisation d'un faisceau convergent.

L'analyse du profil spatial du filament se fait par une lentille qui produit une image de la réflexion du filament sur l'entrée d'une caméra ccd. Devant cette caméra se trouve une roue avec des densités différentes. Les densité variables permettent de s'adapter au flux recueilli par les lames. La calibration de la caméra ccd est effectuée avec un masque rectangulaire de dimension connue. Le masque est positionné à la place de la première lame de réflexion. L'extension en nombre de pixels sur le détecteur de la caméra donne l'agrandissement. Cette calibration nous permet de corriger la distorsion de la largeur horizontale introduite par la lame inclinée.

La caractérisation spectrale utilise un spectromètre champ plan. L'appareil permet l'utilisation d'un réseau de 100, 300 ou 600 traits par mm. Les bandes passantes spectrales sont respectivement 25, 50 et 200 nm. Le faisceau est couplé à travers un diaphragme et un diffuseur (papier calque) dans la fibre d'entrée du spectromètre. Pour les mesures des longueurs d'onde en dessous de 300 nm la fibre est démontée et la lumière est directement imagée sur la fente d'entrée du spectromètre. Un spectre correspond en général à un seul tir sélectionné par un système de synchronisation avec le laser et un temps d'ouverture du spectromètre de l'ordre d'une centaine de millisecondes. La calibration du spectromètre se fait avec une lampe au krypton pour le réseau de 300 traits/mm centré à une longueur d'onde de 800 nm. Pour le réseau de 100 traits/mm, une

lampe au néon donne les raies spectrales caractéristiques pour la calibration. La qualité du réglage du spectromètre est contrôlé in situ avec la matrice 2D du détecteur : une asymétrie des lignes spectrales indique une déviation du plan focal optimal, un décalage entre deux barrettes horizontales révèle un angle de rotation non optimal.

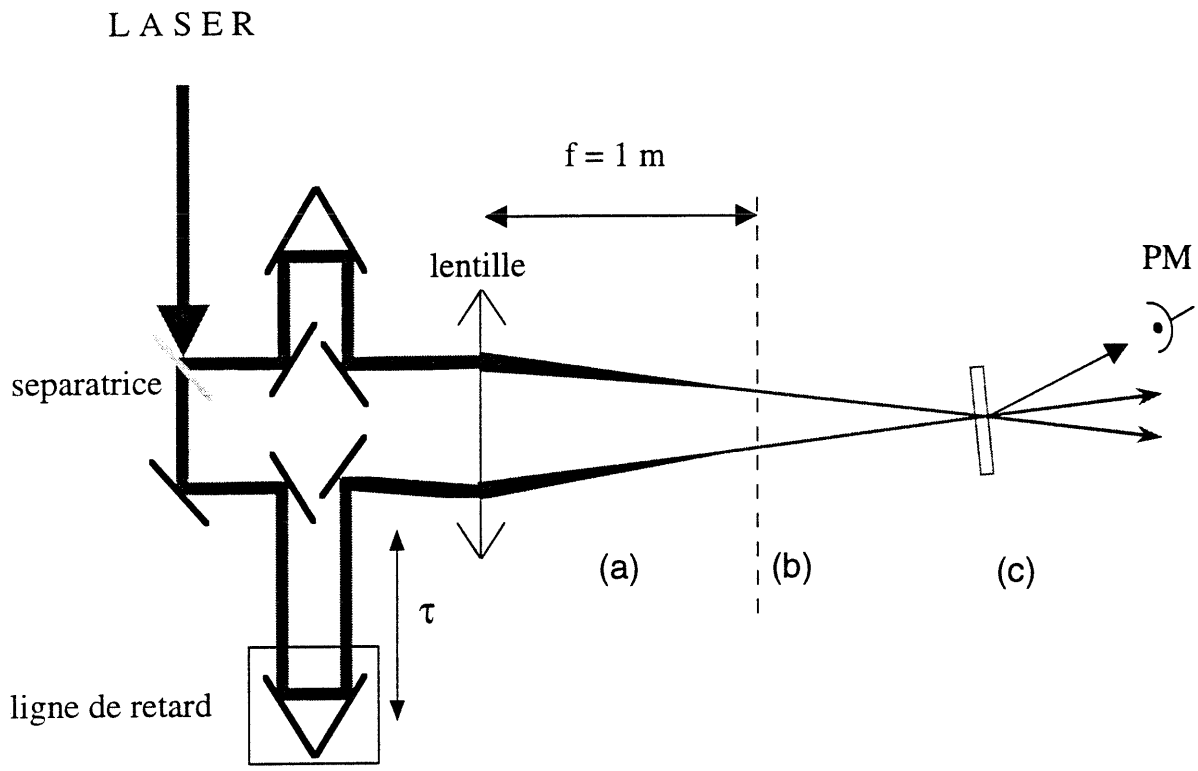


Figure 5.17: Dispositif expérimental pour la mesure de la durée d'une impulsion dans le mode autoguidé. Deux répliques de l'impulsion initiale avec un retard variable entre elles subissent l'auto-focalisation assistée par une lentille. Les deux filaments sont superposés dans une lame de silice de 400 μm d'épaisseur et donnent lieu à un signal de diffraction. Ce signal est enregistré par un photomultiplicateur en fonction du retard entre les deux impulsions autoguidées.

Pour la caractérisation temporelle des impulsions avant le début de la filamentation nous utilisons l'auto-corrélateur comme décrit dans le paragraphe 5.1.2. Pour la mesure de la durée dans les filaments, la forte intensité dans le filament ne permet pas l'utilisation d'un auto-corrélateur. La forte auto-modulation de phase des spectres dans le filament prédite par la simulation numérique du chapitre 4 ne permet pas non plus l'utilisation de la méthode de la mesure de phase développée plus haut pour les impulsions à la sortie du laser. A cause de ces difficultés, nous avons mis en place un dispositif expérimental qui mesure l'inter-corrélation de deux filaments par auto-diffraction [5.19]. Le montage expérimental de cette méthode nouvelle de mesure de la durée de l'impulsion dans les

filaments est illustré par la Figure 5.17. A notre connaissance, ce montage nous a permis pour la première fois de mesurer la durée d'une impulsion femtoseconde dans un mode autoguidé.

Une lame séparatrice 50/50 crée deux impulsions à la sortie du laser qui traversent un interféromètre de Michelson avec une ligne de retard. Les impulsions sont ensuite focalisées par la même lentille avec une focale de 1 mètre en MgF_2. Le verre MgF_2 possède une non-linéarité plus faible que les verres optiques standards. Une lame de silice placée à 70 cm du foyer permet d'induire un signal d'auto-diffraction dans une position précise. Pour que les parties de l'impulsion de faible intensité non capturées dans le filament ne contribuent pas à la mesure, on place la lame à une distance suffisamment éloignée du foyer de la lentille. Les deux filaments se couvrent dans la lame fine de silice avec un angle de 0.013 rad. Dans la direction $2\vec{k}_1 - \vec{k}_2$ nous mesurons l'intensité du signal à travers un diaphragme de 500 µm en fonction du retard entre les deux répliques. Le signal est accumulé sur dix passages sur la fenêtre de retard avec 5 tirs laser par position de retard. Un meilleur ajustement du signal de diffraction expérimental avec une fonction d'auto-corrélation de troisième ordre en supposant un profil gaussien pour l'impulsion nous donne une estimation de la durée de l'impulsion dans le filament.

Pour les mesures de la puissance nous utilisons un calorimètre qui permet la mesure de la puissance tir par tir. Les mesures prises dans le cadre de cette étude sont moyennées sur dix tirs. Pour la mesure d'énergie dans le filament, nous plaçons un diaphragme de typiquement 1 mm devant le calorimètre.

5.2 Caractérisation expérimentale des filaments

Avec ce dispositif expérimental nous avons observé la filamentation dans les deux géométries : faisceau initialement parallèle et faisceau initialement convergent. Les paramètres des filaments dans les deux cas sont résumés dans la Table 5.1.

Le faisceau initialement parallèle a été étudié sur des systèmes lasers différents. Le premier laser fournit des impulsions de 100 mJ d'énergie et d'une durée, mesurée par auto-corrélation, de 130 fs. Pour ce laser nous avons obtenu des filaments d'énergies comprises entre 8 et 30 mJ avec un faisceau initial de 25 mm de diamètre. Le point

d'auto-focalisation se situe vers 12 m pour 30 mJ. Quand l'énergie dépasse 30 mJ par impulsion, plusieurs filaments sont générés. La position transversale de ces multiples filaments est très instable. Ils se forment à partir des inhomogénéités qui se développent en points chauds. Le diamètre des filaments est de 80 µm. L'énergie mesurée dans le filament est 0,75 – 1 mJ. Dans le cas d'un seul filament, on observe un anneau autour du filament à la fréquence fondamentale et une émission conique à des fréquences supérieures à la fréquence fondamentale [5.20]. Un diaphragme de 500 µm qui est placé dans le faisceau permet d'arrêter la filamentation. Par conséquent, nous supposons que les segments du faisceau autour du filament alimentent la propagation autoguidée.

	faiseau initial	**filament**
faisceau parallèle		
durée	140 (50, 100) fs	< 100 fs
énergie	30 - 100 mJ	
diamètre	30 mm	80 µm
longueur de propagation	15 - 50 m	
faisceau convergent		
durée	150 - 500 fs	70 fs
énergie	0.5 - 10 mJ	150 µJ
diamètre	5 - 10 mm	400 µm
longueur de propagation	0.5 - 2.0 m	

Tableau 5.1: Résumé des paramètres typiques de la filamentation pour la propagation dans l'air d'une source à 800 nm.

La filamentation d'un faisceau convergent nécessite très peu d'énergie comparée avec le cas précédent. Un filament de 400 µm de diamètre est observé dans l'air pour une énergie initiale de 1.5 mJ et un diamètre du faisceau de 7 mm. L'énergie dans le filament est typiquement 150 µJ. Comme dans le cas du faisceau parallèle, une augmentation de l'énergie provoque l'apparition de plusieurs filaments. Une réduction de l'énergie conduit à une diffraction du faisceau dans le champ lointain. Nous avons observé dans

l'expérience un rétrécissement successif du diamètre avec la croissance de l'énergie sur un écran positionné à 3 m de la lentille. A partir de la tache de diffraction à faible énergie, on observe d'abord une légère concentration de la lumière sur l'axe, puis l'apparition d'un anneau et finalement la formation d'un centre brillant sur l'axe de propagation. Un diaphragme de 500 μm de diamètre placé à une distance d'un mètre en aval de la lentille ne détruit pas le filament. Cela indique que le filament est établi dans le cas d'un faisceau convergent autour du foyer de la lentille. Les parties du faisceau non capturées dans le mode autoguidé diffractent et n'alimentent plus le filament. Le processus de la formation du filament en fonction de l'énergie à partir du faisceau convergent est beaucoup plus symétrique que la formation d'un filament avec le faisceau parallèle du même laser. Cependant, la filamentation à partir d'un faisceau convergent est très sensible à la qualité spatiale du faisceau. En bloquant une partie du faisceau initial avant la lentille, la filamentation peut être induite sur plusieurs points bien définis. En plus de la dépendance de la filamentation sur la géométrie de la tache initiale, la phase spatiale est particulièrement importante. Car dans plusieurs expériences le filament n'a pu être établi uniquement qu'après un réglage soigneux du compresseur. Nous remarquons également, que nous avons observé des filaments d'une très forte brillance avec des impulsions de 30 fs et une énergie de quelques mJ en géométrie convergente. La brillance de ces filaments est comparable à la couleur du continuum généré dans une lame de verre et nous paraît qualitativement différente des filaments analysés dans ce chapitre.

Après ce résumé de l'observation expérimentale des filaments nous allons étudier les aspects spatiaux, spectraux et temporels en détail dans les paragraphes suivants. Les résultats expérimentaux sont directement comparés avec les simulations numériques. La discussion à la fin de ce chapitre adresse une controverse sur l'interprétation de la filamentation et compare l'ensemble des résultats expérimentaux présentés dans ce chapitre avec des expériences publiées par ailleurs.

5.2.1 Mesure spatiale

La mesure du diamètre est effectué par une caméra CCD (« charged coupled device ») qui enregistre l'image du mode autoguidé à travers une lentille et un atténuateur. La calibration de l'image se fait par un masque de taille connu placé sur la lame de réflexion. La Figure 5.18 montre la mesure du profil initial à l'entrée et d'un profil du filament après 70 cm de propagation. Les 380 µm de diamètre représentent une compression spatiale d'un facteur 20 comparé avec le diamètre initial de 7 mm. Le diamètre obtenu dans la simulation de l'auto-focalisation dans l'air pour une impulsion de 120 fs, 2 mJ d'énergie initiale (après le diaphragme), d'un profil super-gaussien de 7 mm à mi-hauteur et focalisée par une lentille de f=1 m donne 120 µm de diamètre.

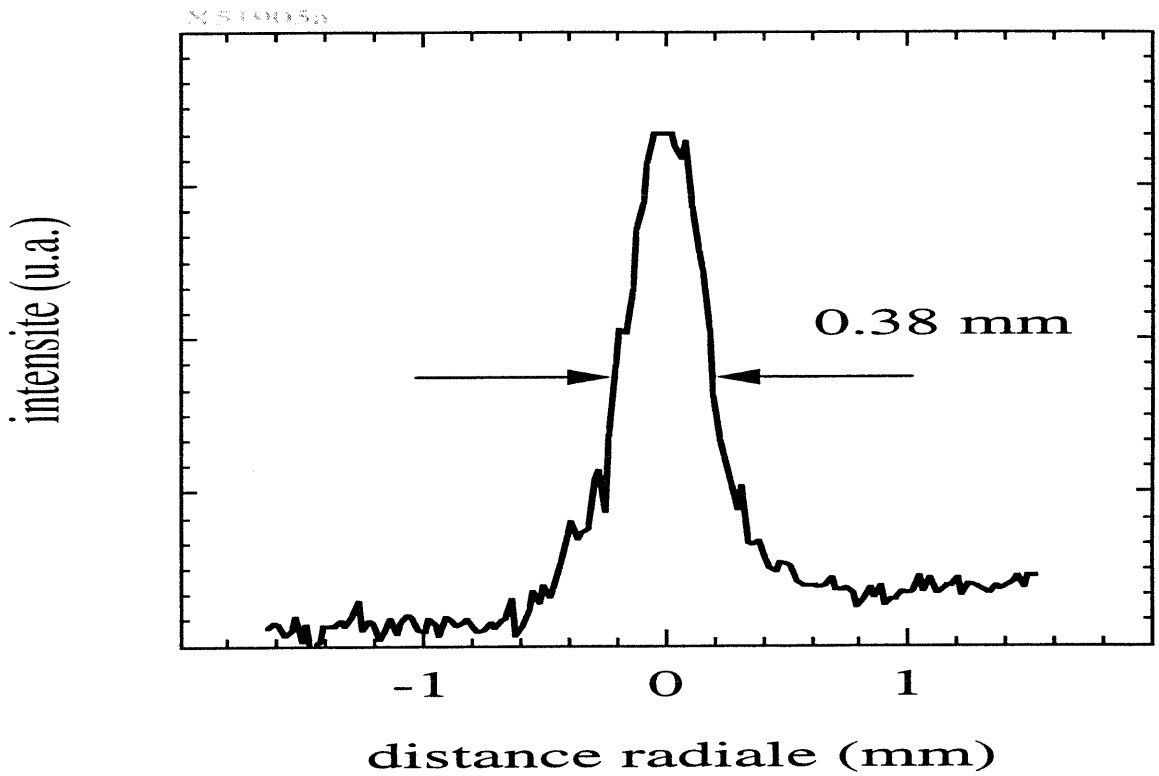


Figure 5.18: Profil spatial de l'impulsion dans le filament 70 cm après la propagation en mode autoguidé (géométrie d'un faisceau convergent) pour des impulsions initiales d'une durée de 130 fs, d'une énergie de 30 mJ et à une longueur d'onde de 800 nm.

La différence entre calcul et expérience peut s'expliquer par plusieurs effets. D'abord, le profil super-gaussien de la simulation n'est qu'une approximation du profil expérimental créé par le diaphragme. Dans la simulation, l'utilisation d'un profil

rectangulaire est rendu difficile à cause des phénomènes de diffraction et nécessiterait une trop grande résolution spatiale. La variation rapide de l'intensité radiale conduit à une diffraction importante qui n'est plus absorbée sur les bords de la boite de calcul. Ensuite, un deuxième détail expérimental négligé dans la simulation est la présence des anneaux de diffraction dans le profil spatial réel expérimental. Comme nous l'avons vu dans les simulations du paragraphe 4.5, une distribution annulaire de l'intensité affecte considérablement la propagation. En plus de ces deux effets, une inhomogénéité spatiale dans le profil expérimental a tendance à augmenter la tache focale au foyer de la lentille et peut également contribuer à un élargissement du diamètre du faisceau autoguidé.

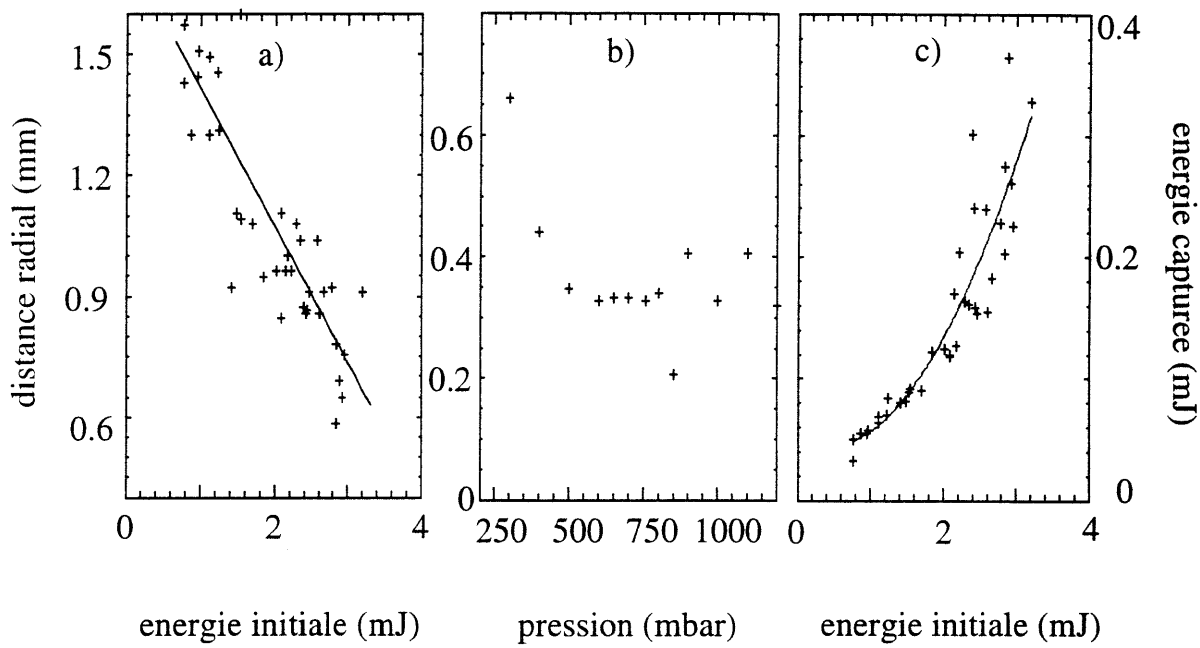


Figure 5.19: a) Diamètre en fonction de l'énergie initiale et b) de la pression. c) Energie dans le mode autoguidé en fonction de l'énergie initiale. Géométrie de la lentille *f*= 1m, $\Delta\tau$=130 fs, r=6 mm.

La mise en place du nouveau dispositif expérimental dans une géométrie de faisceau convergent nous permet d'étudier les conditions de la filamentation en fonction de la pression et de la nature du gaz. Le diamètre du faisceau décroît avec la pression et l'énergie comme présenté dans la Figure 5.19 a) et b). Les mesures de la courbe a) correspondent à la réduction du diamètre observée dans les simulations du chapitre 4 .

La courbe b) dans la Figure 5.19 représente la transition entre un faisceau à diffraction réduite par l'effet Kerr et un faisceau laser autoguidé. Ce phénomène est analogue à l'observation de la naissance d'un filament en fonction de l'énergie ou du diamètre

initial dans les simulations étudiées dans le chapitre 4. Dans l'expérience le détecteur commence à enregistrer une concentration de l'intensité à partir d'une pression de 250 mbar, le faisceau se propageant dans le vide étant plus grand que la surface de détection. En augmentant la pression, un filament stable se forme et se rétrécit avec la pression. A partir de 700 mbar, la position de la tache devient instable. Au-dessus de 1 bar plusieurs filaments apparaissent sur l'écran. C'est le moment où la différence entre expérience et simulation apparaît. Dans la simulation, le diamètre du mode autoguidé reste à peu près constant en fonction de l'énergie et à cause de la parfaite symétrie de révolution, un seul filament persiste. L'expérience fournit (voir la courbe 5.19 b)) une estimation du diamètre minimal d'un faisceau autoguidé dans un gaz. Les diamètres minimaux obtenus pour l'argon, l'oxygène et le xénon sont respectivement 450 µm, 360 µm et 320 µm.

La dépendance de l'énergie piégée dans le filament en fonction de l'énergie initiale est montrée dans la Figure 5.19 c). Les expériences montrent que le mode autoguidé contient moins de 10% de l'énergie initiale du faisceau. Ces valeurs ont été mesurées après une distance de 70 cm après le foyer en géométrie convergente. Les valeurs correspondantes de la simulation sont comprises entre 1 et 5 % dans les mêmes conditions.

Jusqu'ici nous avons considéré le diamètre du mode autoguidé comme une quantité macroscopique. Nous étudierons dans ce paragraphe la dynamique microscopique par une analyse du diamètre en fonction de la distance de propagation. Dans les simulations nous avons observé une oscillation du diamètre du mode autoguidé près du point d'auto-focalisation (Figure 4.19 du chapitre précédent). Expérimentalement, la focalisation de toute l'énergie de l'impulsion par la lentille dans la région focale masque ce phénomène dans l'expérience: une lame introduite dans le voisinage du foyer est immédiatement endommagée. Par contre, il est possible d'introduire une perturbation du filament plus loin en aval du foyer en utilisant une lame de verre. Une telle lame dont la non-linéarité est 10^3 fois plus grande que celle de l'air introduit une lentille Kerr supplémentaire conduisant à une réduction du diamètre du filament. A partir de la sortie de la lame, le diamètre relaxe dans une oscillation à un diamètre correspondant au quasi-équilibre entre effet Kerr, ionisation et diffraction dans l'air. La réduction en diamètre introduite par une lame est de 0,4 mm à 0,3 mm pour un filament créé à partir d'un rayon initial

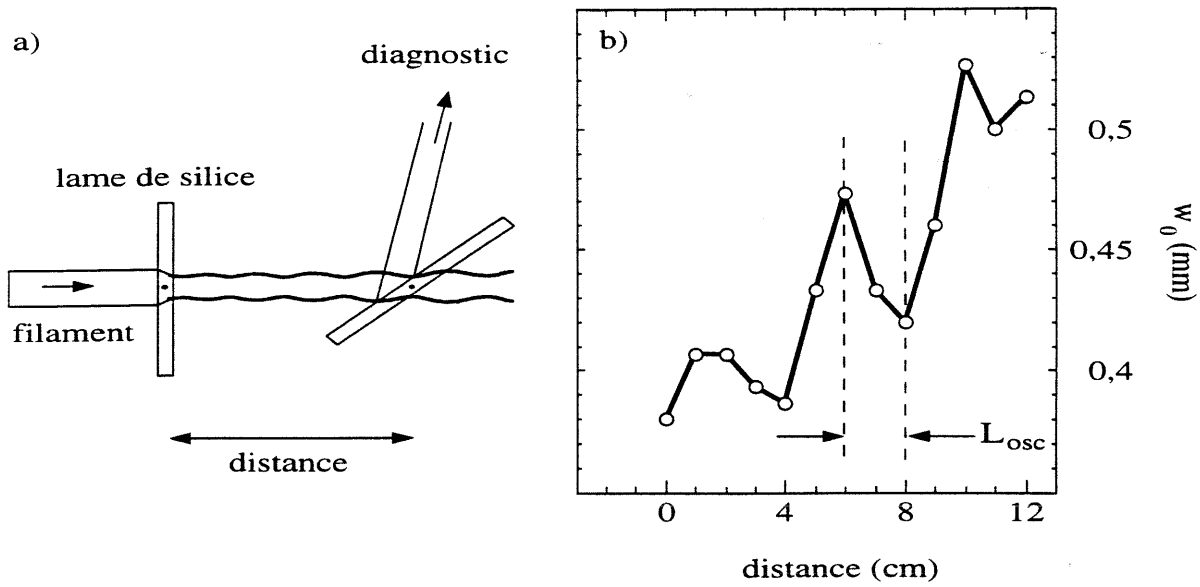


Figure 5.20: Instabilité de modulation introduite par une lame de verre. a) Dispositif expérimental - le filament introduit dans une première lame de 4 mm d'épaisseur une lentille de Kerr, se rétrécit et se propage avec des oscillations spatiales vers une deuxième lame sur une distance variable ; le diamètre de la réflexion sur cette deuxième lame est mesuré en fonction de la distance entre les deux lames. b) Variation du diamètre (cercles) en fonction de la distance entre les deux lames. En comparaison l'oscillation du diamètre obtenu par la simulation (trait gris) décrite dans la Figure 4.21 du chapitre précédent. Le filament est créé avec une impulsion de 3.5 mJ, r=4 mm et une lentille de *f*=1 m.

de 4 mm [5.21]. Le diamètre est mesuré chaque fois par la réflexion du filament sur la face de sortie de la lame comme illustré dans le schéma de la Figure 5.20 a).

La Figure 5.20 b) montre le résultat expérimental de l'expansion oscillatoire du faisceau autoguidé. La période d'oscillation est comparable à la simulation présentée en gris au dessus de la courbe expérimentale (voir Figure 4.21). Dans le cas expérimental, le faisceau s'élargit plus vite que dans le cas simulé, ce qui s'explique par le fait que le diamètre réduit à la sortie de la lame n'est pas le diamètre correspondant au quasi-équilibre dynamique entre diffraction, effet Kerr et ionisation dans l'air. Par conséquent, l'ionisation est dominante et diffracte le faisceau rapidement jusqu'à la largeur spatiale du quasi-équilibre.

5.2.2 Mesures spectrales

Nous avons vu dans la première partie de ce chapitre l'intérêt qu'il y a d'exploiter des informations spectrales pour caractériser des filaments. A partir d'un certain nombre de spectres d'une impulsion propagée nous sommes capables de reconstituer la phase de l'impulsion, ce qui n'est accessible par aucune autre technique de mesure expérimentale. C'est l'information contenue dans les spectres qui nous suggère d'effectuer une exploration spectrale des filaments. Un grand avantage des spectres réside dans la facilité de leur mesure comparée avec la difficulté de la caractérisation temporelle de l'impulsion. Les spectres du filament sont enregistrés à partir d'une réflexion du filament sur une lame (voir la description des diagnostics dans le paragraphe 5.1.3).

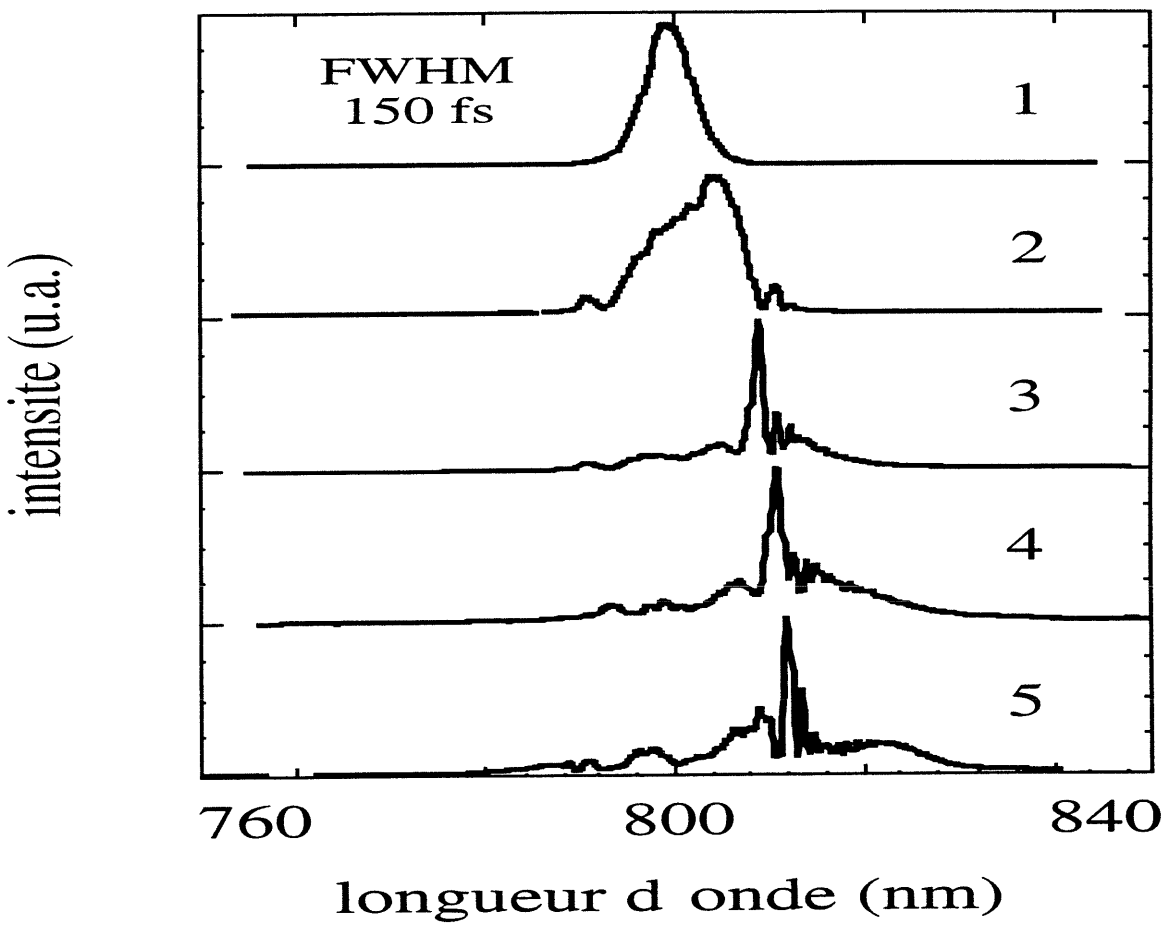


Figure 5.21: évolution spectrale d'une impulsion de 150 fs, rayon de 10 mm et 20 mJ. Géométrie d'un faisceau initialement parallèle. Spectres expérimentaux en fonction de la distance de propagation a) 7 m, b) 10 m, c) 40 m et d) 50 m.

La Figure 5.21 montre l'évolution du spectre pendant l'autoguidage en fonction de la distance de propagation pour un faisceau initialement parallèle. Les simulations correspondantes sont celles présentées dans la Figure 4.17. Les paramètres de la simulation ne sont pas identiques avec ceux de l'expérience, car la simulation de la filamentation d'un faisceau initialement parallèle de 25 mm diamètre dépasse la capacité de calcul de notre ordinateur. Dans la simulation nous utilisons comme paramètres un diamètre de 6 mm, à comparer avec les paramètres expérimentaux de 25 mm. Pourtant, on observe une grande ressemblance dans la dynamique spectrale. Dans la simulation comme dans l'expérience le spectre est fortement modifié pendant la propagation: l'auto-modulation au début de la propagation, l'apparition des ailes lointaines et la formation d'un pic central qui persiste pendant toute la propagation. La modulation oscillatoire du spectre prédite par la simulation se retrouve bien dans l'expérience. Pour observer expérimentalement l'élargissement spectral durant la filamentation l'utilisation d'un réseau de 300 traits est exigée. Une étude détaillée de la modulation oscillatoire dans les ailes avec une meilleure résolution spectrale demande l'enregistrement de plusieurs

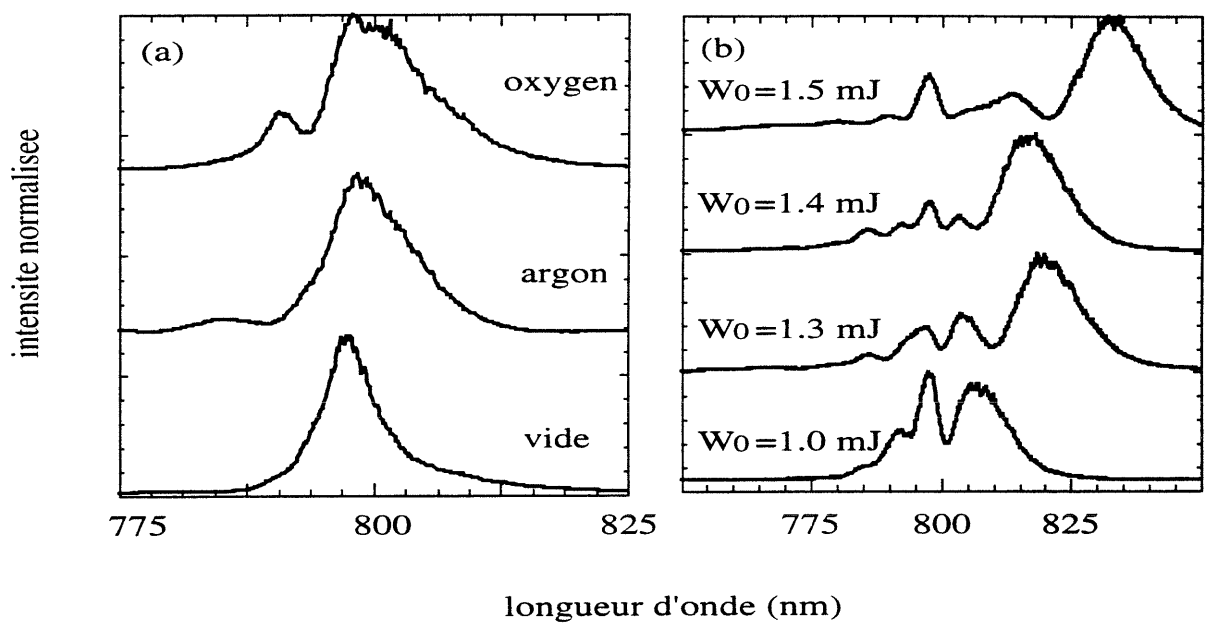


Figure 5.22: Spectres typiques: (a) spectre de référence dans le vide, spectre dans l'argon et dans l'oxygène au début de la filamentation, (b) variation du spectre dans l'air avec l'énergie. Faisceau initialement convergent avec une lentille de f=4m, w_0= 12 mm, $\Delta\tau$=130 fs et une énergie de 10 mJ par impulsion.

spectres entre 300 et 1200 nm. Le contraste entre le maximum d'intensité spectrale près de la fréquence centrale et les ailes extrêmes du spectre est de l'ordre de 500 dans le cas de la géométrie parallèle. Les détails des spectres fluctuent d'un tir à l'autre, ce qui est reflété dans la simulation par leur changement erratique en fonction de z (Figure 4.23).

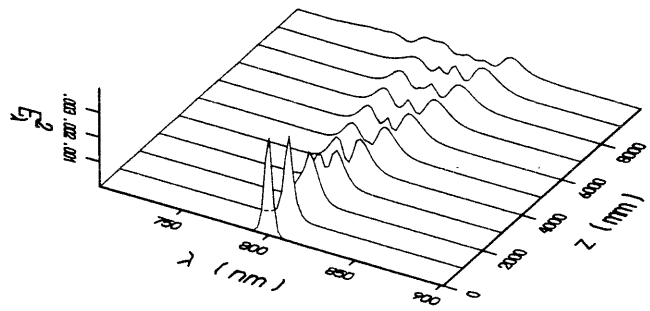


Figure 5.23: Simulation de l'évolution spectrale dans une géométrie initialement parallèle. L'impulsion initiale est définie par $\Delta\tau$=150 fs , w_0=6,5 mm, W= 50 mJ, $n_{2,i}$=3.2 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,R}$=3,2 10^{-19} cm^2/W.

Le nouveau dispositif de filamentation en géométrie convergente permet d'analyser l'influence de la nature du gaz, de la pression et du rapport de l'effet Kerr instantané et non-instantané sur le spectre. La Figure 5.22 a) montre le spectre du laser sans gaz dans le tube, le spectre de l'argon et le spectre de l'oxygène. La Figure 5.22 b) montre la déformation du spectre d'un mode autoguidé en fonction de l'énergie. On notera le décalage vers le rouge lié à la réponse non-instantanée dans l'air [5.22]. La simulation présentée dans la Figure 5.23 montre une simulation qui révèle une forte ressemblance avec la modulation spectrale observée dans la Figure 5.22 b). Dans l'expérience, la variation spectrale est montrée en fonction de l'énergie, dans la simulation la variation spectrale est montrée en fonction de la distance de propagation. La ressemblance entre les deux cas suggère, que la modulation spectrale dans ce régime de filamentation est

proportionnelle au produit énergie*distance et une propagation en z est ainsi équivalente à une augmentation en énergie. L'effet Kerr comme source de la modulation pourrait par exemple expliquer une telle ressemblance.

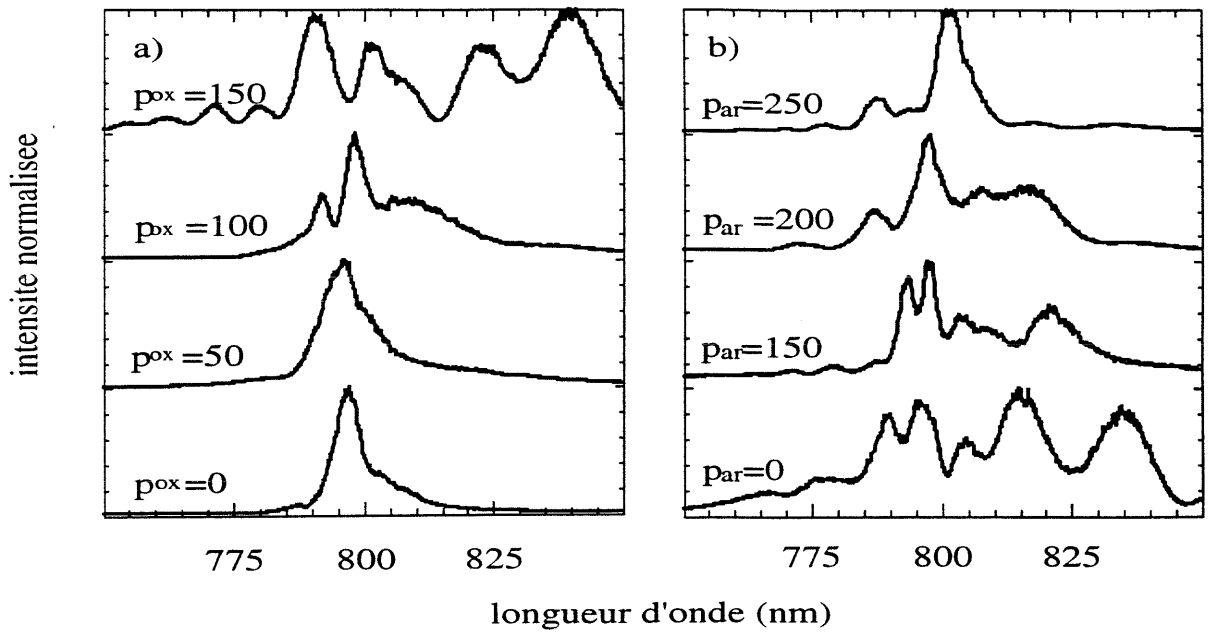


Figure 5.24: Evolution du spectre en fonction des pressions partielles d'argon (Kerr instantané) et d'oxygène (Kerr non-instantané). (a) pression de l'argon constante à 150 mbar, (b) pression de l'oxygène constante à 150 mbar. Faisceau initialement convergent avec une lentille de f=4m, w_0= 12 mm, $\Delta\tau$=130 fs et une énergie de 10 mJ par impulsion.

La Figure 5.24 expose une série de spectres enregistrés dans un mélange de gaz à réponse instantanée (argon) et non-instantanée (oxygène). Dans le cas où la pression de l'argon est maintenue constante et la pression d'oxygène augmentée, le spectre s'élargit et devient fortement modulé (Figure 5.24 a)). Dans le cas inverse de la Figure 5.24 b), on observe que la modulation non-linéaire se réduit si on ajoute de l'argon dans l'oxygène, même si le coefficient non-linéaire augmente. Ce résultat est d'un premier regard surprenant. La comparaison avec les modulations spectrales dans une simulation montrée dans la Figure 5.25 permet d'avancer une explication. Comme les spectres expérimentaux sont toujours mesurés dans la même position, le changement spectral observé expérimentalement peut correspondre à un décalage d'une zone de modulation. Ce déplacement peut être effectué soit en ajoutant de la non-linéarité soit en diminuant la non-linéarité. Il est clair, que cela n'est qu'une hypothèse. L'exploration de cette hypothèse serait intéressante, mais dans l'orientation de cette thèse une étude

quantitative de cet effet a été à la fois limité par le temps de calcul nécessaire pour une simulation systématique et les limites du modèle exact de la réponse non-instantanée. Vu les incertitudes sur les propriétés exactes du tir laser sélectionné, une comparaison quantitative des spectres d'un filament obtenus par expérience et simulation reste difficile.

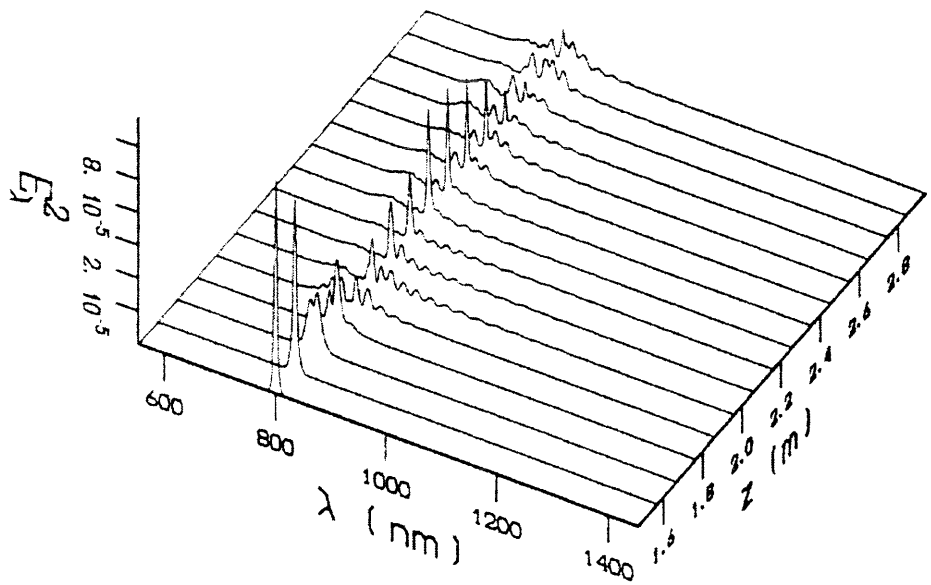


Figure 5.25: Simulation de l'évolution spectrale. On observe une renaissance du spectre durant la propagation non seulement en intensité mais dans sa structure typique. L'impulsion initiale est définie par $\Delta\tau$=120 fs , un profil spatial super-gaussien d'ordre 6 avec w_0=2 mm , W= 0,6 mJ, $n_{2,i}$=2.4 10^{-19} cm^2/W à une densité des atomes 1.7 fois celui de l'atmosphère et focalisé par une lentille de f = 1,9 m.

5.2.3 Mesure de la durée de l'impulsion

Nous entreprenons la caractérisation de l'impulsion dans deux expériences différentes. Dans la première nous caractérisons la compression de l'impulsion durant l'auto-focalisation avec un auto-corrélateur. Dans la deuxième, nous mesurons la durée de l'impulsion dans le filament à l'aide du signal d'auto-diffraction entre deux filaments. Le choix des deux méthodes différentes est dû au fait que la mesure avec un auto-corrélateur est simple dans la région d'auto-focalisation. Par contre, dans le filament, l'intensité élevée ne permet pas d'utiliser un auto-corrélateur. Le positionnement des

deux mesures en rapport avec la filamentation est illustré par le schéma de la Figure 5.26.

Avant le début du filament, dans la zone de l'auto-focalisation, l'emploi de l'auto-corrélateur représente une méthode standard. Pour la mesure de la compression Kerr une lame dans le faisceau extrait une réflexion de l'impulsion. A cause d'un profil spatial bruité, nous avons centré un diaphragme d'un millimètre de diamètre autour d'un point chaud qui se développe sur une distance de 17 m dans un filament. Dans une première mesure, nous avons positionné la lame de

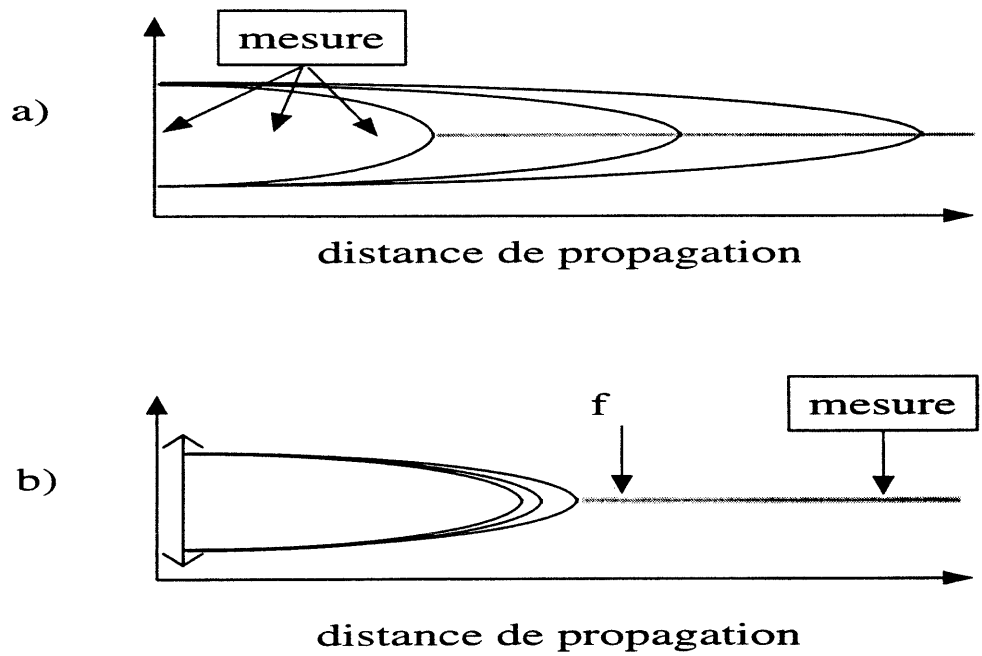


Figure 5.26: Deux méthodes complémentaires pour la mesure de la durée d'une impulsion en propagation non-linéaire. Pour une impulsion dans l'étape d'auto-focalisation en utilisant un auto-corrélateur, b) pour l'étape de l'auto-guidage dans le filament une expérience d'auto-diffraction.

réflexion sur une distance de 7.6 m et de 12.1 m et mesuré la durée initiale de l'impulsion à faible flux correspondant, en absence des effets non-linéaires, à une distance de zéro mètres. Le résultat est montré dans la Figure 5.27, avec a) les trois auto-corrélations (moyennées sur trois passages, acquisition de cinq tirs laser par valeur expérimentale ou une diode permet de sélectionner les tirs dans une fenêtre d'énergie). La comparaison des mesures avec la simulation est montrée en Figure 5.27 b). Dans la simulation, le paramètre de la taille du faisceau initial est un paramètre difficile à

comparer avec l'expérience, car par principe l'inhomogénité de la distribution spatiale ne peut pas être simulée dans une géométrie de révolution. Le diamètre effectif choisi dans la simulation est 12 mm comparé à 20 mm dans l'expérience. Cette estimation paraît raisonnable au vu du fait que le faisceau a filamenté non au centre du profil initial, mais autour d'un point chaud hors axe.

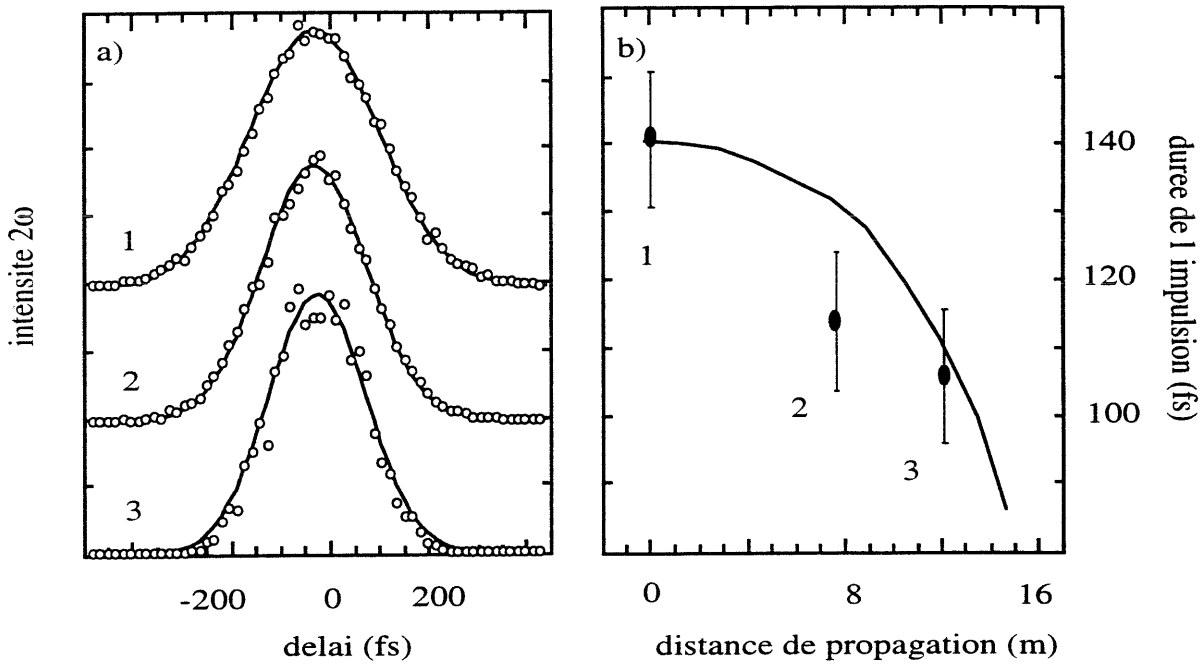


Figure 5.27: Mesure de la durée en amont du foyer d'auto-focalisation en fonction de la distance de propagation non-linéaire. a) Intensité du signal de la génération de deuxième harmonique en fonction du retard - à faible énergie l'impulsion initiale avec $\Delta\tau$= 140 fs (1), à z= 7,6m et W=15 mJ une durée de $\Delta\tau$= 114 fs (2) et à z= 12,1 m et W= 15 mJ une durée de $\Delta\tau$= 106 fs (3). La comparaison des durées déterminées par auto-corrélation (points) et par la simulation est montrée dans b) : l'impulsion initiale pour la simulation est définie par $\Delta\tau$=140 fs, W_0= 15 mJ, $n_{2,i}$=3,2 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,R}$=3,2 10^{-19} cm^2/W et w_0=6,25 mm.

La compression Kerr de l'impulsion peut être également être mise en évidence par une augmentation de l'énergie pour une position longitudinale fixe. La Figure 5.28 montre cette expérience pour une impulsion avec une phase quadratique et une durée de 540 fs. L'augmentation de l'énergie correspond à une augmentation de la lentille Kerr, de sorte que la compression spatio-temporelle est de plus en plus ramenée vers la source. Cet effet est bien visible dans la réduction successive de la durée de l'impulsion en fonction de l'énergie initiale (Figure 5.28).

comparer avec l'expérience, car par principe l'inhomogénité de la distribution spatiale ne peut pas être simulée dans une géométrie de révolution. Le diamètre effectif choisi dans la simulation est 12 mm comparé à 20 mm dans l'expérience. Cette estimation paraît raisonnable au vu du fait que le faisceau a filamenté non au centre du profil initial, mais autour d'un point chaud hors axe.

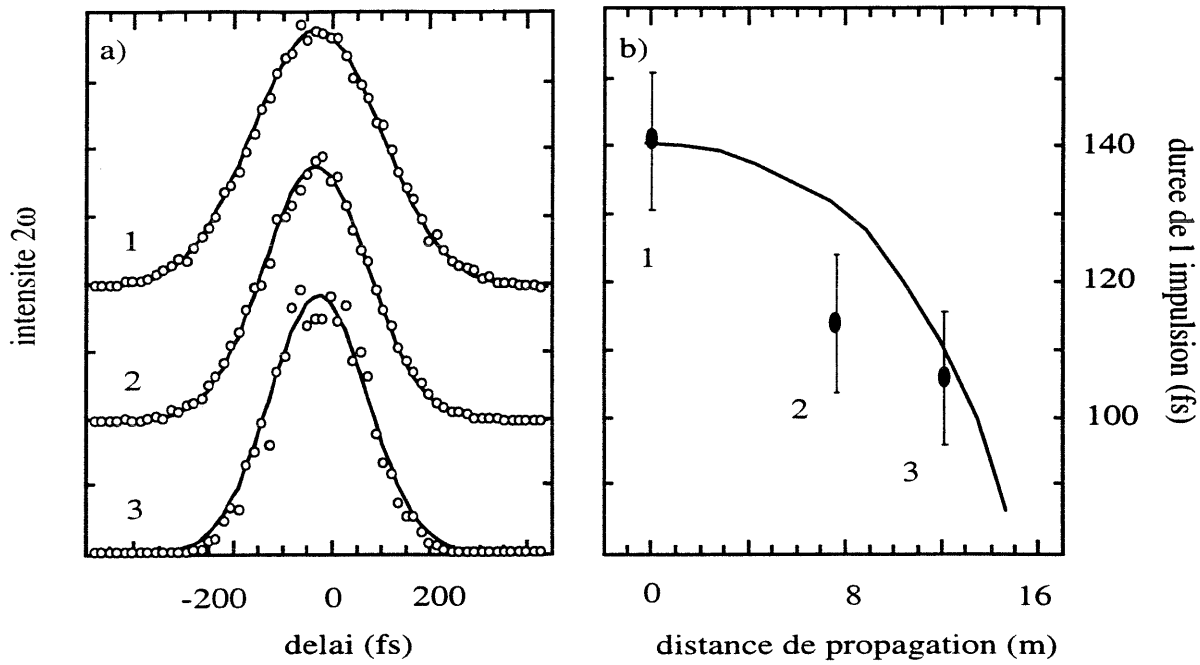


Figure 5.27: Mesure de la durée en amont du foyer d'auto-focalisation en fonction de la distance de propagation non-linéaire. a) Intensité du signal de la génération de deuxième harmonique en fonction du retard - à faible énergie l'impulsion initiale avec $\Delta\tau$= 140 fs (1), à z= 7,6m et W=15 mJ une durée de $\Delta\tau$= 114 fs (2) et à z= 12,1 m et W= 15 mJ une durée de $\Delta\tau$= 106 fs (3). La comparaison des durées déterminées par auto-corrélation (points) et par la simulation est montrée dans b) : l'impulsion initiale pour la simulation est définie par $\Delta\tau$=140 fs, W_0= 15 mJ, $n_{2,i}$=3,2 10^{-19} cm^2/W et $n_{2,R}$=3,2 10^{-19} cm^2/W et w_0=6,25 mm.

La compression Kerr de l'impulsion peut être également être mise en évidence par une augmentation de l'énergie pour une position longitudinale fixe. La Figure 5.28 montre cette expérience pour une impulsion avec une phase quadratique et une durée de 540 fs. L'augmentation de l'énergie correspond à une augmentation de la lentille Kerr, de sorte que la compression spatio-temporelle est de plus en plus ramenée vers la source. Cet effet est bien visible dans la réduction successive de la durée de l'impulsion en fonction de l'énergie initiale (Figure 5.28).

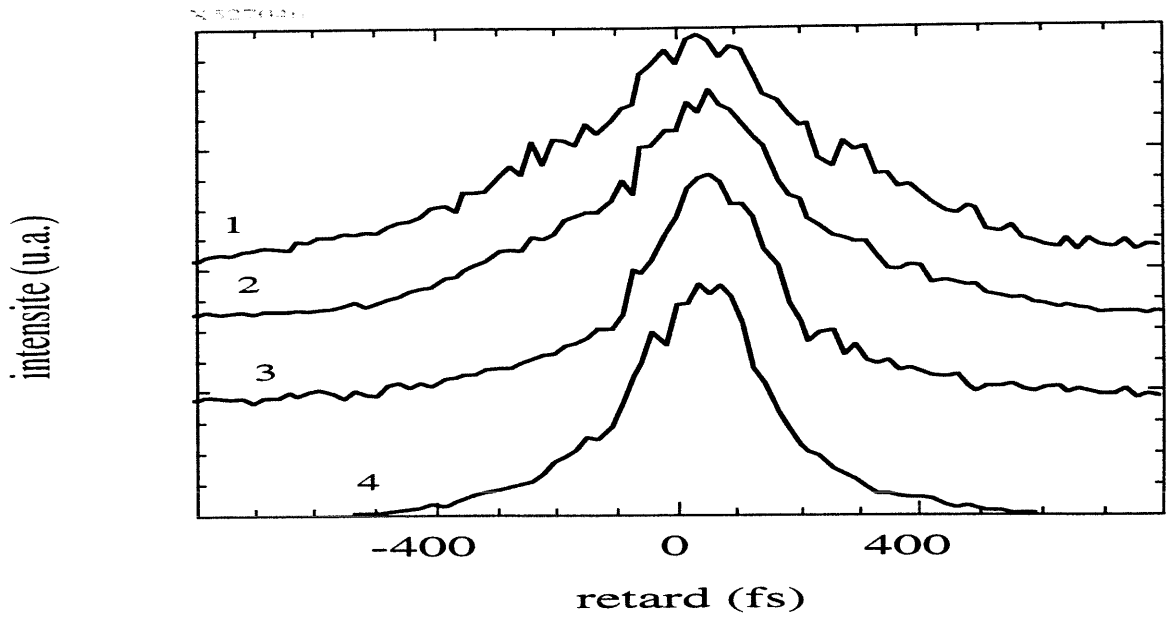


Figure 5.28: Mesure de la durée en amont du foyer d'auto-focalisation en fonction de l'énergie de l'impulsion après 14 m de propagation dans l'air. Intensité du signal de la génération de deuxième harmonique en fonction du retard pour quatre énergies initiales différentes : W=2 mJ conduit à $\Delta\tau$ = 540 fs (4), W=10 mJ conduit à $\Delta\tau$ = 312 fs (3), W=25 mJ conduit à $\Delta\tau$ = 197 fs (2) et W=31 mJ conduit à $\Delta\tau$ = 175 fs (1). Les estimations de la durée de l'impulsion sont obtenues avec un auto-corrélateur sur l'axe du faisceau. Un diaphragme de 1mm en diamètre sélectionne la partie centrale du faisceau.

Pour mesurer la durée dans le filament, nous utilisons le dispositif expérimental expliqué dans le paragraphe 5.1.3. Deux répliques identiques de l'impulsion sont utilisées pour la formation de deux filaments. Ces deux filaments sont superposés dans une lame de verre fine et donnent lieu à un signal d'auto-diffraction. Ce signal est enregistré en fonction du retard variable entre les deux filaments. Dans la Figure 5.29 a) la courbe 1 montre l'impulsion initiale mesurée avec le même dispositif expérimental, où le faisceau à faible flux était focalisé dans la lame de silice placée au foyer de la lentille de f=1 m. La courbe 2 dans la Figure 5.29 a) montre le signal d'auto-diffraction dans le filament. Les fits obtenus avec une minimisation basée sur un profil gaussien de l'impulsion donnent 140 et 70 fs pour l'impulsion initiale et l'impulsion autoguidée. Nous avons vérifié qu'un changement de l'épaisseur de la lame laisse le résultat de la mesure inchangé en remplaçant la lame de 50 µm par des lames de 100, 200 et 500 µm. Le fait que la durée estimée avec cette méthode ne varie pas avec l'épaisseur de la lame montre que la dispersion dans la lame est négligeable. La lame de 500 µm fait apparaître des ordres élevées de diffraction dans les directions $n\left(2\vec{k}_1 - \vec{k}_2\right)$.

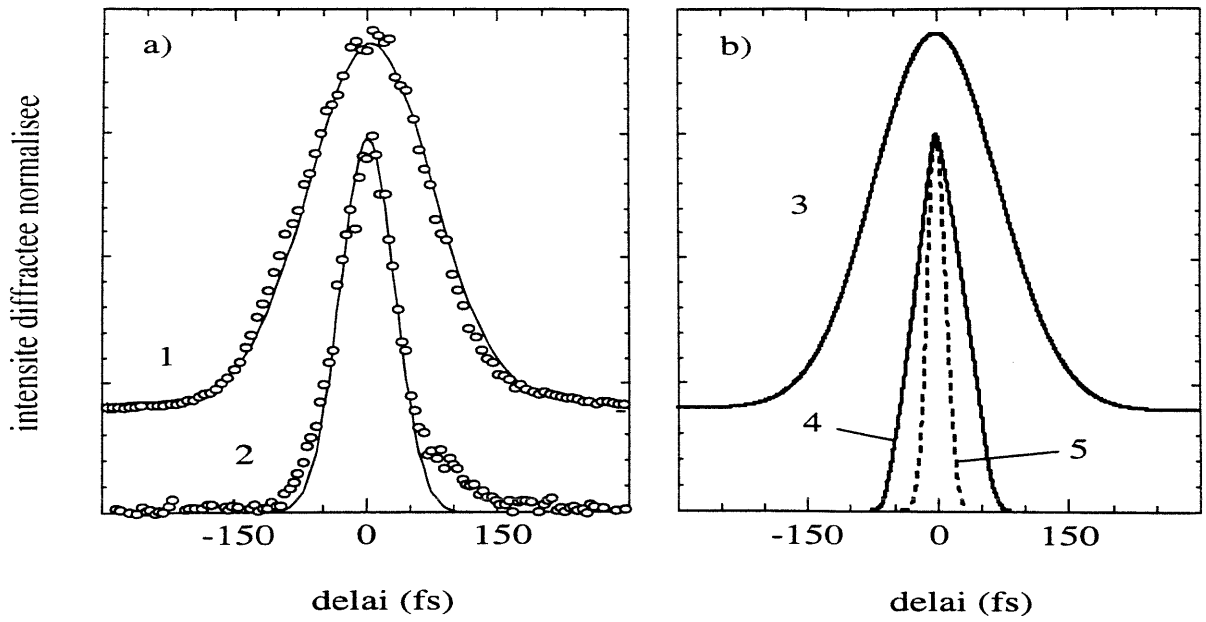


Figure 5.29: Mesure et calcul de la durée de l'impulsion dans le mode autoguidé. a) Mesure expérimentale avec le signal de diffraction de l'impulsion initiale (1) et autoguidée (2), b) calcul du signal de diffraction créé par l'impulsion initiale (3) et autoguidée en pointillé (5) donné par le code. Le signal de diffraction (5) est obtenu par un modèle unidimensionnelle qui prend en compte la dispersion et l'auto-modulation de phase pendant la propagation de l'impulsion entre le foyer d'auto-focalisation et le point de mesure dans la lame de silice. Les paramètres détaillés sont données dans le texte).

Le code numérique donne une impulsion d'une durée de 20 fs près du foyer et qui se propage dans une façon quasi-stable sur un mètre. Les paramètres initiaux de la simulation sont la focale de f=1 m, la durée 140 fs, le diamètre 6 mm et l'énergie 2 mJ pour obtenir un filament dans cette configuration. La comparaison du résultat expérimental de 70 fs avec le résultat numérique de 15-20 fs pour la durée de l'impulsion indique que sur ces distances de propagation après la compression temporelle, il est nécessaire d'inclure la dispersion dans le modèle numérique. Nous faisons à la place d'une simulation 3D qui comprend la dispersion une estimation grossière du rôle de la dispersion dans l'expérience en question. Pour cela nous supposons que l'impulsion se propage avec une taille constante de sorte que nous pouvons décrire la propagation par un modèle à une dimension, comme dans une fibre optique. Nous prenons en compte l'effet Kerr et la dispersion en utilisant un algorithme à pas séparés, dit « split step » [5.14]. L'hypothèse de la propagation unidimensionnelle parait être justifiée dans la mesure ou le diamètre du filament change peu avec la distance de propagation, comme on l'a montré expérimentalement dans l'étude de la filamentation d'un faisceau initialement parallèle. Les valeurs initiales pour le modèle à

une dimension, comme le diamètre, l'intensité et la durée initiale, sont obtenues par la simulation 3D du chapitre 4 au point où débute le filament. La courbe 5 dans la Figure 5.29 b) représente le signal d'auto-diffraction d'une impulsion gaussienne de 20 fs. A partir de ces paramètres et de la dispersion de l'air β= 20 fs^2/m, le modèle unidimensionnel permet de calculer la propagation de cette impulsion initiale de 20 fs sur les 70 cm donnés dans l'expérience. Le résultat donne une estimation de la durée de l'impulsion finale de 60 fs. Le signal d'auto-diffraction de cette impulsion est montré dans la Figure 5.29 b) par la courbe 4 et est comparable au résultat expérimental. A cause de l'interaction de l'auto-modulation de phase forte et la dispersion, le profil temporel de l'impulsion dans la simulation n'est plus symétrique. Par contre, pour le fit de l'expérience, nous supposons toujours un profil gaussien. En conclusion, nous constatons que, à cause de la forte compression Kerr, il est nécessaire d'inclure la dispersion dans la simulation de la propagation au-delà d'une dizaine de centimètres dans le mode autoguidé. Le résultat expérimental de la mesure de la durée de l'impulsion peut être expliqué dans une façon cohérente avec les calculs.

5.3 Discussion

Dans ce chapitre nous avons complété les simulations du chapitre 4 par des résultats expérimentaux. Nous arrivons ainsi à un filament dans l'air à pression normale d'un diamètre de 400 µm en géométrie focalisante, de 100 µm en libre propagation, une durée de 70 fs et des énergies en-dessous de 10 % de l'énergie initiale. Des propriétés qualitatives comme l'évolution du spectre avec la propagation, la formation des anneaux dans la région du foyer et la compression de l'impulsion montrent un bon accord entre les expériences et la simulation. En plus de l'accord entre ces paramètres macroscopiques, nous avons également pu observer la dynamique microscopique dans les oscillations de la taille du filament, dont l'observation expérimentale et le calcul numérique donnent le même ordre de grandeur du phénomène. En somme, les expériences confirment les calculs faits avec le code.

Nous allons maintenant comparer ces résultats avec les filaments décrits dans la littérature afin de tester notre interprétation de la filamentation comme un équilibre dynamique entre diffraction, effet Kerr et ionisation. Le tableau 5.2 résume les

caractéristiques des filaments donnés dans la littérature. La comparaison est ici restreinte aux expériences effectuées avec des impulsions femtosecondes pour une intensité comprise entre 10^{12} et 10^{15} W/cm^2.

	λ_0 [nm]	W_0 [mJ]	r_0 [mm]	$\Delta\tau$ [fs]	r_{fil} [mm]	P/P_{crit}	W_{fil} [mJ]
Braun	795	20	5	150	0.04	41	
Brodeur	800	8.1	3.5	230	0.5	11	<7%
Borisov	248			270	0.001		
Zhao		15	2.5	150			
Sauerbrey	790	220	30	110		(625)	

	λ_0 [nm]	W_0 [mJ]	r_0 [mm]	$\Delta\tau$ [fs]	r_{fil} [mm]	P/P_{crit}	W_{fil} [mJ]
salle jaune	800	20 - 40	15	150	0.08 – 0.12	250	0.75 - 1
salle verte	800	<30	15	150	.04 - .5	80	<10%
lentille 1m	800	1.5	3.5	130	.17	(2.4)	<10%

Tableau 5.2: Paramètres expérimentaux trouvés dans la littérature et mesurés au Laboratoire d'Optique Appliquée.

Les expériences de Braun et Brodeur [5.1, 5.23] donnent des ordres de grandeur des filaments qui sont comparable aux mesures faites dans cette étude - pour des impulsions laser à 800 nm avec des durées entre 100 et 250 fs, d'une énergie de 1 à 20 mJ et obtiennent des rayons du filament entre cent micromètres et un millimètre. Le diamètre de 1 millimètre est mesuré par le noircissement d'un papier photographique. Cette méthode est différente de celle utilisée dans les autres expériences (mesure par caméra CCD) ce qui peut expliquer la différence si on suppose que la mesure de Brodeur est une

mesure en tirs multiples. La valeur de l'énergie couplée dans le filament est inférieure à 10 % [5.1, 5.23]. La densité électronique est estimée à 10^{16} cm^{-3} dans Braun et dans Nibbering ce qui comparé avec la simulation faite dans cette thèse donne une ionisation plus faible entre 10^{15} et 10^{16} cm^{-3} . Les intensités estimées par les auteurs dans le filament sont consistantes : autour de quelques 10^{13} W/cm^2 . Avec des paramètres comparables dans les limites de conditions initiales différentes, il se pose la question de l'interprétation de la filamentation. Les premiers modèles simples de Braun - la compensation locale de l'indice de Kerr et du plasma - et de Nibbering - l'anti-guide statique par une variation d'indice – doivent, au vu de nos résultats, être raffinés par un modèle d'équilibre dynamique entre deux processus compétitifs : la concentration de l'énergie de l'impulsion par l'effet Kerr et la dissipation par l'ionisation.

L'interprétation de la physique de mode stable a récemment fait ressusciter un débat qui était déjà connu pour des filaments observés dans le régime des impulsions nanosecondes. La question posée est de savoir si la lumière focalisée sur l'axe reste capturée dans un mode autoguidé [5.1, 5.25]. L'interprétation alternative, c'est que l'apparition d'un filament est la trace de tous les points d'auto-focalisation des segments consécutifs de l'impulsion sur l'axe de propagation. Chaque segment se focalise et diffracte indépendamment les uns des autres sans la formation d'un mode autoguidé. La dernière interprétation était établie comme explication des filaments générés avec des laser nanosecondes. Brodeur et al. [5.23] a avancé ce modèle du "moving focus" comme interpretation de la filamentation dans le régime femtoseconde.

Notre interprétation des filaments contredit cette interprétation car nous avons montré le rôle central de la refocalisation des énergies sur l'axe pour l'établissement d'un filament. Il est difficile de distinguer les deux interprétations controversées dans le cas d'un faisceau intialement parallèle car des parties des ailes de l'impulsion se focalisent sur l'axe quand la partie centrale de l'impulsion est peut-être déjà guidée. Pour séparer ce mélange entre l'auto-focalisation et de l'autoguidage, nous considérons dans la suite l'auto-focalisation assistée par une lentille convergente. Dans ce cas, l'auto-focalisation de toute l'impulsion est translatée en amont de la tache focale. Au-delà du foyer de la lentille seul l'autoguidage peut avoir lieu. D'un point de vue mathématique, la filamentation en libre propagation et en présence d'une lentille sont identiques pour un profil gaussien en présence de l'effet Kerr seul. Dans ce cas la présence de la lentille équivaut à une transformation de variable dans l'équation de propagation [5.26]. La

nouvelle distance d'auto-focalisation pour la lentille devient $z_{fR} = \left(1/z_f + 1/f\right)^{-1}$. La simulation montre que l'auto-focalisation en libre propagation et par une lentille amène à des résultats comparables, même pour des profils super-gaussiens et en présence de l'effet Kerr retardé. La lentille ramène l'auto-focalisation - qui se produit en libre propagation sur une distance de l'ordre de grandeur de la longueur de Rayleigh du faisceau initial - dans l'intervalle situé entre la lentille et le point focal. L'effet Kerr renforce ainsi la convergence de la lentille, mais il n'amène jamais des intensités au-delà du foyer de la lentille. Si le phénomène de l'auto-guidage est ainsi décrit complètement par un effet d'étirage de la focalisation (prédiction du "moving focus"), on ne devrait pas observer un filament derrière le point focal dans l'auto-focalisation en présence d'une lentille.

Dans l'expérience nous avons observé un filament sur une distance allant jusqu'à trois mètres de propagation à partir de la lentille. La persistance du filament sans alimentation continue par un faisceau parallèle indique que la filamentation contient un mécanisme de guidage. Les simulations nous permettent de comparer les deux hypothèses dans un cas test.

La Figure 5.30 montre le cas test numérique: le graphe a) montre le moving focus où l'ionisation joue un rôle négligeable, b) montre l'interaction entre l'effet Kerr et l'ionisation. Dans la Figure 5.30 a) nous évitons la singularité introduite par l'effet Kerr en coupant les intensités au-dessus de 10^{14} W/cm^2. Les parties de l'impulsion qui ne subissent qu'une faible auto-focalisation diffractent avec un cône de diffraction inférieur à la diffraction du vide. Ceci est une conséquence de l'effet Kerr : les tranches temporelles juste en dessous de la puissance critique auto-focalisent légèrement avant de diffracter et se propagent sur une certaine distance proche d'un équilibre entre diffraction et effet Kerr. Pour l'évolution du rayon à mi-largeur après le foyer, ces tranches temporelles près de la puissance critique sont les plus intenses et ainsi dominantes (car toute l'énergie au-dessus de la puissance critique était éliminée avant la tache focale dans le collapse du faisceau). Cela explique pourquoi le faisceau diffracte avec un cône inférieur à la diffraction naturelle.

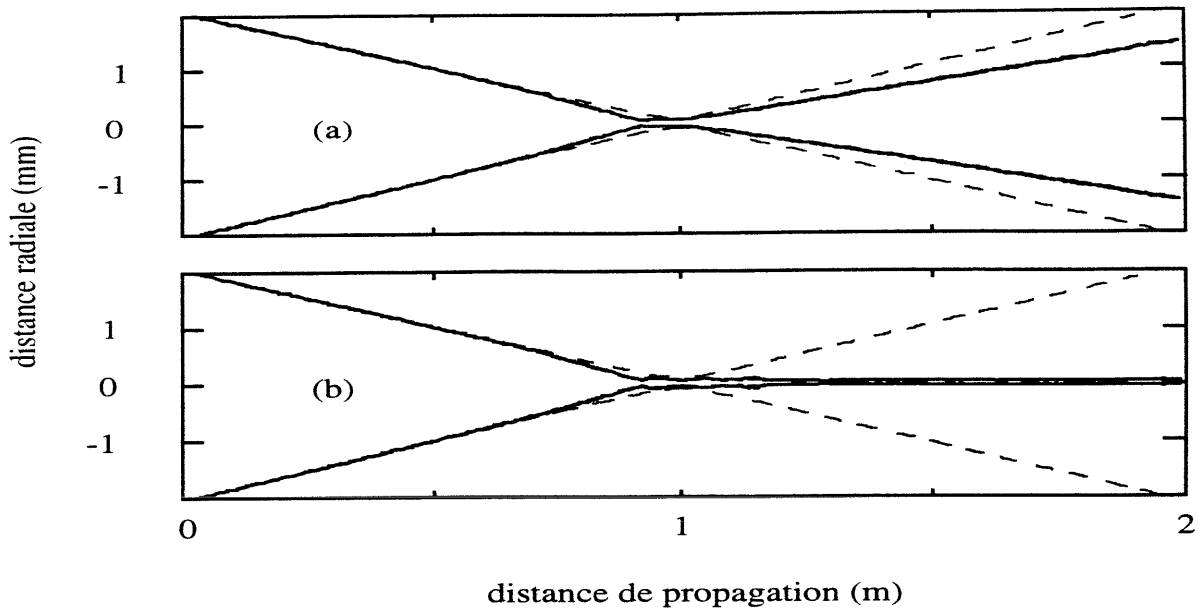


Figure 5.30 : Cas test pour la comparaison du modèle « moving focus » et de l'autoguidage. a) Diffraction pour l'effet Kerr seul (modèle « moving focus »), b) persistance d'un filament en présence de l'effet Kerr et de l'ionisation (modèle « autoguidage »). L'impulsion de $\Delta\tau$=120 fs , w_0= 2mm de la super-gaussienne d'ordre 6 et W= 3.0 mJ est focalisée par une lentille de f=1m dans l'air caractérisé par $n_{2,i}$=2,4 10^{-23} cm^2/W et $n_{2,R}$=0,8 10^{-23} cm^2/W. La diffraction naturelle du faisceau initial est indiquée en pointillé.

La Figure 5.30 b) montre la simulation de la propagation en présence de l'ionisation. Un mode autoguidé persiste bien au-delà du point focal de la lentille. Les expériences et la simulation montrent, qu'un mode autoguidé apparaît au-delà du point focal de la lentille. Cela établit que l'ionisation joue un rôle central dans la filamentation. Le modèle du « moving focus » est ainsi insuffisant pour expliquer l'effet d'autoguidage d'une impulsion femtoseconde. Les filaments dans le régime des impulsions femtosecondes sont différents de ceux du régime nanosecondes. La place du concept du "moving focus" a sa place importante pour expliquer certains aspects de la filamentation. Par exemple, l'arrêt de la filamentation par un diaphragme dans l'autofocalisation d'un faisceau initialement parallèle. Ou encore, ce concept est très utile pour expliquer l'origine de la compression temporelle de l'impulsion par l'effet Kerr.

A l'autre extrême de l'interprétation de la filamentation se trouve l'idée de billes de lumière ou des solitons spatiaux. Henz and Herrman [5.27] analysent, dans une approche variationnelle l'existence des solutions type soliton pour l'effet Kerr et l'ionisation avec une dépendance du champ électrique en puissance paire. Dans l'approximation du profil spatial invariant (le diamètre change, mais pas la forme initiale du profil transverse), des solitons sont prédits sous certaines conditions. En

contraste avec nos simulations, la forme temporelle de ces solitons est un profil quasi-rectangulaire. Nos résultats numériques avec la forte compétition sur l'échelle microscopique entre effet Kerr et ionisation indiquent que la filamentation n'apparaît pas comme un équilibre global. En contraste avec l'hypothèse du calcul de Henz et al., la dynamique temporelle de l'effet Kerr est trop différente de la dynamique temporelle de l'ionisation: l'effet Kerr varie avec le carré de la puissance du champ et agit sur l'avant et l'arrière de l'impulsion, l'ionisation varie avec la puissance 10 du champ (dans l'air) et agit seulement sur la première partie de l'impulsion.

Au vu des données numériques et expérimentales de cette thèse, l'interprétation de la filamentation comme un quasi-équilibre macroscopique avec une dynamique microscopique entre effet Kerr et ionisation permet d'avoir une vue consistante de la filamentation.

[5.1] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou: *Self-channelling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air*, Opt. Lett. 20, 73 (1995); E. T. J. Nibbering, P. F. Curley, G. Grillon, B. S. Prade, M. A. Franco, F. Salin, and A. Mysyrowicz: *Conical emission from self-guided femtosecond laser pulses in air,* Opt. Lett. 21, 62 (1996).

[5.2] C. Le Blanc: *Principes et realisation d'une source laser terawatt femtoseconde basee sur le saphir dopé au titane. Caractérisation des impulsions produites et demonstration du régime d'intensité au niveau de 10^{18} W/cm^2*. Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique (1993).

[5.3] Gilles Chériaux: *Influences des distorsions de phase sur le profil d'impulsions femtoseconde dans l'amplification à dérivé de fréquence. Application à la génération d'impulsions de 30 TW à 10 Hz dans le saphir dopé au titane*, Thèse de doctorat de l'université Paris-Sud (1997).

[5.4] E. Treacy : *Optical pulse compression with diffraction gratings*, IEEE J. Quantum Electron. QE-5, 454 (1969); R.L. Fork, C.H. Brito Cruz, P.C. Becker and C.V. Shank : *Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation*, Opt. Lett. 12, 483 (1987).

[5.5] J.L.A. Chilla and O.E. Martinez*: Direct measurement of the amplitude and the phase of femtosecond light pulses*, Opt. Lett. 16, 39 (1991).

[5.6] J.-P. Foing, J.-P. Likforman, M. Joffre, and A. Migus: *Femtosecond pulse measurement by spectrally resolved up-conversion: application to continuum compression*, IEEE J. Quantum Electron. 28, 2285 (1992).

[5.7] J.-K. Rhee, T. S. Sosnowski, A.-C. Tienand T.B.Norris: *Real-time dispersion analyzer of femtosecond laser pulses with use of a spectrally and temporally resolved upconversion technique*, J. Opt. Soc.Am. B 13, 1780 (1996).

[5.8] V. Kabelka, A.V. Masalov: *Time-frequency imaging of a single ultrashort light pulse from angular resolved autocorrelation*, Opt. Lett. 20, 1301 (1995).

[5.9] R.Trebino, D.J. Kane: *Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses: frequency resolved optical gating*, J. Opt. Soc.Am. A 10, 1101 (1993).

[5.10] B.S. Prade, J.M. Schins, E.T.J. Nibbering, M.A. Franco, and A. Mysyrowicz: *A simple method for the determination of the intensity and phase of ultra-short optical pulses*, Opt. Comm. 113, 79 (1994).

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

[5.12] J.R. Fienup: *Phase retrieval algorithms: a comparison*, Applied Optics 21, 2758 (1982).

[5.13] H.R. Lange, J.-F. Ripoche, D. Steele, E.T.J. Nibbering, M.A. Franco, B.S. Prade, A. Mysyrowicz: *Application of the ENSTA method to the characterisation of fs oscillators in the nJ region*, NATO advanced study institute, 47th SUSSP Summer School, University of St. Andrews, 25 June - 8 July.

[5.14] G. P. Agrawal : *Nonlinear Fiber Optics*, Academic Press Inc., Boston (1989).

[5.15] Kenneth W. DeLong, and Rick Trebino: *Improved ultrashort pulse-retrieval algorithm for frequency-resolved optical gating*, J. Opt. Soc. Am. A 11, 2429 (1994).

[5.16] K.C. Chu, J. P. Heritage, R. S. Grant, and W.E. White: *Temporal interferometric measurement of femtosecond spectral phase*, Opt. Lett. 21, 1842 (1996).

[5.17] M. Franco, H.R Lange, J.-F. Ripoche, B.S. Prade, A. Mysyrowicz : *Characterization of ultra-short pulses by cross-phase modulation*, Opt. Comm. 140, 331 (1997).

[5.18] W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, B.P. Flannery: *Numerical recipes for C*, 2nd edition, Cambridge University Press, Cambridge (1992).

[5.19] H. Schulz, H. Schüler, T. Engers, D. von der Linde: *Measurement of intense ultraviolet subpicopulses using degenerate four-wave-mixing*, IEEE J. of Quantum Electron., 25, 2580 (1989).

[5.20] E. T. J. Nibbering, P. F. Curley, G. Grillon, B. S. Prade, M. A. Franco, F. Salin, and A. Mysyrowicz: *Conical emission from self-guided femtosecond laser pulses in air,* Opt. Lett. 21, 62 (1996); O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, A. Brodeur, C. Y. Chien and S. L. Chin: *Conical emission from laser-plasma interaction in the filamentation of powerful ultrashort laser pulses in air*, Opt. Lett. 22, 1332 (1997).

[5.21] Note: il est intéressant de réfléchir si le changement spatial introduit dans une lame donnée ne permet pas d'extraire une information sur la durée de l'impulsion - comme un pendant spatial au principe de la modulation spectrale exploité dans le méthode de mesure de la phase présentée dans la partie 5.1.2.

[5.22] J.-F. Ripoche, G. Grillon, B. Prade, M. Franco, E. Nibbering, R. Lange, A. Mysyrowicz: *Determination of the time dependence of n_2 in air*, Opt. Comm. 135, 310 (1997).

[5.23] A. Brodeur, C.Y. Chien, F.A. Ilkov, S.L. Chin : *Moving focus in the propagation of ultrashort laser pulses in air*, Opt. Lett. 22, 304 (1997).

[5.24] X. M. Zhao, R. J. Jones, C.E.M. Strauss, D. J. Funk, J.P. Roberts, A.J. Taylor : *Control of femtosecond filament formation in air through variation of the initial chirp of the pulse*, Internat. Quantum Electronics Conference, Baltimoore, May 18-23 1997, Technical Digest, 377 (1997).

[5.25] E. Esarey, P. Sprangle, J. Krall, A. Ting : *Self-focusing and guiding of short laser pulses in ionized gases and plasmas*, IEEE J. Quantum Electronics 33, 1879 (1997).

[5.26] J.H. Marburger : *Self-focusing : theory*, Prog. Quantum Electronics 4, 35 (1975).

[5.27] S. Henz and J. Herrmann : *Two-dimensional spatial optical solitons in bulk Kerr-media stabilized by self-induced multiphoton-ionization : variational approach*, Phys. Rev. E 53, 4092 (1996).

6. Application de l'autoguidage à la génération d'harmoniques

Nous avons vu dans les chapitres précédents qu'une impulsion femtoseconde intense peut se propager sous la forme d'un filament. A une échelle macroscopique, un quasi-équilibre entre effet Kerr et ionisation s'établit et le filament peut s'étendre sur des distances de plusieurs mètres. Dans une première approximation nous pouvons supposer que le front de phase reste plan à l'intérieur de ces filaments. Nous avons obtenu également le résultat que l'intensité dans le filament reste à peu près au seuil d'ionisation. Ces deux conditions - les fronts de phase plans et l'intensité forte sans ioniser complètement le milieu - sont des condition recherchées dans le domaine de la génération des harmoniques d'ordre élevé.

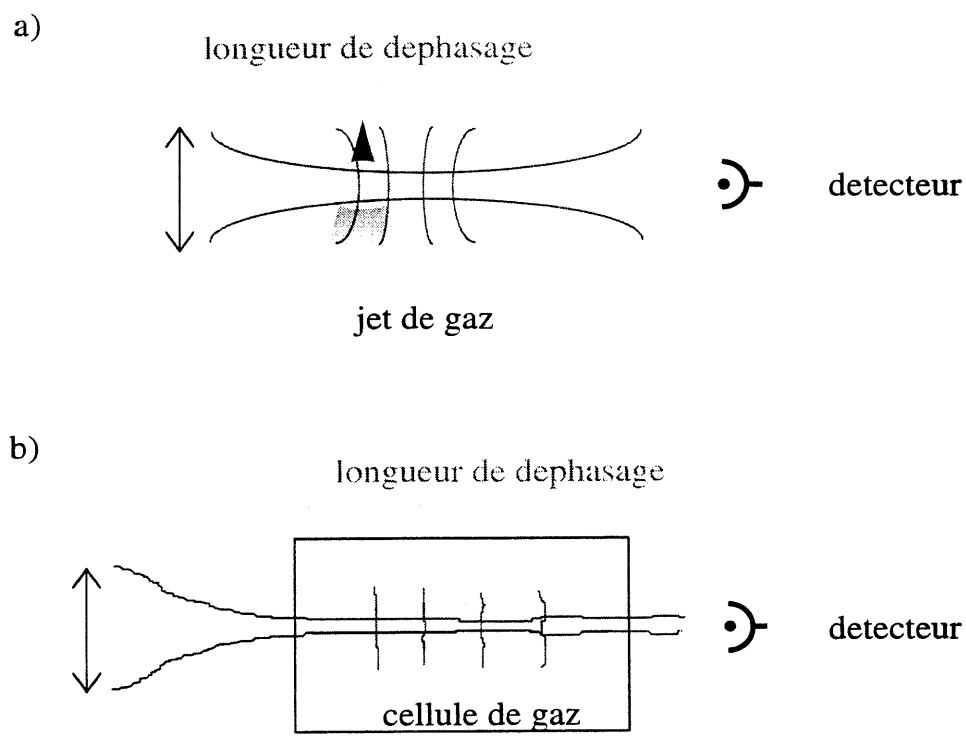


Figure 6.1: Comparaison schématique de la génération des harmoniques a) dans une géométrie classique en utilisant un jet sous vide et une lentille et b) par un filament.

La Figure 6.1 illustre l'avantage potentiel du filament. Couramment, les harmoniques d'ordre élevé sont générées dans des jets de gaz avec un faisceau laser convergent. Le faisceau convergent permet d'atteindre les intensités optimales pour la génération des harmoniques (environ 10^{14} W/cm^2). L'utilisation d'un jet dans une cloche à vide permet d'éviter les problèmes de transport (voir chapitre 4, Figure 4.4) du faisceau jusqu'à la cible. La courbure de la surface d'onde du faisceau introduit dans sa zone de focalisation une phase géométrique à la fréquence fondamentale qui varie fortement en fonction de z au voisinage du foyer (la phase de Gouÿ). Dans la génération des fréquences harmoniques, cette variation de la phase à la fréquence fondamentale conduit à des interférences destructives entre les ondes harmoniques créées avant et après le foyer. Comme nous le verrons dans la suite, seule la moitié de la région focale est utile pour la génération des harmoniques. Ceci limite le rendement de conversion. L'idée que le filament possède un front de phase quasi-plan suggère qu'on peut utiliser un filament pour la génération des harmoniques sans la contrainte de la phase géométrique.

Pour explorer cette possibilité, nous rappelons d'abord le principe de la génération des harmoniques dans les gaz, puis nous introduisons les différentes contributions au déphasage entre la fréquence fondamentale et harmonique pour enfin présenter les résultats expérimentaux et les discuter. Ceux-ci concernent la génération des harmoniques jusqu'au 23e ordre, la mesure du déphasage atomique et une expérience de quasi-accord de phase pour la troisième harmonique.

6.1 Les harmoniques d'ordre élevé

Le développement perturbatif de la polarisation introduit dans le chapitre 3 fait apparaître dans la polarisation $\mathbf{P}^{(n)}$ des fréquences nouvelles qui sont la somme des fréquences des n champs fondamentaux : $\omega = \omega_1 + \omega_2 + \ldots + \omega_n$

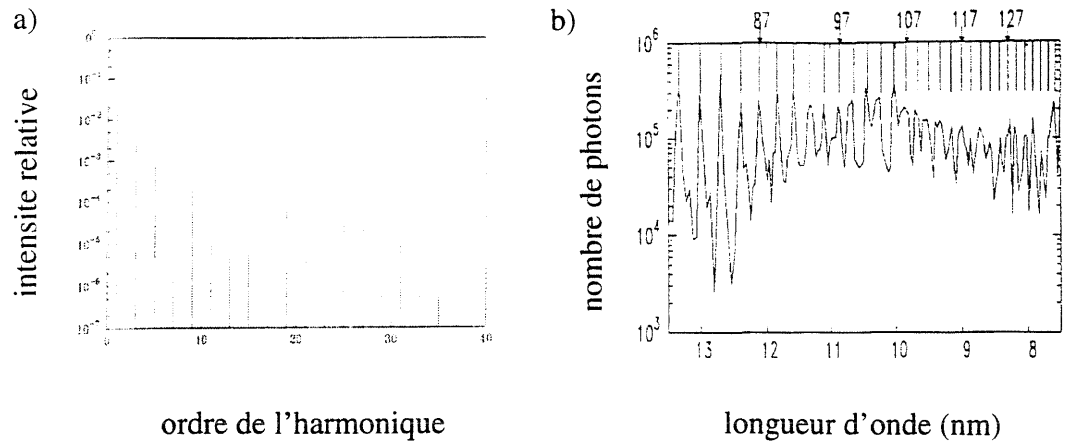


Figure 6.2: harmoniques a) modèle d'un simple oscillateur anharmonique [6.1] b) observation expérimentale des harmoniques optiques [6.2].

Dans le contexte des impulsions femtosecondes, la génération des harmoniques d'ordre plus élevé a été découverte en 1979 [6.3]. McPherson [6.4] a observé que l'intensité de ces harmoniques en fonction de l'ordre n présente, après une décroissance forte sur la première dizaine des harmoniques, un plateau suivi d'une coupure. L'énergie de cette coupure est bien restituée par l'expression suivante [6.5]:

$$qh\nu_0 = 3.17U_p + I_p \tag{6.1}$$

où le potentiel pondéromoteur est $U_p = eE^2/m_e\omega_0^2$. Dans un modèle semi-classique la coupure s'interprète comme étant l'énergie cinétique instantanée maximale de l'électron dans le champ laser donné. La découverte des harmoniques en optique a déclenché une série d'études, destinées à exploiter ce processus pour la génération de la lumière cohérente dans le UV lointain [6.6]. Récemment Krausz [6.7] et Murnane [6.8] ont atteint par cette méthode la génération des fréquences dans la fenêtre de l'eau (2,33-4,37 nm) - ce qui présente un grand intérêt pour des applications dans la biologie.

Comme nous allons étudier la génération des harmoniques d'ordre élevé, nous rappelons les traits principaux des harmoniques sans entrer dans les calculs en détail. Nous résumerons la dépendance du signal généré à la fréquence harmonique en fonction de la pression, de l'intensité et de la géométrie du faisceau fondamental. Le nombre de

photons N_q à la fréquence harmonique est le produit de deux facteurs : un facteur d'amplitude F_{ampl} et un facteur de phase F_{phase}

$$N_q(z) = \left|F_{ampl}\right|^2 \cdot \left|F_{phase}\right|^2$$

Le facteur de l'amplitude F_{ampl} représente la réponse locale du milieu au champ de rayonnement fondamental. Il est proportionnel à la densité d'atomes et à la susceptibilité $\chi^q(\omega)$ qui est une caractéristique de l'atome en question. Le facteur de phase F_{phase} rend compte de l'interférence entre le champ harmonique créé à des positions différentes durant la propagation. Il est proche de l'unité dans des conditions d'accord de phase parfait; en présence d'un déphasage il décroît rapidement vers zéro.

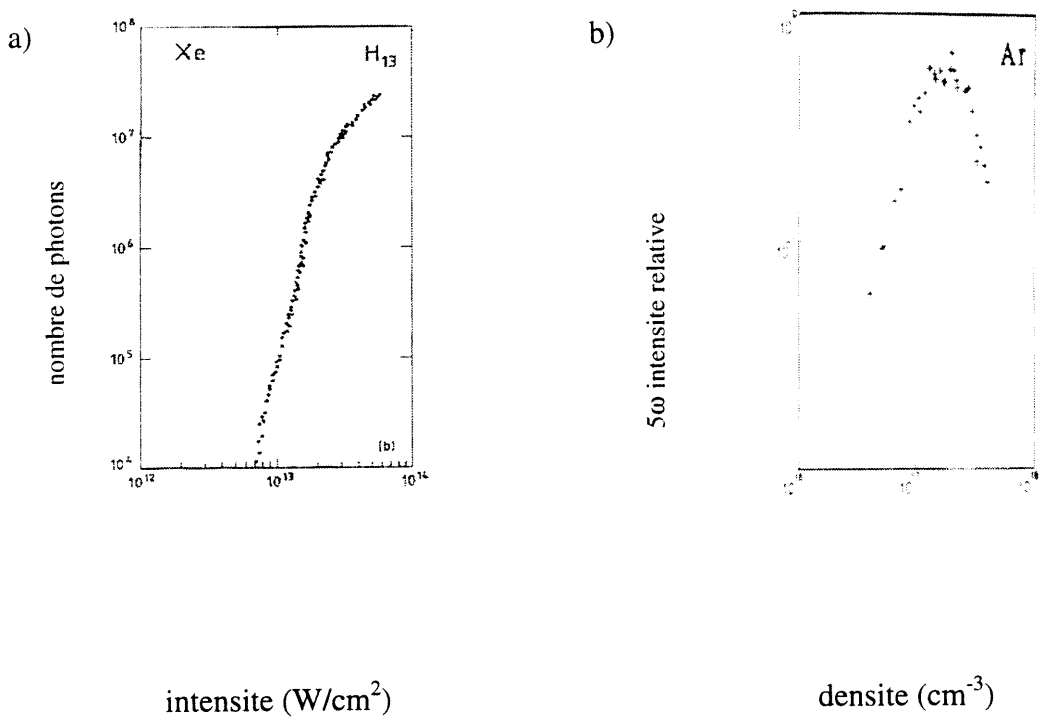


Figure 6.3: Variation des harmoniques avec l'intensité et avec la pression. a) variation du signal harmonique en fonction de l'intensité du laser pour l'harmonique d'ordre 13 dans le xénon, b) variation de l'harmonique d'ordre 5 en fonction de la densité des atomes d'argon [6.1].

Dépendance en intensité. La Figure 6.3 montre la variation du signal harmonique en fonction de l'intensité laser. Le signal harmonique suit une loi de puissance $N_q \propto I^P$ avant d'atteindre une saturation. La saturation est liée à un appauvrissement des atomes

neutres, à une détérioration de l'accord de phase dû aux électrons libérés et à une défocalisation. L'appauvrissement des atomes neutres fait baisser le rendement en fréquence harmonique car la susceptibilité d'un ion est inférieure à celle d'un atome neutre. Cet effet est observable sur la Figure 6.3 a). La deuxième contribution à la saturation provient des électrons libérés par l'ionisation. Ils introduisent une dispersion entre l'onde fondamentale et harmonique comme nous l'examinerons dans le paragraphe 6.2 . La troisième contribution à la saturation est due à la défocalisation à cause de l'ionisation du milieu, comme nous l'avons étudié dans le chapitre 4.6. La valeur p de la loi de puissance est pour les ordres égaux ou inférieurs à q=9 l'ordre de la fréquence harmonique: p=q. Les harmoniques plus élevées varient à peu près toutes avec la puissance p=12, ce qui correspond au plateau montré dans la Figure 6.2.

Dépendance en pression. L'intensité du signal harmonique généré est proportionnel au carré du module du champ qui est proportionnel à la densité des atomes dans le milieu. L'intensité varie ainsi de façon quadratique avec la densité $\rho(z)$ des atomes. Une variation du signal en fonction de la pression comme observée dans la Figure 6.2 b) est due à deux effets [6.9]: d'un part une densité élevée des atomes conduit par ionisation à une densité d'électrons libres élevée et défocalise le faisceau (comme simulé dans le paragraphe 4.3), d'autre part la présence des électrons libres change l'indice du milieu comme nous avons vu en haut. Pour ces raisons, la plupart des expériences de génération d'harmoniques d'ordre élevé se font à des pressions faibles, entre 2-30 mbar. Dans nos expériences nous travaillerons à une pression autour de 100 mbar pour les harmoniques basses, et autour de 30 mbar pour des harmoniques d'ordre élevé.

Dépendance en polarisation. La génération des harmoniques est très sensible à la polarisation du champ électrique de l'onde fondamentale. On peut décrire cette dépendance dans une description semi-classique. L'harmonique est générée en multiple interaction d'un électron avec son ion parent. En polarisation linéaire, l'électron est accéléré dans une seule direction. La trajectoire de l'électron revient ainsi sur l'ion pendant un certain temps à chaque cycle du champ laser. L'électron peut alors acquérir l'énergie cinétique d'un photon supplémentaire. En polarisation circulaire, l'électron acquiert une composante de vitesse perpendiculaire au champ dans une direction qui

varie avec le temps. Par conséquent, la probabilité d'un retour de l'électron sur le même ion est très faible.

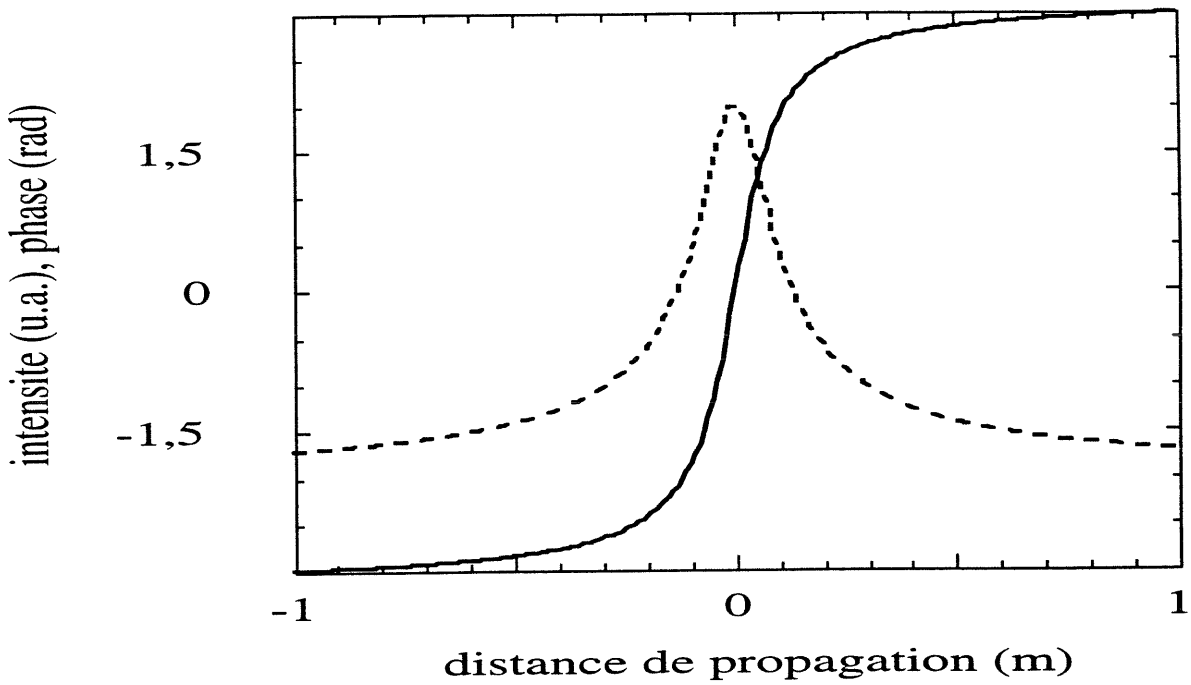


Figure 6.4: Phase géométrique et variation de l'intensité sur l'axe pour un faisceau gaussien focalisé avec une lentille de f = 1m.

Influence de la géométrie du faisceau pompe. Dans ce paragraphe, nous considérons deux géométries différentes: un faisceau focalisé comme couramment utilisé dans les expériences et la géométrie de propagation parallèle que nous utiliserons pour la description du filament. La géométrie du faisceau à la fréquence fondamentale influence l'intensité du signal à la fréquence harmonique par le facteur de l'amplitude et le facteur de la phase. La variation en intensité et le déphasage géométrique sur l'axe introduit dans le cas de la propagation d'un faisceau gaussien convergent sont données par l'équation (4.1). La Figure 6.4 montre les deux fonctions I(z) et Θ(z) correspondantes. Le changement de signe de la phase autour du foyer amène à des interférences destructives entre les harmoniques générées en amont et en aval du foyer. Pour éviter ces interférences destructives, il faut limiter le milieu générateur à un coté du foyer. L'intensité du faisceau gaussien focalisé décroît rapidement en s'éloignant du foyer et limite donc la génération des harmoniques à une petite distance utile autour du foyer. Au contraire, dans un filament, en principe il n'y a en première approximation ni de variation d'intensité ni de phase géométrique le long de l'axe de propagation. Afin de

tester cette hypothèse, nous mesurerons le signal des fréquences harmoniques créées par le filament en fonction de la longueur et de la pression dans une cellule de gaz.

6.2 Propagation de la pompe et des harmoniques 3 et 5 dans un milieu neutre

Dans l'expérience, nous chercherons à prouver que le désaccord de phase géométrique dans la génération des fréquences harmoniques par un filament est négligeable. Mais, nous devrons encore introduire les autres contributions au déphasage qui peuvent influencer le signal de la fréquence harmonique mesurée. Nous décrivons le champ électrique dans le filament comme une onde plane:

$$\Delta_{\perp} E_q(r,z',t') = 0$$

Cela nous amène à l'équation unidimensionnelle pour la propagation du champ à la fréquence harmonique

$$2ik_q E_q(r,z',t') = -\frac{q^2\omega^2}{\varepsilon_0 c^2} 2^{1-q} N_0 \chi^{(q)} E_1^q(r,z,t) \exp(-i\delta k_q z')$$

A cause des taux de conversion faibles (dans la génération des harmoniques des taux de conversion sont autours de 10^{-7} [6.10]) nous supposons que la variation du champ de l'onde avec la propagation reste négligeable et $E_1^q(r,z,t) = E_1^q(r,t)$.

Comme solution de la propagation du champ harmonique nous obtenons ainsi :

$$E_q(z,t) \propto E_0^q(z,t) \frac{\exp(-i\delta k_q z) - 1}{i\delta k_q}$$

L'absorption du champ $E_q(z,t)$ est prise en compte par une constante d'absorption dans la phase complexe. L'intensité qui est proportionnelle au nombre des photons N_q est proportionnelle au carré de l'expression précédente

$$I_q(z,t) \propto \left|E_0^q\right|^2 \exp(-\kappa z) \frac{2\left[\cosh(z\kappa) - \cos(z\delta k_q)\right]}{\left|\delta k_q{}^2 + \kappa^2\right|} \tag{6.2}$$

Avec $\left(\exp(-i\delta k_q z) - 1\right)^2 = 2 - 2\cos\left(\delta k_q z\right) = 4\sin^2\left(z\delta k_q/2\right)$ l'intensité dans le cas d'absorption négligeable s'écrit:

$$I_q(z,t) \propto \left|E_0^q\right|^2 \frac{\sin^2(z\delta k_q/2)}{\left|\delta k_q\right|^2} \tag{6.3}$$

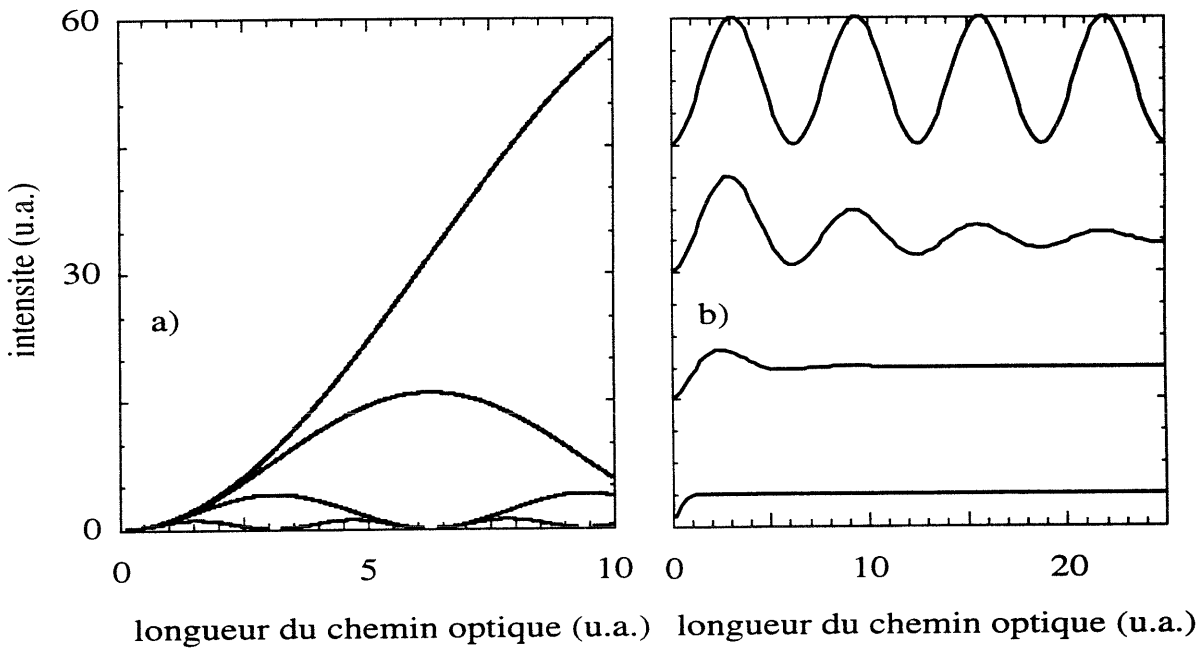


Figure 6.5: Franges de Maker: a) pour quatre constantes de déphasages différentes selon l'équation (6.4) - δk, 2 δk, 3 δk et 4 δk , b) pour quatre coefficients d'absorptions différentes selon l'équation (6.3) - κ, 2 κ, 3 κ, et 4 κ.

Cette oscillation est bien connue dans la génération de la seconde harmonique dans les cristaux et dans les gaz sous le nom de franges de Maker. La Figure 6.5 a) montre la diminution du signal à la fréquence harmonique quand on augmente le déphasage Δk. Les graphes dans la Figure 6.5 b) donnent une illustration du rôle de l'absorption. Dans le cas de la dispersion pure, on observe des franges de Maker proportionnelles au carré du sinus du déphasage. En augmentant l'absorption (du haut vers le bas dans la Figure 6.5 b)) un amortissement apparaît sur les oscillations périodique et il s'établit un plateau du signal en fonction de z sur lequel les oscillations sont de plus en plus faibles. Dans les expériences, nous nous plaçons dans un régime de pression qui permet d'éviter l'absorption. Ainsi, nous travaillons à environ 100 mbar pour l'harmonique 3, et à environ 30 mbar pour les harmoniques d'ordre élevé.

6.3 L'origine physique des différentes contributions au désaccord de phase

Plusieurs effets physiques différents contribuent au désaccord de phase. La première, la contribution de la phase géométrique, a été évoquée dans les paragraphes précédents. Comme nous avons vu dans l'étude de la filamentation, l'intensité dans un filament est limitée à quelques 10^{13} W/cm^2. Sous ces conditions, nous considérons les contributions suivantes au désaccord de phase entre vecteur d'onde de l'onde fondamentale et de l'onde harmonique:

$$\Delta k_q = \delta\ k^{gaz} + \delta\ k^{éle} + k_q - \left|q\vec{k}_1 + \vec{K}(l(\vec{r}))\right|$$

avec les contributions

- $\left|q\vec{k}_1 + \vec{K}(l(\vec{r}))\right|$ déphasage géométrique,
- $\delta\ k^{gaz}$ dispersion d'un gaz neutre,
- $\delta\ k^{éle}$ dispersion des électrons libres,

Dans le cas des intensités plus élevées des contributions supplémentaires devraient être prise en compte, comme par exemple le déphasage relativiste, la dispersion de l'effet Kerr induit par l'onde fondamentale ou la contribution due à la phase intrinsèque. La phase intrinsèque est une phase liée à la réponse de l'atome au champ laser. Elle peut devenir importante dans le régime d'ionisation du champ, mais elle reste négligeable dans le régime d'ionisation multi-photonique qui correspond aux intensités observées dans les filaments (voir chapitre 2.3 et 4.).

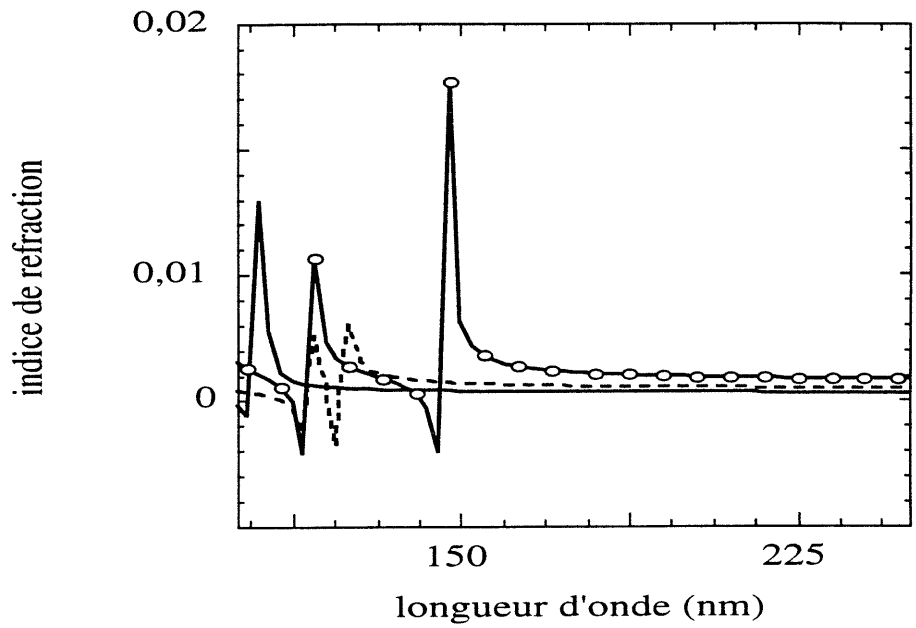


Figure 6.6: Variation d'indice calculée à partir de l'équation (6.5) avec des coefficients pour xénon (trait continu avec cercles), b) argon (trait continu) et c) krypton (trait pointillé) [6.11].

6.3.1 Le déphasage entre l'onde fondamentale et l'onde harmonique dans un gaz neutre

L'indice de réfraction n_0 d'un gaz spécifique peut être calculé pour des fréquences loin des résonances par une expression de type Sellmeier [6.11]:

$$\frac{3}{2}\frac{n_0^2-1}{n_0^2+2}=\frac{C_1}{\lambda_1^{-2}-\lambda_0^{-2}}+\frac{C_2}{\lambda_2^{-2}-\lambda_0^{-2}}+\frac{C_3}{\lambda_3^{-2}-\lambda_0^{-2}}$$

avec la longueur d'onde λ_0 donné en cm.

	C_1 10^4 cm^{-2}	C_2 10^4 cm^{-2}	C_3 10^4 cm^{-2}	λ_1^{-2} 10^8 cm^{-2}	λ_2^{-2} 10^8 cm^{-2}	λ_3^{-2} 10^8 cm^{-2}
He	147,574			425, 91		
Ar	25,2582	25,2582	595,379	87,882	91,001	269,636
Xe	32,0432	32,0432	676,637	65,474	73,6954	139,831
Kr	39,235	39,235	736,610	46,3012	59,5779	139,831

Tableau 6.1: Coefficients pour la formule Sellmeier permettant le calcul de l'indice de réfraction linéaire à pression normale.

La Figure 6.6 montre des courbes typiques de Sellmeier de gaz rares. Les valeurs des coefficients données dans la littérature sont obtenues expérimentalement et figurent dans le tableau 6.1 [6.11].

La première résonance du xénon est située à 149 nm. Le xénon est le gaz rare le plus dispersif. Le gaz rare avec les résonances dans l'UV le plus lointain est l'hélium. Par conséquent, il est beaucoup moins dispersif que le xénon, le krypton et l'argon pour l'harmonique 3 et 5. Dans la Figure 6.6, la courbe pour l'hélium n'est pas montrée car elle se présente comme une simple ligne droite à l'échelle donnée.

Le déphasage dû à la dispersion entre l'onde fondamentale et l'onde harmonique est donné par $\delta\ k^{atom} = qk_0\Delta n_{\omega 1,\omega 2}$ où $\Delta n_{\omega 1,\omega 2}$ est la différence des indices de réfraction dans le gaz en question aux deux fréquences ω_1 et ω_2 concernées. En utilisant l'équation de Sellmeier, on trouve pour la différence de l'indice entre l'onde fondamentale et troisième et cinquième harmonique dans le xénon:

$\Delta n_{3\omega,\omega} = n_{3\omega} - n_{\omega} = 1.06\ 10^{-4} \cdot p[mbar]$ et

$\Delta n_{5\omega,\omega} = n_{5\omega} - n_{\omega} = 7.76\ 10^{-4} \cdot p[mbar]$. L'expression

$n = \sqrt{\left(n_{p0}^2 - 1\right)p/p_0 + 1}$ conduit à la variation d'indice $\Delta n \cong \left(n_{p0}^2 - 1\right)p/2p_0$ et est une bonne approximation pour une pression entre 1 et 1200 mbar. La valeur pour la fréquence à la cinquième harmonique à 160 nm s'approche de la résonance située à 149 nm. Les expressions de Sellmeier sont pourtant valables seulement hors des résonances, l'indice est ainsi affecté d'une incertitude. Il est intéressant ensuite de comparer nos valeurs à celles calculées par L'Huillier et Kulander [6.12] à 153 nm par un calcul

utilisant un modèle perturbatif. L'Huillier et Kulander obtiennent $\Delta n_{5\omega} = n_{5\omega} - n_{\omega} = 4.48\ 10^{-4} \cdot p$ comparé à $\Delta n_{5\omega} = 7.76\ 10^{-4} \cdot p$ obtenu à partir de l'expression Sellmeier pour 153 nm. Nos valeurs sont plus élevées. Nous soulignons que le calcul de L'Huillier est également limité aux longueurs d'ondes hors résonance.

6.3.2 La contribution électronique

Comme nous l'avons introduit dans le chapitre 1, la contribution des électrons libres à l'indice non-linéaire est donnée par $\Delta n_{el} = -\frac{1}{2}\left(\omega_{pl}/\omega_0\right)^2$. Par conséquent, la différence d'indice entre l'onde fondamentale et harmonique d'ordre q est

$$\delta n_{el} = -\frac{1}{2}\left(\frac{\omega_{pl}}{\omega_0}\right)^2\left(1-\frac{1}{q^2}\right) = -\frac{1}{2}\left(\frac{N_e e^2}{m_e \varepsilon_0 \omega_0^2}\right)\left(1-\frac{1}{q^2}\right)$$

$$= -\frac{N_e e^2 \lambda_0^2}{8\pi^2 c^2 m_e \varepsilon_0}\left(1-\frac{1}{q^2}\right)$$

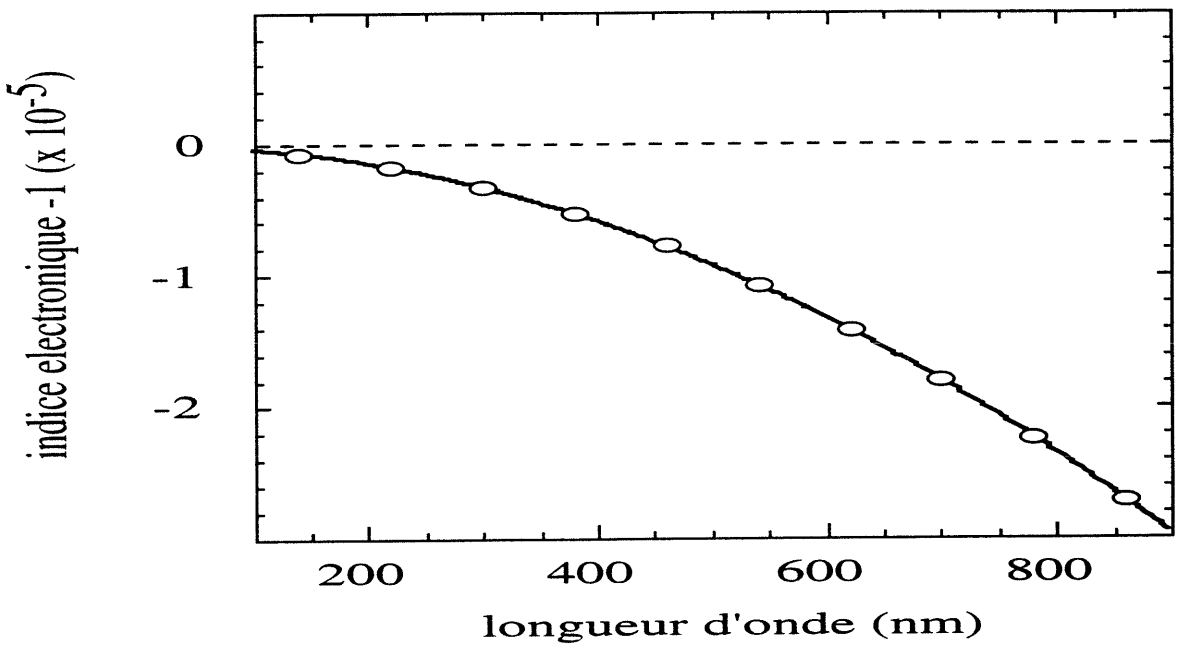


Figure 6.7: Dispersion électronique pour une densité électronique de n_e= 3,4 10^{14} cm^{-3} à 100 mbar de xénon.

La différence d'indice de réfraction entre la fréquence fondamentale et la troisième et cinquième harmonique à une densité d'électrons $N_e = 10^{16}$ cm^{-3} (cette valeur de densité d'électrons est une limite supérieure comme nous avons vu dans le chapitre 4) est:

$$\Delta n_{3\omega,\omega} = n_{3\omega} - n_{\omega} = 4{,}44\ 10^{-6} \cdot p[mbar]$$ et

$$\Delta n_{5\omega,\omega} = n_{5\omega} - n_{\omega} = 4{,}8\ 10^{-6} \cdot p[mbar].$$

Le déphasage exprimé en vecteur d'onde est donné par:

$$\delta k_{el} = -\frac{N_e e^2 \lambda_0}{4\pi c^2 m_e \varepsilon_0}\left(q - \frac{1}{q}\right)$$

La détermination exacte de la dispersion induite par la présence des électrons libres dépend de façon critique de la connaissance de la densité électronique qui est une fonction fortement dépendante de l'intensité et expérimentalement inconnue dans notre cas. Nous retenons une valeur de la densité électronique estimée par les simulations du chapitre 4 en dessous de 0.1 % de la densité des molécules. Une estimation à partir des données expérimentales comme celles montrées dans la Figure 6.3 a) donne dans le xénon une estimation de la densité électronique à 100 mbar de 3,4 10^{14} cm^{-3} pour une impulsion de 100 fs.

La Figure 6.7 montre la variation de la dispersion électronique à une pression de 100 mbar. Elle décroît avec la longueur d'onde et diminue rapidement pour les longueurs d'ondes décroissantes. Pour le déphasage entre la fréquence fondamentale et celle de la troisième harmonique nous obtenons $\Delta n_{3\omega,\omega}$=2,5$10^{-8}$, pour le $\Delta n_{5\omega,\omega}$=3 10^{-8}. Nous obtenons ainsi une contribution faible à la dispersion par les électrons libres à 100 mbar. Par conséquent, nous nous attendons à ce que la contribution à la dispersion due au gaz neutre soit être dominante.

6.4 Résultats expérimentaux

Pour observer les fréquences harmoniques générées par un filament, il a fallu mettre en place un dispositif expérimental original. Il est commode de dissocier les processus de génération du filament, de la création d'harmoniques et de leur détection comme illustré dans la Figure 6.8. Cela nous permet de contrôler les paramètres de chaque processus indépendamment.

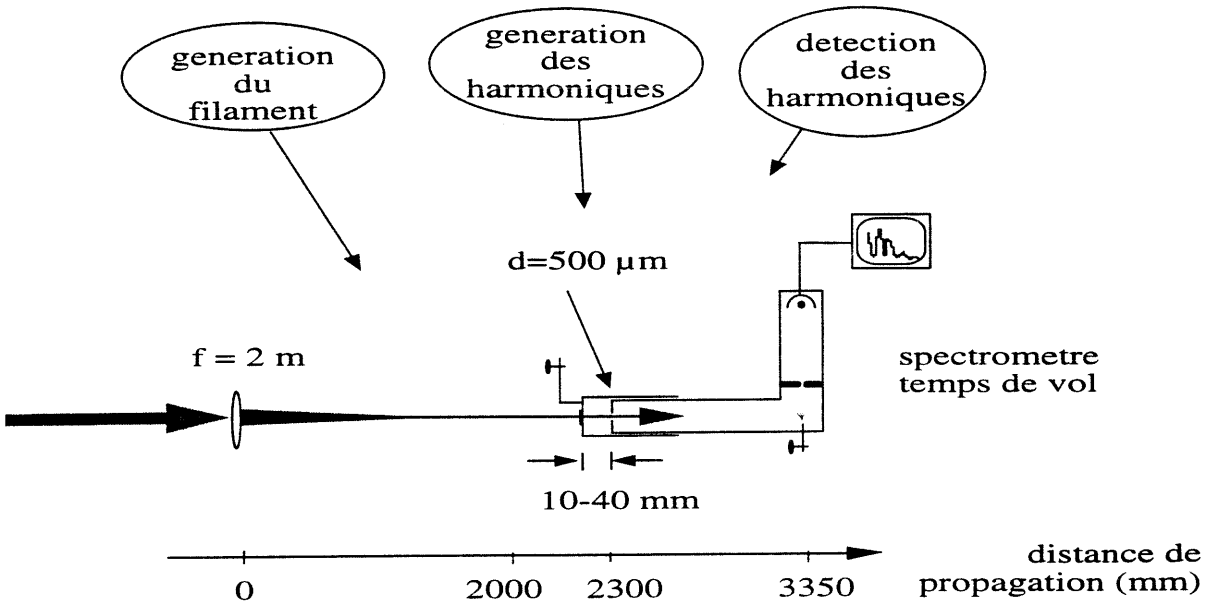


Figure 6.8: Expérience pour la génération des fréquences harmoniques: l'expérience consiste en la génération d'un filament, en la génération des fréquences harmoniques avec ce filament et de la détection en utilisant un spectromètre à temps de vol.

Nous créons le filament dans l'air avec un faisceau initialement convergent analogue à celui que nous avons caractérisé numériquement (paragraphe 4.6) et expérimentalement (paragraphe 5.2). L 'impulsion initiale est caractérisée par une énergie comprise entre 1,5 et 3 mJ, un diamètre de 7-9 mm, une durée de 120 - 140 fs et une phase temporelle constante. La focale de la lentille est 1 m. Nous réglons l'intensité dans le filament en fonction des paramètres initiaux de sorte qu'elle reste en dessous du seuil de l'apparition du dommage de la fenêtre d'entrée de la cellule de gaz. Nous plaçons la cellule de gaz à une position de typiquement 1.60 m de la lentille, c'est à dire après plus de 60 cm de propagation du filament en mode autoguidé.

Le couplage du filament dans la cellule de gaz se fait à travers une fenêtre en silice d'épaisseur 400 µm ou 100 µm. La pression peut être ajustée entre 1 à 1200 mbar. Deux

entrées de gaz permettent le mélange de deux gaz de nature différente. La longueur de la cellule est variable entre 1 et 45 mm. Comme illustrée dans la Figure 6.9, une ouverture de 400 µm de diamètre permet le passage du rayonnement de la cellule dans le vide de l'enceinte de détection. Un alignement soigné du faisceau à travers cette ouverture sur le détecteur est nécessaire pour la qualité des mesures. Nous avons simulé la propagation du filament à pression réduite dans la cellule de gaz. La lumière conserve sur les 10 cm de propagation dans la cellule son caractère de filament.

La détection des harmoniques générées dans les filaments exige la détection des longueurs d'onde dans le UV et XUV. La détection des harmoniques d'ordre élevé (q>9) est réalisée par photo-ionisation dans un spectromètre d'électrons à temps de vol : le rayonnement à détecter arrive sur un jet de gaz placé dans la zone de détection du spectromètre. Les photons de l'harmonique d'ordre q arrivent avec une énergie $h\nu_q$ supérieure au potentiel d'ionisation. Ils libèrent des électrons. L'énergie cinétique $\mathbf{W}_{cin}$ de ces électrons est donnée par la différence entre l'énergie du photon et le potentiel d'ionisation: $\Delta\mathbf{W}_{cin}=h\nu_q-U_{ion}$. Les électrons libérés dans la zone de détection sont transférés par un champ magnétique inhomogène vers une chambre de vol. Dans la chambre de vol les différences en énergie cinétique des électrons sont transposées en une différence de temps d'arrivée sur le détecteur. Il est nécessaire d'avoir un vide de 10^{-6} torr dans l'enceinte de détection. Un oscilloscope rapide permet d'enregistrer l'intensité du signal en fonction du temps et donne ainsi le spectre énergétique du rayonnement UV. La mesure d'un spectre requiert l'accumulation de l'ordre de 1000 tirs laser. La détection est bornée pour les harmoniques basses: l'harmonique d'ordre le plus bas est donnée par $U_{ion}/(h\,\nu_0)$. Pour le xénon, le premier ordre détecté est l'harmonique 9, pour l'argon l'harmonique 13. Nous avons vérifié que le détecteur n'enregistre aucun signal en

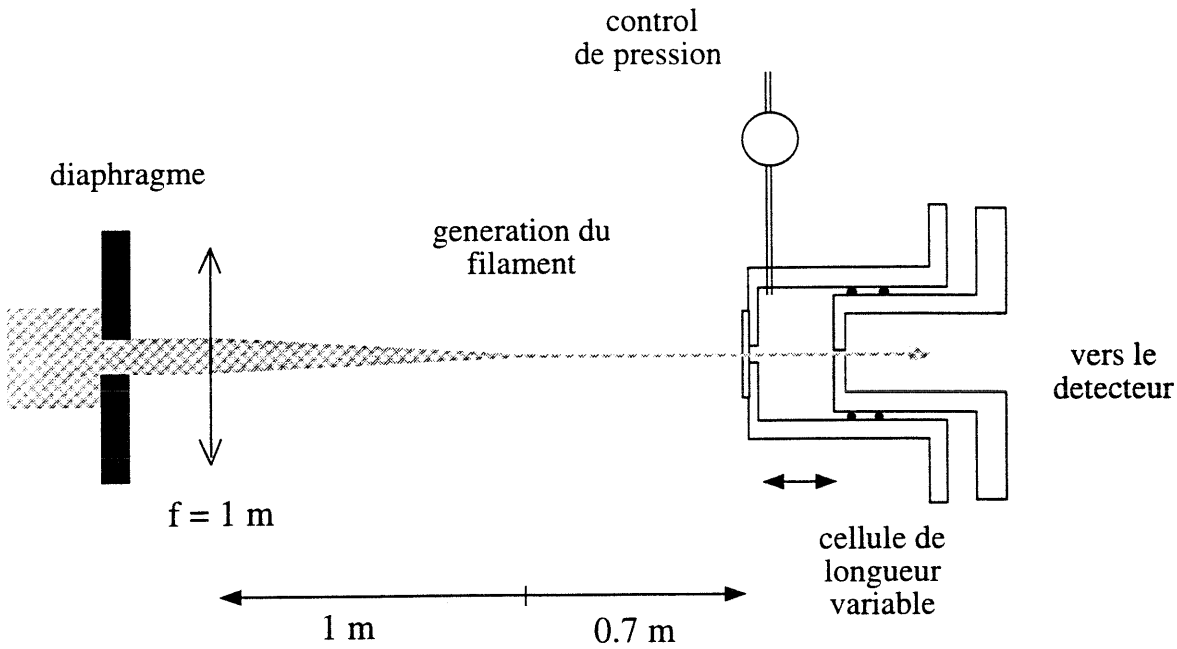


Figure 6.9: Détail de la cellule de gaz à longueur variable. Entrée du filament dans la cellule de gauche à travers une fenêtre, sortie de la cellule vers la droite à travers un trou de 400 μm de diamètre dans la chambre à vide et la détection.

l'absence de gaz dans la cellule de génération des harmoniques. Nous concluons ainsi que le filament est suffisamment diffracté sur la distance de 1,20 m entre la sortie de la cellule de génération des harmoniques et la zone de détection pour que son intensité soit négligeable au niveau du jet de détection.

Pour permettre la détection des harmoniques basses entre 3000 et 1000 Angström (avec une énergie inférieure au potentiel d'ionisation) nous utiliserons un spectromètre à réseau de type McPherson 234. Le rayonnement est diffracté par la fente d'entrée et il tombe sur un réseau holographique toroïdal. La forme toroïdale permet de focaliser le signal selon l'axe vertical sur la fente de sortie avant le détecteur. La focalisation permet d'augmenter la sensibilité du système. Le détecteur consiste en un phosphore qui convertit la radiation UV en radiation visible. Les photons visibles sont enregistrés par un photomultiplicateur alimenté avec une tension de 1 KV. Le signal est analysé avec un oscilloscope qui permet de moyenner sur un grand nombre de tirs laser. Dans les résultats expérimentaux présentés dans ce chapitre, un point de mesure représente 250 ou 500 tirs. Avec le filament comme source d'excitation, le rayonnement harmonique arrive sous forme colinéaire ou légèrement divergente sur la fente d'entrée du

spectromètre. Ceci limite la détection des ordres élevés à l'observation de la neuvième harmonique.

6.4.1 La génération des harmoniques jusqu'au 23éme ordre par un filament

La Figure 6.10 montre le spectre des fréquences harmoniques générées dans le xénon et détectées avec un jet de xénon dans le spectromètre à temps de vol. On remarque que les harmoniques 11, 13 et 15 sont en réalité un doublet. La structure doublet reflète les deux états de spin S=1/2 et S=3/2 de l'état fondamental de l'ion. Le filament était crée avec un faisceau laser de 1.5 mJ, d'un diamètre de 7 mm après passage à travers un diaphragme et sa durée était de 130 fs.

Le spectre des harmoniques permet une estimation de l'intensité dans le filament. On peut en effectuer une première estimation à partir de l'équation (6.1). L'ordre le plus élevé de l'harmonique observée dans la Figure 6.10 est q=15 et U_{ion}= 12,13 eV est le potentiel d'ionisation du xénon. L'estimation donne I = 6 10^{13} W/cm^2. Cette valeur correspond assez bien à la valeur obtenue

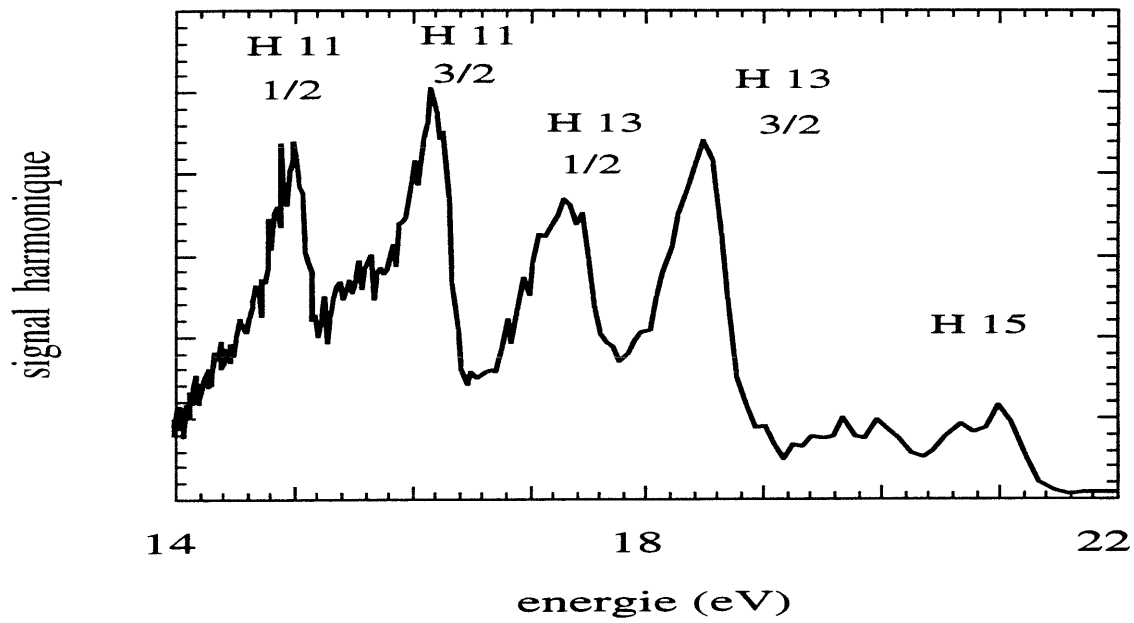


Figure 6.10: Spectre des photo-électrons libérés par des fréquences harmoniques de l'onde fondamentale à 800 nm. Les fréquences harmoniques ont été créées dans le xénon à (40 ± 20) mbar. La détection est faite par un spectromètre à temps de vol avec un jet de détection de xénon. La coupure des harmoniques est située à la 15e fréquence harmonique. Le filament a été généré avec une impulsion initiale de Δτ=120 fs , d'un rayon de r= 4mm, d'énergie W= 1,5 mJ et focalisée par une lentille de *f*=1m .

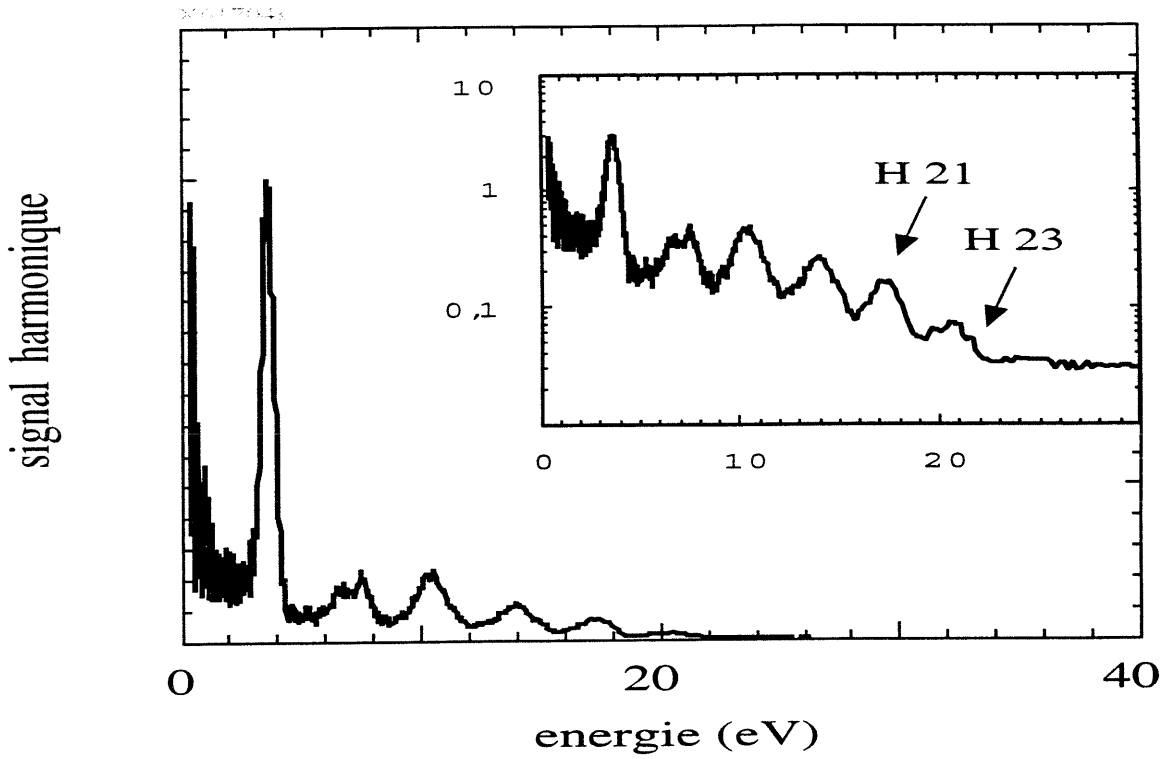


Figure 6.11: Spectre des photo-électrons libérés par des fréquences harmoniques de l'onde fondamentale à 800 nm. Les fréquences harmoniques ont été créées dans l'argon à (40 ± 20) mbar. La détection est faite par un spectromètre à temps de vol avec un jet de détection d'argon. La coupure des harmoniques est situé à la 23e fréquence harmonique. Le filament a été généré avec une impulsion initiale de $\Delta\tau$=120 fs , d'un rayon de r= 5mm, d'énergie W= 2 mJ et focalisée par une lentille de *f*=1m.

par la simulation avec I = 4 10^{13} W/cm^2. Strictement, l'équation (6.1) n'est valable que dans le régime tunnel. Comme l'intensité est près du seuil d'ionisation, et que nous ne nous trouvons pas vraiment dans le régime tunnel pour la génération d'harmoniques, il est donc prudent de faire une deuxième estimation de l'intensité qui est valable en-dessous du seuil d'ionisation. Pour cela, on peut estimer l'intensité du laser en comparant le rapport des intensités de deux harmoniques d'ordre différent avec les résultats obtenus à partir d'un calcul dipolaire (publié par L'Huilier et al. [6.13]). Une telle comparaison donne comme une estimation de l'intensité du laser I =(2.5 +/- 0.5) 10^{13} W/cm^2. La Figure 6.11 montre le spectre des harmoniques dans l'argon jusqu'à l'ordre 23. Cette mesure a été enregistrée après une modification du système laser (un nouveau compresseur). La performance améliorée de ce laser nous a permis d'observer des ondes harmoniques d'ordres plus élevés.

6.4.2 Mesure de l'absence de la phase géométrique dans les faisceaux autoguidés

Ces mesures des spectres harmoniques montrent d'abord la cohérence du champ électromagnétique dans le filament et l'onde harmonique sur la distance étudiée avec la cellule. En plus, elles permettent une vérification des résultats du calcul numérique concernant l'intensité et montrent un bon accord.

La Figure 6.11 montre une oscillation périodique du signal de la troisième harmonique dans le xénon en fonction de la pression. Les graphes a) et b) de la Figure présentent une variation de la période de cette oscillation pour deux longueurs différentes de la cellule. Pour une pression du gaz comprise entre 1 mbar et 250 mbar nous observons trois et quatre périodes. La limite supérieure de la pression est donnée par la capacité des pompes de maintenir le vide dans la chambre de détection. Dans les deux graphes, les cercles ouverts représentent les points expérimentaux, le fit selon l'équation (6.2) est indiqué en trait continu. Le rapport entre les périodes pour les deux longueurs de cellule correspond au rapport des longueurs du milieu : 1.2/1.0 = 1.2 versus 1.8/1.3=1.38. La différence d'indice déduite de ces données expérimentales est $\Delta n_{3\omega,\omega}$= 1.02 10^{-5} à 100 mbar. Ce qui est en bon accord avec la valeur de 1.06 10^{-5} obtenue par le calcul.

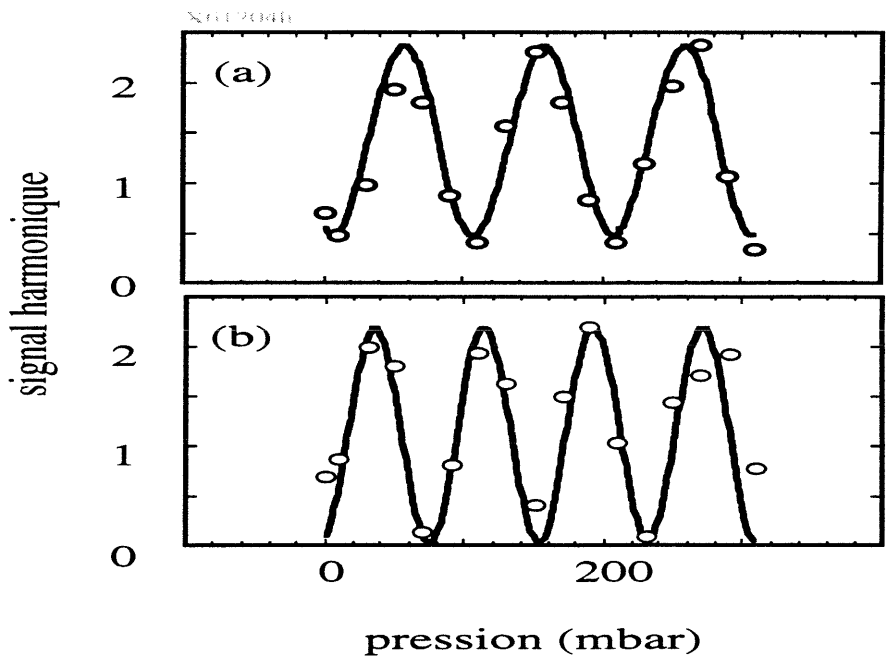


Figure 6.12: Franges de Maker : pour la fréquence de la troisième harmonique à 267 nm en fonction de la pression pour une longueur de la cellule de gaz de (a) 27 mm et (b) 36 mm. Le faisceau initial est caractérisé par $\Delta\tau$= 130 fs, r= 3,5 mm, W= 0,75 mJ et une focale f = 1m.

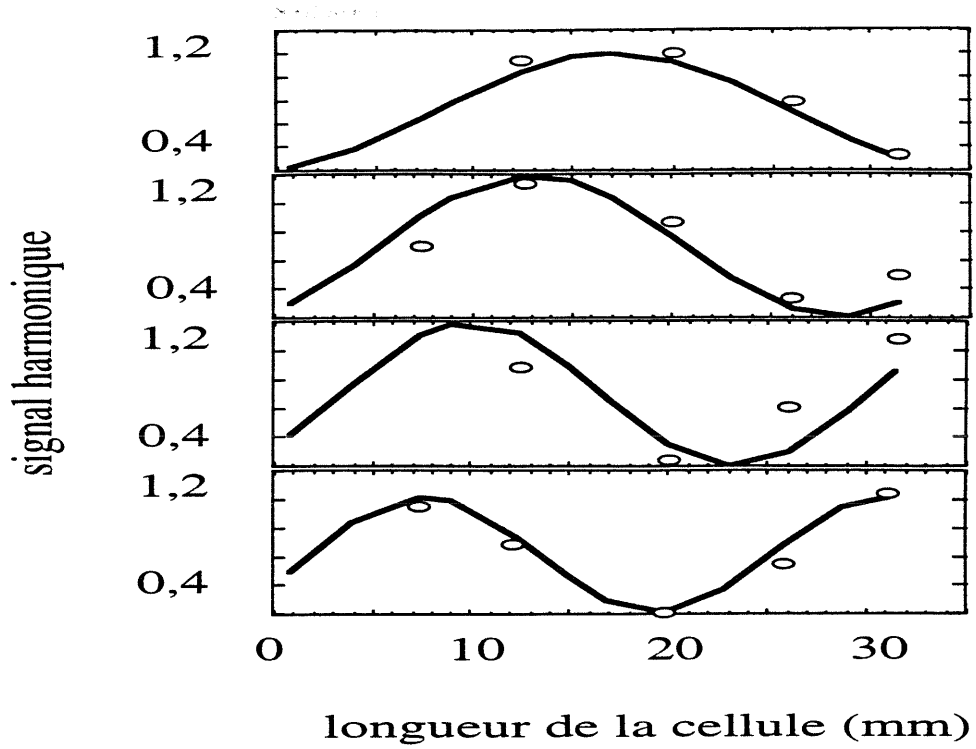


Figure 6.13: Frange de Maker de la cinquième harmonique à 160 nm en fonction de la longueur de la cellule pour une pression de p=114, 134, 154 et 174 mbar. On observe le déplacement de la frange et un rétrécissement de sa période. Le faisceau initial est caractérisé par $\Delta\tau$= 130 fs, r= 3,5 mm, W= 0,75 mJ et une focale f = 1m.

La Figure 6.13 montre le déphasage dans le xénon mesuré en fonction de la longueur de la cellule à quatre pressions différentes (Figures a) à d)). En augmentant la pression (de haut en bas dans la Figure 6.13), la période de la frange de Maker se rétrécit et les minima et maxima se déplacent vers les longueurs de la cellule les plus courtes. Le fit des quatre courbes détermine la pression initiale p_0 pour la première courbe et la différence d'indice $\Delta n_{5\omega,\omega}$. La pression du xénon obtenue pour la première courbe est 114 mbar ce qui correspond à la valeur expérimentale - nous observons la première maximum de la frange de Maker autour de 100 mbar. La variation d'indice entre la cinquième harmonique et l'onde fondamentale est $\Delta n_{5\omega,\omega}$ =4.4 10^{-6} à 100 mbar.

Le déphasage entre l'onde fondamentale et harmonique est décrit souvent par la longueur du déphasage $L_{deph}=\pi/\delta k_{q\omega,\omega}$. Cette longueur est définie comme la distance entre zéro et le premier maximum du signal harmonique (dans la littérature on trouve souvent la notion "cohérence length" pour cette longueur de déphasage). La longueur de déphasage peut être directement obtenue à partir de la Figure 6.13. Elle mesure L_{deph} = 18 mm à une pression de 100 mbar. Nous comparons les longueurs de déphasage expérimentales

obtenues à 3ω et 5ω. Selon la théorie, la période des franges de Maker devrait être augmentée d'un facteur $(5\Delta n_{5\omega})/(3\Delta n_{3\omega}) > 1{,}6$ car l'indice de réfraction à 5ω et supérieur à celui à 3ω. Dans l'expérience, nous observons une réduction en longueur de cohérence de 3ω à 5ω. Comme nous l'avons déjà souligné, le voisinage près d'une résonance pour la 5e onde harmonique rend une analyse exacte difficile, car le laser peut induire un déplacement des résonances par déplacement Stark des états atomiques.

Pour tester le résultat que la dispersion du gaz neutre est le facteur dominant dans le déphasage, nous avons mélangé deux gaz et nous avons enregistré le signal de l'harmonique en fonction des pressions partielles. Nous utilisons une frange de Maker en fonction de la pression du xénon pur comme référence. Ensuite nous réglons la pression sur un maximum du signal harmonique (indiqué par 1 dans la Figure 6.14). En ajoutant de l'argon, le signal va d'abord diminuer avant de remonter car l'argon ajoute son indice de réfraction dû au gaz neutre à celui du xénon. Par contre, la contribution de l'argon au signal harmonique est négligeable devant la contribution du xénon. Le potentiel d'ionisation d'argon qui est de 15,75 eV nécessite 11 photons de l'onde fondamentale, à comparer avec les 8 photons requis pour l'ionisation du xénon (potentiel d'ionisation de 12,12 eV). Par conséquent, la probabilité d'ionisation et de génération des fréquences harmoniques est plus faible pour l'argon. Nous nous attendons ainsi à ce que l'argon permette simplement de déphaser l'onde fondamentale et l'onde harmonique. Le résultat expérimental conduit exactement à ce résultat comme on peut le voir dans la Figure 6.14. Dans le graphe a) on observe le déphasage du maximum du signal harmonique en fonction de la variation de la pression partielle de l'argon. Le graphe b) montre une série de franges de Maker à quatre pressions d'argon différentes: chaque courbe montre une frange de Maker en fonction de la pression de xénon. On observe une variation de la période des franges en fonction de la pression de l'argon pour chaque courbe.

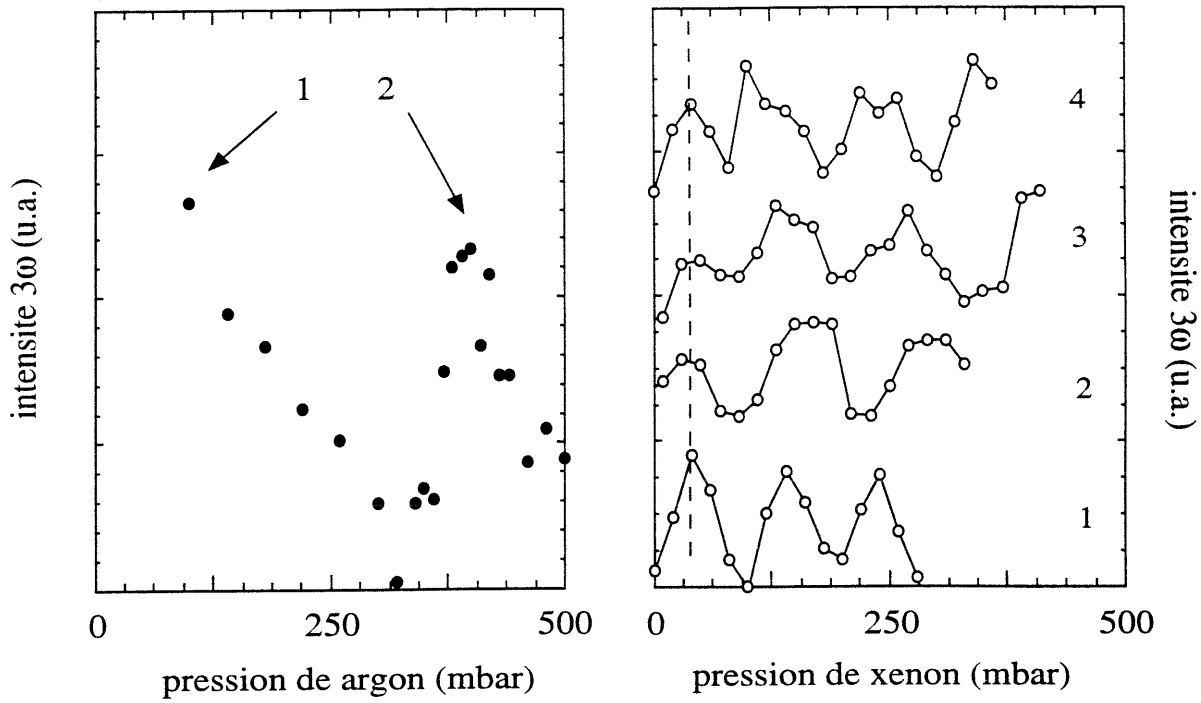


Figure 6.14: Déphasage de l'onde fondamentale et harmonique en fonction de la pression d'un gaz tampon à 3ω. (a) La variation de la pression de l'argon à pression de xénon constante (réglée à un maximum du signal 3ω) permet de déphaser et remettre en phase l'onde fondamentale et harmonique. (b) La série de franges de Maker enregistrées en fonction de la pression de xénon à pression d'argon constante reflète le changement d'indice de réfraction dans le changement de la période d'une frange de Maker. Longueur de la cellule L=26 mm; les pressions de l'argon sont p=114, 134, 154 et 174 mbar. Le faisceau initial est caractérisé par $\Delta\tau$= 130 fs, r= 3,5 mm, W= 0,75 mJ et une focale *f* = 1m.

Pour résumer, l'observation des franges de Maker montre d'une part la cohérence à la fois de l'onde fondamentale dans le filament et de l'onde harmonique sur la distance de la cellule de au moins 35 mm. Sur cette distance, la dispersion atomique est la contribution dominante, compte tenu du faible niveau d'ionisation causé par le filament. D'autre part, nous avons gagné à peu près un ordre de grandeur en longueur d'interaction comparé avec une géométrie de jet, où les longueurs d'interactions pour la génération des harmoniques sont typiquement de l'ordre du millimètre à cause du déphasage géométrique. Nous concluons ainsi à l'absence d'une phase géométrique dans les filaments. Dans cette configuration, la génération de l'harmonique est limitée par le transfert négatif d'énergie dans la deuxième demie-période de la frange de Maker. Nous montrerons dans le prochain paragraphe comment on peut compenser ce déphasage dans une expérience de quasi-accord de phase.

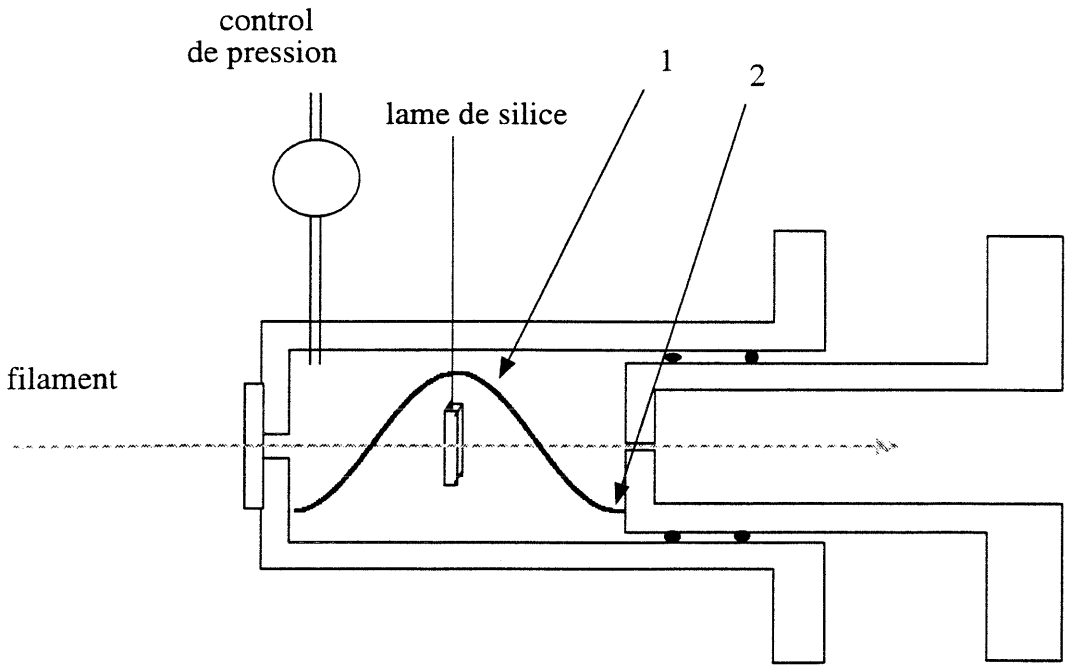


Figure 6.15: Schéma de la cellule préparée pour le quasi-accord de phase. La lame de silice qui sert pour le quasi-accord de phase peut être insérée dans le faisceau. Le trait continu dans la cellule montre la variation supposée de l'amplitude du signal harmonique en fonction de la longueur de la cellule (flèche 1). Avec le détecteur on enregistre l'intensité à la sortie de la cellule à droite (flèche 2).

6.4.3 Le quasi-accord de phase pour l'harmonique 3

Afin d'éviter le transfert négatif d'énergie dans la deuxième demie période de la frange de Maker, nous allons introduire une lame de silice dans la cellule. Cette lame de silice est d'une épaisseur qui permet de déphaser l'onde à la fréquence de la troisième harmonique par rapport à la fréquence centrale par un facteur p. Elle remet ainsi les deux ondes de nouveau en phase. Ce déphasage supplémentaire permet d'enchaîner une zone de transfert positif entre fréquence fondamentale et harmonique à une autre, sans passer par une zone de transfert négatif. Ce principe de quasi-accord de phase est bien connu dans le domaine des fibres optiques [6.14] où il est réalisé sur un nombre élevé de périodes de déphasage. Dans le cadre de cette thèse, nous allons utiliser ce principe pour montrer d'une façon encore plus convaincante la cohérence de l'onde harmonique. La Figure 6.15 montre la cellule de gaz avec une lame fine de silice au centre.

L'épaisseur de la lame de silice pour assurer un déphasage de π entre onde fondamentale et onde harmonique est de 1.5 µm. Vu l'incertitude sur l'épaisseur réelle de ces lames, nous avons essayé des lames d'épaisseurs différentes. Un mouvement de rotation permet d'ajuster légèrement l'épaisseur effective par inclinaison de la lame.

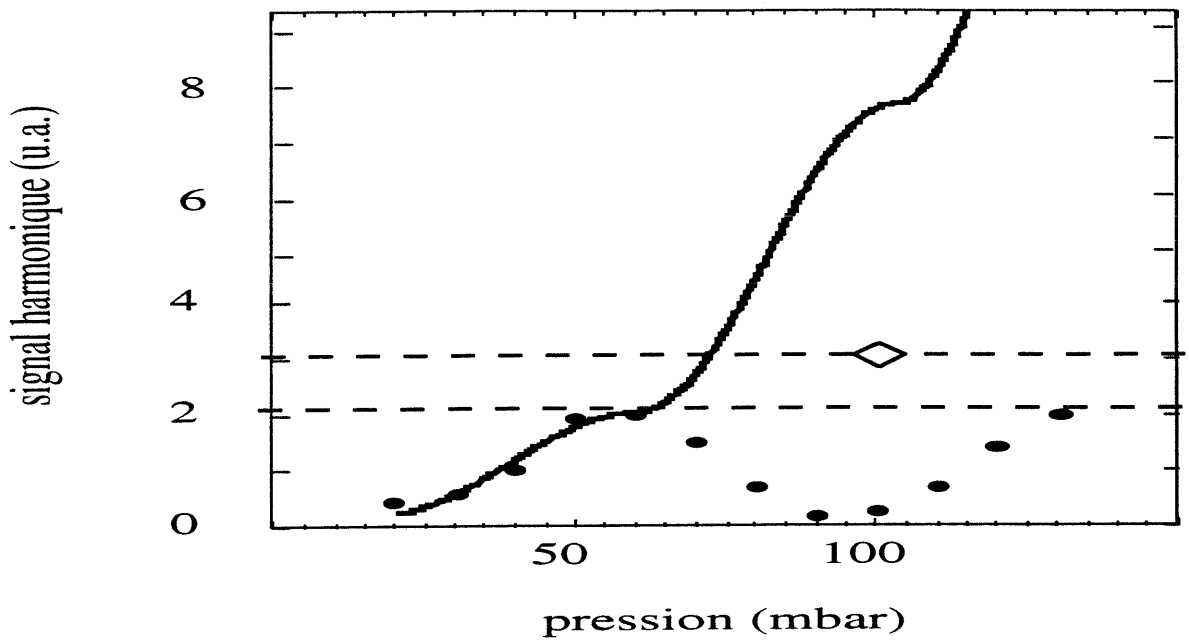


Figure 6.16: Mesure expérimentale du quasi-accord de phase pour la fréquence harmonique de troisième ordre: variation du signal harmonique en fonction de la pression du xénon sans lame (cercles noirs), signal à la fréquence harmonique pour 100 mbar avec la lame (carré) et signal théorique attendu pour le quasi-accord de phase (trait continu).

La Figure 6.16 montre le résultat de l'expérience du quasi-accord de phase. La série de points montre une frange de Maker en fonction de la pression pour une longueur de cellule constante. Cette mesure nous sert de calibration de la valeur maximale du signal obtenu dans cette configuration de l'expérience. De plus, nous obtenons la valeur de la pression à laquelle le signal est minimal. Puis, la pression est réglée à la pression qui nous donne un minimum du signal en absence de la lame. Ensuite nous descendons la lame au centre de la cellule dans le trajet du filament et nous mesurons le signal de la troisième harmonique. Le carré montre la valeur du signal de la troisième harmonique obtenue en présence de la lame de silice après une optimisation de son inclinaison. Une rotation permet de varier légèrement l'épaisseur de la lame avec l'angle. Après avoir optimisé l'angle de rotation et par conséquent l'épaisseur de la lame, le signal optimisé est supérieur d'un facteur 1.7 aux valeurs maximales mesurées sans lame pour toute

pression jusqu'à 150 mbar. Nous avons d'abord vérifié l'absence de signal sans gaz dans la cellule avec la lame en place, puis que la génération des fréquences à la troisième harmonique dans la lame est négligeable.

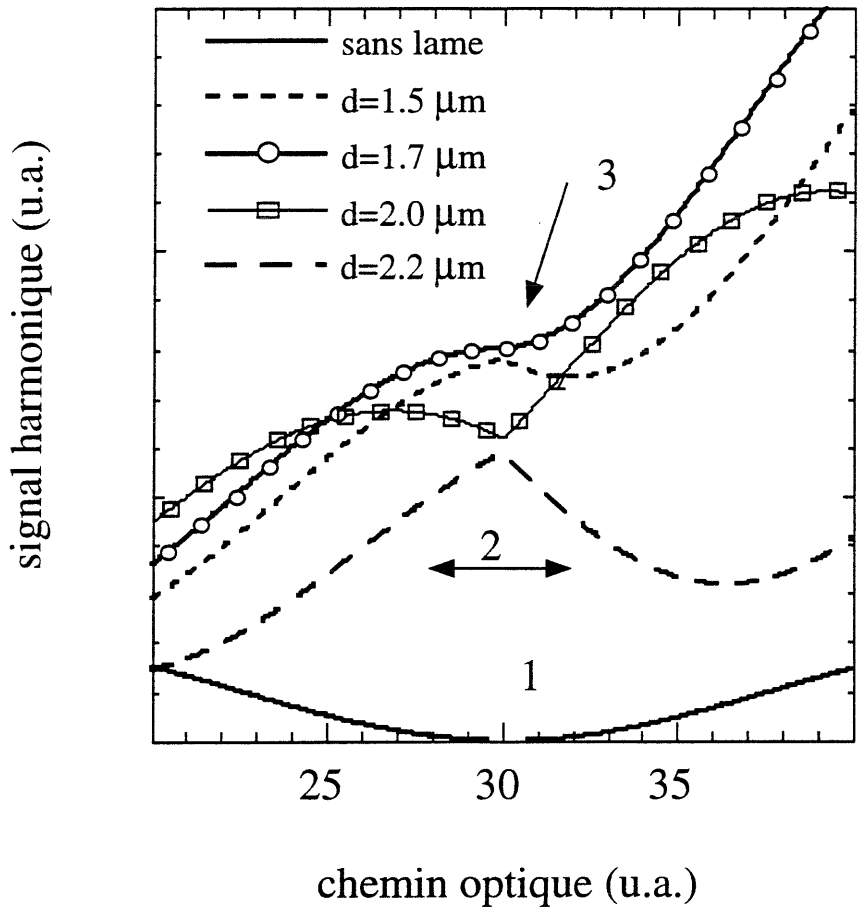


Figure 6.17: Calcul du signal à la fréquence harmonique en fonction du chemin optique. En trait plein le signal sans lame (1), l'influence d'une variation de la position du maximum du signal dans la cellule par rapport à la position de la lame correspond à un déplacement selon la flèche (2) et l'influence d'une variation en épaisseur correspond à un déplacement vertical à la position (3).

La Figure 6.17 montre le calcul théorique du signal pour des lames de phase d'épaisseurs différentes. On reconnaît la frange de Maker sans lame de déphasage en trait continu en bas de la Figure 6.17. Dans cet exemple théorique l'épaisseur optimale de la lame est de 1.7 µm. Le signal de la troisième harmonique générée en présence de la lame optimale est indiqué par un trait continu avec des cercles ouverts. Les trois autres courbes montrent la variation du signal pour des épaisseurs sous-optimales.

La différence entre le facteur 4 d'augmentation théorique pour le quasi-accord de phase (flèche 3) et celui de 1.7 mesuré dans l'expérience peut être expliqué par plusieurs contributions. L'incertitude sur l'épaisseur de la lame donne une première source d'erreur. La Figure 6.17 montre qu'une incertitude de 20 % en épaisseur peut réduire considérablement le signal. Une deuxième source d'erreur provient de l'incertitude sur la distribution spatiale du minimum à la pression donnée. Dans la Figure 6.17 cette incertitude correspond à un déplacement selon la flèche 2. Une troisième réduction du signal peut être liée à l'hétérogénéité de la lame: à l'oeil on peut apercevoir de petites structures sur la lame.

6.5 Discussion

Nous avons montré dans ce chapitre la possibilité de générer des harmoniques d'ordre élevé avec un filament. Le spectre des fréquences harmoniques nous a permis de vérifier les estimations d'intensité obtenues dans les chapitre 4 et 5. L'analyse de l'origine du déphasage à 3 et 5 ω nous a permis d'identifier la dispersion du gaz neutre comme facteur dominant du désaccord de phase. Cela montre la cohérence de l'onde fondamentale et de l'onde harmonique sur la longueur de la cellule. En plus, ce résultat nous amène à la conclusion qu'une contribution géométrique est négligeable et que la surface d'onde dans le filament est quasi-plane. Enfin, expérimentalement nous avons pu compenser le déphasage dû au gaz neutre et nous avons montré la possibilité du quasi-accord de phase dans un filament à la fréquence de la troisième harmonique.

Ces résultats obtenus en utilisant un filament pour la génération des fréquences harmoniques sont nouveaux. Ils se situent dans une recherche plus large pour l'amélioration du rendement dans la génération des harmoniques. Deux approches différentes ont été explorées récemment pour accroître la longueur d'interaction pour la génération des harmoniques, notamment pour les ordres plus élevés où l'absorption devient plus importante. La première approche utilise un axicon pour la génération de faisceaux Bessel [6.15]. Une deuxième approche confine le faisceau dans une fibre creuse [6.16]. L'approche du filament montre deux avantages. Premièrement, la génération d'un filament ne dépend pas des éléments optiques comme une fibre ou un

axicon et par conséquent conduit à une expérience simple. Deuxièmement - l'autoréglage de l'intensité près du seuil de l'ionisation est une condition idéale pour la génération des harmoniques. Dans les deux autres approches, le paramètre d'intensité est un paramètre critique.

Le quasi-accord de phase avec une lame de silice mis en évidence pour l'harmonique 3ω ne s'applique pas aux harmoniques d'ordre élevé car la silice n'est transparente qu'au dessus de 200 nm. Mais une variation de l'indice de réfraction peut être induite par exemple, par une forte ionisation locale du milieu non-linéaire, utilisant ainsi la contribution des électrons libérés à l'indice de réfraction. La possibilité de varier l'indice de réfraction de manière contrôlée, comme nous l'avons montré dans la Figure 6.14 en utilisant un gaz de tampon, devient très intéressante sous cette perspective d'accord de phase pour les harmoniques d'ordre élevé. En présence d'une contribution négative au déphasage entre l'onde fondamentale et harmonique s'ouvre la possibilité d'un vrai accord de phase: une contribution peut être compensée par une autre. Ceci est par exemple envisageable pour des longueurs d'ondes plus courtes que celles des résonances. Dans cette région, la dispersion due au gaz neutre peut être négative et l'utilisation d'un gaz tampon peut servir à accorder la phase en fonction de la pression. Dans les fibres creuses, une première expérience de ce genre d'accord de phase a été démontré par le groupe de Murnane [6.17] , dans un cas particulier où l'absorption était faible.

[6.1] A. l'Huillier, L.-A. Lompré, G. Mainfray and C. Manus: *Higher Harmonic Generation in Rare Gases*, p.187, in: Mihai Gavrila (ed): *Atoms in Intense Laser Fields*, Academic Press Inc., New York (1992)

[6.2] A. L'Huillier, Ph. Balcou : *High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser*, Phys. Rev. Lett. 70, (1993).

[6.3] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, N. Rahman, G. Petite: *Free-free transitions following six-photon ionization of Xenon atoms*, Phys. Rev. Lett. **42**, 1127 (1979).

[6.4] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T.S. Luk, I. McIntyre, K. Boyer, C.K. Rhodes: *Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases*, J. Opt. Soc. Am. B **4**, 595 (1987).

[6.5] P.B. Corkum: *Plasma Perspectives on Strong-Field Multiphoton Ionisation*, Phys. Rev. Lett. **73**, 1995 (1993).

[6.6] Ph. Balcou: *Etude de la génération d'harmoniques d'ordre élevé en champ intense*. Thèse de doctorat, université Paris 6 (1993) ; P. Salières : *Propriétés de cohérence de la génération harmonique en champ laser intense*, Thèse de doctorat, université Paris 6 (1995); M. B. Gaarde : *High harmonic generation and two color mixing in strong laser fields*, Thèse de doctorat, Niels Bohr Institute, University of Copenhagen (1997).

[6.7] 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).

[6.8] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M.M. Murnane, H.C. Kapteyn : *Generation of coherent soft x-rays at 2.7 nm using high harmonics*, Phys. Rev. Lett. **79**, 2923 (1997).

[6.9] C. Altucci, T. Starczewski, E. Mevel, and C.-G. Wahlström: *Influence of atomic density in high-order harmonic generation*, J. Opt. Soc. Am. B **13**, 148 (1996).

[6.10] T. Ditmire, J.K. Crane, H. Nguyen, L.B. DaSilva, M.D. Perry : *Energy-yield and conversion-efficiency measurements of high-order harmonic radiation*, Phys. Rev. A **51**, R902 (1995).

[6.11] Landolt-Börnstein: *Zahlenwerte und Funktionen*, Volume **2**(8), Optische Konstanten, Springer Berlin (1965).

[6.12] A. l'Huillier, Ph. Balcou, S. Candel, K.J. Schafer and K.J. Kulander: *Calculation of high-order harmonic generation processes in Xenon at 1064 nm*, Phys. Rev. A. **46,** 2778 (1992).

[6.13] L'Huillier, Ph. Balcou, S. Candel, K.J. Schafer, K.C. Kulander: *Calculations of high-order harmonic generation processes in xenon at 1064 nm*, Phys. Rev. A **46**, 2778 (1992).

[6.14] P.G. Kazansky, V. Pruneri and P. St. J. Russell : *Blue light generation by quasi-phase-matched frequency doubling in thermally poled optical fibers*, Optics Lett. **20**, 843 (1995).

[6.15] V.E. Peet, R.V. Tsubin *: Third-harmonic generation and multiphoton ionisation in Bessel beams*, Phys. Rev. A **56**, 1613 (1997).

[6.16] B. Glushko, B. Kryzhanovsky, D. Sarkisyan : *Self-phase-matching mechanism for efficient harmonic generation processes in a ring pump beam geometry*, Phys. Rev. Lett. **71**, 243 (1993).

[6.17] A . Rundquist, C. G. Durfee III, Z. Chang, C. Herne, S. Backus, M. M. Murnane, H.C. Kapteyn : *Phase-matched generation of coherent soft x-rays*, Science **280**, 1412 (1998).

7. Conclusion

Dans cette thèse, j'ai analysé numériquement et expérimentalement le phénomène de la filamentation des impulsions femtosecondes dans le régime non-relativiste et non-dispersif dans l'air. J'ai exploré avec un code existant dans le chapitre 3 la simulation de la filamentation. Nous avons vu l'action de la diffraction, de l'effet Kerr dans sa réponse instantanée et non-instantanée ainsi que de l'ionisation sur la propagation d'une impulsion femtoseconde. D'abord, nous avons reconstitué des prédictions théoriques comme l'auto-compression de l'impulsion dans les simulations, puis nous avons développé une interprétation de la formation des filaments. La formation d'un filament en fonction de la pression, de l'énergie et du diamètre a été éclaircie. L'observation des oscillations spatiales d'un filament et la formation des anneaux de réfraction nous a conduits à une image de la filamentation comme un quasi-équilibre dynamique entre l'effet Kerr et l'ionisation.

A partir de cette interprétation, nous avons pu vérifier expérimentalement les principales propriétés des filaments. Pour cela j'ai introduit deux améliorations du dispositif expérimental : le développement d'un diagnostic de caractérisation de l'impulsion initiale et une nouvelle géométrie pour générer des filaments. Ces deux améliorations nous ont permis de stabiliser les fluctuations et d'obtenir des filaments à l'aide d'un dispositif de la taille d'une dalle optique. Cette réduction d'encombrement nous a permis d'étudier la formation des filaments en fonction de la pression et de la nature du gaz. Puis nous avons mesuré la durée d'une impulsion dans le filament, et ainsi répondu à une question encore ouverte au début de la thèse. Avec ces résultats expérimentaux, couplés avec les simulations nous avons pu trancher dans une controverse sur l'interprétation des filaments : la controverse du "moving focus". Nous avons proposé un cas test et nous avons montré dans l'expérience et la simulation l'insuffisance de l'un des deux modèles discutés.

Avec une compréhension détaillée fondée sur les simulations et la mise en place d'une filamentation stable, nous avons enfin utilisé les filaments, pour la première fois, pour générer des harmoniques. Dans une expérience d'épreuve, nous avons montré la possibilité de la génération des harmoniques d'ordre élevé jusqu'au 23e ordre. Nous avons établi par la mesure expérimentale que la phase géométrique est négligeable dans

les filaments et que le désaccord périodique observé est dû à la dispersion. Finalement nous avons montré, comment on peut surmonter ce désaccord de phase dans la génération du troisième harmonique par un quasi-accord de phase avec une lame de silice.

En conclusion, le travail effectué dans le groupe et présenté dans cette thèse a permis d'approfondir la compréhension de la génération de la filamentation, de la transformer en un processus contrôlé et utilisable expérimentalement et de l'appliquer à la génération des harmoniques d'ordre élevé.

Résumé en anglais

Nonlinear optics has now evolved into a mature field with the major emphasis on applications. However, with the advent of ultrashort laser pulses of very high peak intensities, a revisit of many classical non-linear effects becomes necessary. Previously well understood systems are easily driven to an extreme nonlinear regime. One example is the recently observed formation of optical filaments [1]. The dynamic evolution of these intense femtosecond pulses during their propagation through air is investigated in this thesis in three parts: a numerical study, experimental measurements and the application of the filament source to the generation of higher harmonics of the fundamental frequency.

The numerical analysis of the filamentation process is based on the solution of the paraxial nonlinear wave equation with a finite difference scheme. The action of the three considered terms - diffraction, optical Kerr effect and ionization - are studied first separately in order to trace in a second stage their specific role in the formation of the filament. From the simulations emerges a physical interpretation of the filamentation as quasi-equilibrium between Kerr effect and ionization on the macroscopic level with a "hidden" complex dynamic on the microscopic scale.

The experimental study sets out with two innovations: first the development of phase retrieval method which allows to completely control the temporal initial condition of the pulses [2] used for the filamentation. To the present, the temporal phase represented an element of uncertainty in the experiments. The second innovation concerns the rearrangement of the filamentation set up from its initial 40 m propagation distance to a table top configuration. These two improvements provided a stable and highly reproducible filament. Furthermore, the reduced size allowed for observation of filament properties as a function of pressure and gas species. The experimental results confirm the numerical predictions about macroscopic filament properties. Filaments are typically of 100 - 400 μm in diameter, contain less than 10 % energy of the initial pulse energy and propagate over distances beyond 50 m. As well a first measurement of the pulse duration within a filament answered one of the still open questions at the beginning of this thesis. Numerical and experimental data allowed us to propose a decisive test case in the

controversy about the interpretation of the filamentation process as either a moving focus or a self-channeling laser pulse [3].

In the third part of this thesis, the improved understanding and control of the experimental process of filamentation is used to explore its application to the generation of higher harmonics in gases. For this purpose, a filament is created in air and then coupled into a gas cell of variable length. In a first step, we demonstrate for the first time the capacity of the filament to generate high order harmonics [4] - up to the 23rd order. In a second step, we analyze phase matching conditions in the filament and identify the major dephasing factor. As a concluding step, we compensate the dispersive dephasing between the fundamental and third harmonic in a quasi-phase matching experiment.

[1] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou: *Self-channelling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air*, Opt. Lett. **20**, 73 (1995).

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

[3] H.R.Lange, M.A.Franco, J.-F.Ripoche, B.S.Prade and A.Mysyrowicz: *Characterisation of ultra-short pulses by cross phase modulation*, accepted for publication in IEEE, special edition on ultrafast phenomena.

[4] H.R.Lange, A.Chiron, J.-F. Ripoche, A.Mysyrowicz, P. Breger, P. Agostini: *High-order harmonic generation and quasiphase matching in Xenon using self-guided beams*, accepted for Phys. Rev. Lett. (1998).

Liste des notations

a_0	rayon initial d'un faisceau
$E(t,r)$	champ complet
$\theta(t,r) = \arg(E(t,r))$	phase complète
$E(t,r)$	champ complexe d'enveloppe temporelle
$E(t,r) = u(x,y,z)f(t)$	factorisation du champ spatial et temporel
$\tilde{E}(\omega,r)$	champ complexe d'enveloppe spectrale
E_0	champ crête réel
$F(\omega,z)$	champ complexe dans le domaine spectral
$\phi(t,r)$	phase temporelle de l'enveloppe
$\psi(\omega)$	phase spectrale de l'enveloppe
$\Delta T_{1/2}$	largeur temporelle à mi-hauteur
ΔT_s	largeur temporelle pour une sécante hyperbolique
I_0	intensité crête
$\chi^{(n)}(\vec{r},t)$	susceptibilité
$\mathbf{P}(\vec{r},t)$	polarisation
$N_0(t)$	nombre des électrons de valence
$N_1(t)$	nombre des électrons libres
$R(z)$	rayon de courbure du front de phase
U	potentiel d'un atome
$n_{2,i}$	coefficient de l'effet Kerr instantané
$n_{2,r}$	coefficient de l'effet Kerr non-instantané
$w_{ion}(t)$	taux d'ionisation
$\mathbf{W}$	énergie intiale
ε_0	constante diélectrique du vide
Γ	paramètre de Keldish
$\Theta(z)$	phase spatiale sur l'axe de propagation