



# Sur l'étude du processus de filamentation laser dans les gaz rares en modèle de champ fort : des influences de la génération de troisième harmonique et de la proximité de résonances dans l'ultraviolet

Julien Doussot

## ► To cite this version:

Julien Doussot. Sur l'étude du processus de filamentation laser dans les gaz rares en modèle de champ fort : des influences de la génération de troisième harmonique et de la proximité de résonances dans l'ultraviolet. Optique [physics.optics]. Université Bourgogne Franche-Comté, 2017. Français. NNT : 2017UBFCK033 . tel-01827809

**HAL Id: tel-01827809**

**<https://theses.hal.science/tel-01827809>**

Submitted on 2 Jul 2018

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

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

# Thèse

présentée par

**Julien DOUSSOT**

pour obtenir le grade de

Docteur en Physique

---

**SUR L'ETUDE DU PROCESSUS DE FILAMENTATION LASER  
DANS LES GAZ RARES EN MODELE DE CHAMP FORT :  
DES INFLUENCES DE LA GENERATION DE TROISIEME HARMONIQUE  
ET DE LA PROXIMITE DE RESONANCES DANS L'ULTRAVIOLET**

---

Soutenue le **19 Décembre 2017**, devant le jury composé de :

|                         |                                       |                       |
|-------------------------|---------------------------------------|-----------------------|
| <b>Jérôme KASPARIAN</b> | Université de Genève                  | Président du Jury     |
| <b>Véronique BOUTOU</b> | Institut Néel, Grenoble               | Examinatrice          |
| <b>Eric CORMIER</b>     | Université de Bordeaux I              | Rapporteur            |
| <b>Arnaud COUAIRON</b>  | CPHT Ecole Polytechnique, Palaiseau   | Rapporteur            |
| <b>Pierre BEJOT</b>     | Université de Bourgogne Franche-Comté | Co-Directeur de Thèse |
| <b>Olivier FAUCHER</b>  | Université de Bourgogne Franche-Comté | Directeur de Thèse    |

Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne  
UMR 6303 CNRS-Université Bourgogne Franche-Comté  
9 Av. A. Savary, BP 47870  
F-21078 Dijon Cedex - France



*A ma famille.*

---



## REMERCIEMENTS

**C**OMME il est de coutume, j'adresse mes premiers mots de remerciements à mes directeurs de thèse, Olivier Faucher et Pierre Béjot. Ce manuscrit a bénéficié de leurs relectures minutieuses, et je mesure pleinement la chance qui a été la mienne d'évoluer à leurs côtés tout au long de cette aventure inoubliable. Pendant ces trois années (voire un peu plus), j'ai servi la Science et ça a été ma joie, tout en ayant grâce à eux le sentiment de chaque instant d'être privilégié. Mon investissement dans cette thèse aura été le reflet de votre engagement quotidien à guider, non sans amusement, le bonhomme pas très expansif que je suis. Pour toutes ces raisons – et pour bien d'autres encore – vous aurez toujours toute mon estime et ma plus grande admiration. Merci beaucoup !!

Je remercie également les membres de mon jury : Arnaud Couairon, Eric Cormier, Véronique Boutou et Jérôme Kasparian pour m'avoir fait l'honneur d'évaluer mon travail, et pour avoir fait le déplacement jusqu'à Dijon pour assister à ma soutenance. Je leur suis très reconnaissant des remarques bienveillantes qu'ils m'ont adressées, et pour m'avoir décerné le titre de Docteur.

Je tiens ensuite à exprimer toute ma gratitude envers les autres membres de l'équipe PFL : Franck, indispensable quand il s'agit de monter une manip', et à qui je me souviendrai qu'il avait fallu bien moins de temps que je n'en avais déjà passé pour trouver le délai-zéro ; Edouard, Bruno et Fred' qui, avant que je ne « passe de l'autre côté de la barrière », ont d'abord été pour moi des professeurs avec un grand souci de la transmission. Vous m'avez permis d'évoluer dans une atmosphère scientifique extrêmement agréable, et je pense que je me remémorerai longtemps de vos rires à tous : merci à vous !

Je veux aussi avoir un mot pour Claire, qui a toujours su répondre à mes demandes avec beaucoup de gentillesse, et ce même lorsque je m'y prenais au dernier moment.

Je n'oublie pas Philippe, qui avait toujours un peu de temps pour converser avec moi lorsque nous nous croisions – même à des heures peu raisonnables –, ainsi que Benoît et Olivier avec qui j'ai encadré des TP pendant une année, ce qui demeurera pour moi une expérience très enrichissante.

---

J'adresse également un salut des plus chaleureux à ceux avec qui j'ai eu le plaisir de partager mon bureau le temps que j'y ai séjourné. Ceux qui l'avait quitté avant la fin de ma thèse : l'ami Rachid et nos échanges à propos de tout et de rien, Foued, Ugo, Paul et Philippe ; ainsi que ceux encore présents lorsque je l'ai achevée : Emilien, fan tout comme moi du Professeur Moustache, dont le visionnage des aventures en sa compagnie lorsque la journée de travail touchait à sa fin me manquera assurément ; et Nico', avec qui je partage un intérêt certain pour l'Histoire et pour les séries – même si je n'ai pas pu en discuter autant que j'aurais voulu, pour cause de rédaction ;-)

I would also like to have a word for the foreign colleagues I met : Gabriel, Haisu, Xiao and Cesar. That pushed me to use – and to improve – my english level, which has been valuable.

Je souhaite aussi bon courage pour la suite aux autres doctorants, à la place desquels je me trouvais encore récemment : Manon, Alexandre, Richard, Adrien, Hugo, Paul et bien sur Emilien – don't panic ;-). J'ai également une pensée pour mes camarades rencontrés au cours de mes précédentes années universitaires, en particulier pour Hassan, Mbaye « Papa ! » et Harold – allez l'O.L. ! –.

Tout ce temps qu'a duré ma thèse, ma marraine – Cécile – a été une source d'inspiration pour moi. Souvent, il m'est arrivé de me demander : « comment s'y prendrait-elle ? ». Si, le jour où j'ai assisté à ta soutenance, on m'avait dit que les rôles seraient inversés quelques années plus tard, je n'y aurais sans doute pas cru. Je te remercie infiniment d'avoir pris de ton temps pour être présente en ce jour important pour moi, comme pour symboliquement « boucler la boucle ».

Je tiens aussi à avoir un mot pour ma grand-mère Simone, qui m'a fait l'honneur de sa présence le jour de ma soutenance et dont j'ai bien perçu l'émotion. Je veux que tu saches, qu'à ce moment, tu comptais pour quatre à mes yeux.

J'ai également une tendre pensée pour ma grand-mère Paulette, pour mes grands-pères Maurice et René ainsi que pour mon tonton Pierrot qui auraient, je l'espère, apprécié assister à ma présentation.

J'associe à ces remerciements mes oncles et tantes : Claude, Bernard – merci de m'avoir fait le plaisir d'un détour pour me saluer et partager mon pot de thèse –, Michel, Philippe, Catherine, Claude et Jocelyne, ainsi que mes cousins et cousines : Valentin, Axel, Elodie, Thibaut, Diane et Martin. Vous tous êtes pour moi associés à des souvenirs d'enfance inoubliables et à des moments heureux.

---

Je ne serais sans doute pas tout à fait le même sans mes trois frérots : Alexis, Bastien et Loïs, à qui je dois de nous être régulièrement rassemblés autour de repas tous plus équilibrés les uns que les autres, agrémentés d'une bonne dose de complicité et qui m'auront parfois permis de me changer les idées. Je n'oublie pas non plus les amis qui se joignaient à nous dans ces instants où régnait la bonne humeur : Hélène & Quentin, Romane & Stan (merci d'être venu m'écouter parler de Physique!).

Enfin, je souhaite exprimer ma reconnaissance à mes parents, Thérèse & Gilles. J'espère que vous en trouverez le témoignage dans ces quelques mots pour m'avoir toujours accompagné à chaque étape de ma vie, ainsi que pour tout ce dont on ne prend conscience que quand on devient soi-même parent. Je me souviens que, petit, je vous suivais quand vous passiez la tondeuse ou à la lecture d'une histoire avant d'aller dormir. Ayant grandi, je m'installais à vos côtés en salle d'attente avec des crocos' ou dans les tribunes du stade de Bram. En ce 19 Décembre, le temps était venu de me tenir devant vous.

**Merci à toutes les personnes qui ont compté tout au long de mon parcours !**

---

---

# TABLE DES MATIÈRES

|                                                                                                |           |
|------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>Table des matières</b>                                                                      | <b>9</b>  |
| <b>Introduction</b>                                                                            | <b>15</b> |
| <b>1 Description théorique de la filamentation et simulations numériques</b>                   | <b>21</b> |
| 1 Interprétation générale du processus . . . . .                                               | 23        |
| 1.1 Effets linéaires et autofocalisation . . . . .                                             | 23        |
| 1.2 Défocalisation . . . . .                                                                   | 25        |
| 2 Modèle de propagation : des équations de Maxwell à l'équation de propagation .               | 27        |
| 2.1 Equations de Maxwell et équation d'onde . . . . .                                          | 27        |
| 2.2 Premier terme source, la polarisation . . . . .                                            | 29        |
| 2.2.1 Cas général . . . . .                                                                    | 31        |
| 2.2.2 Cas où le champ électrique est proche d'une résonance du sys-<br>tème atomique . . . . . | 32        |
| 2.3 Second terme source, la densité de courant . . . . .                                       | 33        |
| 2.3.1 Ionisation . . . . .                                                                     | 33        |
| 2.3.2 Densité de courant . . . . .                                                             | 37        |
| 2.4 Etablissement de l'équation de propagation pour un champ complexe . .                      | 38        |
| 2.4.1 Obtention de l'équation de propagation pour le champ réel . . .                          | 38        |
| 2.4.2 Passage en champ complexe . . . . .                                                      | 40        |
| 2.5 Implémentation numérique . . . . .                                                         | 42        |
| 2.5.1 Conditions initiales . . . . .                                                           | 43        |
| 2.5.2 Grille numérique . . . . .                                                               | 44        |
| 2.5.3 Résolution numérique de l'équation de propagation . . . . .                              | 45        |
| 3 Illustrations d'une propagation par simulation numérique . . . . .                           | 48        |
| 3.1 Ordres de grandeur . . . . .                                                               | 48        |
| 3.2 Elargissement spectral et supercontinuum . . . . .                                         | 51        |
| 3.3 Auto-raïdissement . . . . .                                                                | 54        |
| 3.4 Pulse-splitting . . . . .                                                                  | 55        |

---

|          |                                                                                  |           |
|----------|----------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| 3.5      | Compression temporelle . . . . .                                                 | 56        |
| 3.6      | Emission conique . . . . .                                                       | 57        |
| 4        | Equation de Schrödinger Dépendante du Temps (E.S.D.T.) et B-splines . . . . .    | 59        |
| 4.1      | Les fonctions splines . . . . .                                                  | 61        |
| 4.2      | Structure atomique . . . . .                                                     | 67        |
| 4.2.1    | Etats liés . . . . .                                                             | 69        |
| 4.2.2    | Etats du continuum . . . . .                                                     | 72        |
| 4.3      | Généralisation au cas des gaz rares . . . . .                                    | 73        |
| 4.3.1    | Etats de cœur . . . . .                                                          | 74        |
| 4.3.2    | Suppression des états de cœur, première étape . . . . .                          | 74        |
| 4.3.3    | Suppression des états de cœur, deuxième étape . . . . .                          | 76        |
| 4.3.4    | Comparaison E.S.D.T./réalité . . . . .                                           | 76        |
| 4.4      | Programme numérique de l'E.S.D.T. . . . .                                        | 77        |
| 4.4.1    | Représentation du champ électrique . . . . .                                     | 77        |
| 4.4.2    | Invariance et changement de jagues . . . . .                                     | 78        |
| 4.4.3    | Equation de Schrödinger Dépendante du Temps . . . . .                            | 78        |
| 4.4.4    | Résolution numérique . . . . .                                                   | 79        |
| 4.4.5    | Evaluation des observables physiques . . . . .                                   | 80        |
| 4.4.6    | Boîte numérique et convergence des résultats . . . . .                           | 84        |
| 4.4.7    | Gain apporté par l'utilisation des B-splines . . . . .                           | 86        |
| 5        | Conclusion du Chapitre . . . . .                                                 | 88        |
| 6        | Bibliographie . . . . .                                                          | 89        |
| <b>2</b> | <b>Influence des harmoniques sur la filamentation : approche microscopique</b>   | <b>95</b> |
| 1        | Résolution de l'E.S.D.T. en présence de troisième harmonique . . . . .           | 97        |
| 1.1      | Définition du champ électrique . . . . .                                         | 97        |
| 1.2      | Impact de la troisième harmonique sur l'ionisation . . . . .                     | 98        |
| 1.2.1    | Influence de la phase relative . . . . .                                         | 99        |
| 1.2.2    | Influence de l'éclairement . . . . .                                             | 99        |
| 1.2.3    | Influence du ratio $R$ (et du gaz) . . . . .                                     | 100       |
| 1.3      | Interprétation de l'impact de la TH . . . . .                                    | 103       |
| 1.3.1    | Interférences de chemins quantiques d'ionisation . . . . .                       | 103       |
| 1.3.2    | Maximum du champ électrique total . . . . .                                      | 105       |
| 2        | Confirmation expérimentale de l'influence de la TH sur le processus d'ionisation | 106       |
| 2.1      | Mise en forme du champ et gestion de la phase relative . . . . .                 | 107       |
| 2.2      | Technique de mesure pour l'ionisation . . . . .                                  | 107       |
| 2.3      | Présentation des résultats . . . . .                                             | 109       |
| 3        | Formule empirique pour l'ionisation en présence de TH . . . . .                  | 111       |

---

---

|          |                                                                                      |            |
|----------|--------------------------------------------------------------------------------------|------------|
| 3.1      | Précisions à propos du champ électrique . . . . .                                    | 111        |
| 3.2      | Evaluation numérique de l'effet dû à la TH sur l'ionisation . . . . .                | 112        |
| 3.2.1    | Procédure générale d'ajustement . . . . .                                            | 112        |
| 3.2.2    | Méthode n°1 : l'interpolation . . . . .                                              | 113        |
| 3.2.3    | Méthode n°2 : les polynômes . . . . .                                                | 113        |
| 3.3      | Influence de la longueur d'onde . . . . .                                            | 115        |
| 3.4      | Influence de la durée du champ . . . . .                                             | 116        |
| 4        | Conclusion du Chapitre . . . . .                                                     | 117        |
| 5        | Bibliographie . . . . .                                                              | 119        |
| <b>3</b> | <b>Influence des harmoniques sur la filamentation : approche macroscopique</b>       | <b>121</b> |
| 1        | Impact de la TH auto-induite sur la propagation . . . . .                            | 123        |
| 1.1      | Présentation de l'étude . . . . .                                                    | 123        |
| 1.1.1    | Conditions « expérimentales » . . . . .                                              | 123        |
| 1.1.2    | Evaluation numérique de l'ionisation . . . . .                                       | 123        |
| 1.1.3    | Assigner une valeur numérique à l'impact de la TH sur la propagation . . . . .       | 124        |
| 1.2      | Résultats . . . . .                                                                  | 125        |
| 1.2.1    | Impact de la TH sur la propagation . . . . .                                         | 125        |
| 1.2.2    | Distributions spatio-temporelles des impulsions au cours de la propagation . . . . . | 126        |
| 1.2.3    | Etude dans le krypton : dépendance en gaz . . . . .                                  | 127        |
| 1.3      | Conclusion . . . . .                                                                 | 128        |
| 2        | Contrôle de la filamentation par ensemencement de troisième harmonique . . .         | 130        |
| 2.1      | Protocole expérimental . . . . .                                                     | 130        |
| 2.2      | Régime de focale courte . . . . .                                                    | 131        |
| 2.3      | Régime de focale longue . . . . .                                                    | 133        |
| 2.3.1    | Résultats expérimentaux . . . . .                                                    | 133        |
| 2.3.2    | Modélisation numérique . . . . .                                                     | 134        |
| 3        | Conclusion du Chapitre . . . . .                                                     | 135        |
| 4        | Bibliographie . . . . .                                                              | 136        |
| <b>4</b> | <b>Filamentation au voisinage d'une résonance</b>                                    | <b>139</b> |
| 1        | Renforcement résonant de la filamentation . . . . .                                  | 141        |
| 1.1      | Etude expérimentale . . . . .                                                        | 141        |
| 1.2      | Modélisation théorique du phénomène . . . . .                                        | 145        |
| 1.2.1    | Confrontation modèle classique/modèle champ fort . . . . .                           | 146        |
| 1.2.2    | Durée d'impulsion plus longue . . . . .                                              | 150        |

---

---

|       |                                                                                                                         |            |
|-------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------|
| 1.3   | Généralisation au cas de l'argon . . . . .                                                                              | 151        |
| 1.4   | Conclusion . . . . .                                                                                                    | 153        |
| 2     | Effet laser dans le krypton . . . . .                                                                                   | 154        |
| 2.1   | Diagramme des transitions . . . . .                                                                                     | 154        |
| 2.2   | Etudes en fonction de la longueur d'onde de pompe . . . . .                                                             | 156        |
| 2.2.1 | Cas où la pompe est polarisée horizontalement . . . . .                                                                 | 158        |
| 2.2.2 | Cas où la pompe est polarisée circulairement . . . . .                                                                  | 162        |
| 2.3   | Conclusion . . . . .                                                                                                    | 164        |
| 3     | Filamentation résonante à deux couleurs . . . . .                                                                       | 165        |
| 3.1   | Présentation de l'étude . . . . .                                                                                       | 166        |
| 3.1.1 | Diagramme schématique . . . . .                                                                                         | 166        |
| 3.1.2 | Polarisations non-linéaires . . . . .                                                                                   | 167        |
| 3.2   | Procédures d'ajustement des polarisations non-linéaires et extraction des indices de réfraction non-linéaires . . . . . | 169        |
| 3.2.1 | Auto-modulation de phase et génération de troisième harmonique . . . . .                                                | 170        |
| 3.2.2 | Modulation de phase croisée et recombinaison . . . . .                                                                  | 172        |
| 3.2.3 | Non-instantanéité des processus non-linéaires . . . . .                                                                 | 174        |
| 3.3   | Propagations numériques et impact de la résonance . . . . .                                                             | 176        |
| 3.4   | Conclusion . . . . .                                                                                                    | 179        |
| 4     | Conclusion du Chapitre . . . . .                                                                                        | 180        |
| 5     | Bibliographie . . . . .                                                                                                 | 181        |
|       | <b>Conclusion générale</b>                                                                                              | <b>185</b> |
|       | <b>Annexes</b>                                                                                                          | <b>188</b> |

---

---



## INTRODUCTION

**A**VEC la réalisation du premier laser par Maiman [1] en 1960, faisant suite au papier théorique de Schwalow et Townes [2], une nouvelle ère technologique débutait. Les nombreuses applications que celui-ci a trouvé depuis sont là pour en attester : l'utilisation du laser s'étend ainsi du domaine médical, par exemple pour l'enlèvement de tatouages ou en ophtalmologie (remodelage de la cornée via le LASIK, traitement du décollement de la rétine, ...), au domaine militaire avec la télémétrie, la désignation de cibles ou encore le déminage, en passant par le secteur industriel où le laser est employé pour percer, découper, souder ou encore pour faire du marquage. De manière plus générale, cette invention est devenue incontournable dans la vie quotidienne à travers les télécommunications notamment, mais il est également au cœur de dispositifs tels que les lecteurs (CD, DVD, blu-ray), les lecteurs de code-barres, les imprimantes et les pointeurs laser ou encore le guidage de travaux comme pour le tunnel sous la Manche ou le viaduc de Millau. Le laser constitue enfin un symbole central du passage de l'âge de l'électronique au règne de la photonique, dont il est prédit que le XXIème siècle en sera le témoin.

Dans un contexte d'amélioration de la performance des lasers, la recherche d'impulsions de durées toujours plus courtes aboutit à l'accession au régime femtoseconde [3], en 1974. Un peu plus d'une décennie plus tard, la découverte d'un nouveau matériau laser, à savoir l'oxyde d'aluminium dopé aux ions titane [4] – aussi appelé Ti :sapphire –, associé à la technologie C.P.A. (pour **Chirped-Pulse Amplification**) [5, 6] marqua le début de l'ère de lasers ultra-courts et ultra-intenses, centré autour d'une longueur d'onde de 800 nm dans le cas du Ti :sapphire. C'est l'avènement des sources laser de ce type qui a permis et permet encore aujourd'hui l'étude expérimentale du phénomène qui nous intéresse au niveau de cette thèse. Observé pour la première fois dans les gaz en 1995 [7] grâce à un Ti :sapphire, le processus de filamentation [8, 9, 10] se situe à la croisée de plusieurs domaines de la physique tels l'électromagnétisme, la mécanique quantique ou encore l'optique non-linéaire. De manière synthétique, l'explication du phénomène provient de la balance dynamique entre plusieurs effets linéaires et non-linéaires, résultant en l'auto-guidage du faisceau laser sur des distances de propagation pouvant aller jusqu'au kilomètre [11], en contradiction avec la théorie des faisceaux gaussiens.

---

Les caractéristiques toutes particulières des filaments leur ouvrent les portes de domaines dans lesquels ils peuvent être employés. Au rang des emplois potentiels pour la filamentation, on peut ainsi trouver un bon nombre d'applications environnementales comme la condensation de l'eau [12], l'analyse atmosphérique à distance depuis le sol [13] et depuis l'espace [14], qui s'appuie sur la génération d'un supercontinuum [15]. Egalement, le guidage de décharges électriques [16] peut être envisagé : l'idée est que le filament, ionisé donc conducteur électrique, endosse le rôle du traceur – c'est-à-dire la structure ramifiée visible lors d'un orage – et guide ainsi la décharge afin d'éviter qu'elle ne cause de dommages. Citons enfin leur possible utilisation pour la génération de térahertz [17], en physique des attosecondes [18] et des hautes harmoniques [19], en spectroscopie [20] ou encore pour faire de l'usinage [21].

L'organisation du présent manuscrit se fait comme suit. Le **premier** Chapitre sera dédié à la présentation théorique du phénomène de filamentation, ainsi qu'à sa modélisation numérique. Dérivée des équations de Maxwell, l'équation gouvernant la propagation du faisceau laser sera présentée, puis utilisée pour passer en revue les différents phénomènes non-linéaires connexes à la filamentation. A la suite de cela, la résolution de l'Equation de Schrödinger Dépendante du Temps sera abordée : celle-ci correspond au traitement dit « champ fort » du problème [22, 23, 24, 25] – par opposition à la théorie des perturbations, basée sur l'approximation du champ faible –, et a été utilisée au sein de toutes les études qui seront présentées dans ce manuscrit. La méthode employée pour résoudre numériquement cette équation, appelée méthode des B-splines, sera expliquée.

L'objet du **second** Chapitre sera de confronter les modèles champ faible/champ fort pour le cas où une faible proportion de troisième harmonique est injectée, en plus du champ fondamental, pour interagir avec le milieu atomique. Les simulations numériques démontreront sans ambiguïté le fort impact de cette dernière, notamment au niveau du processus d'ionisation. Différentes procédures d'ajustement des résultats permettront par la suite l'évaluation numérique de cet impact, dont nous confirmerons l'existence de manière expérimentale. La dépendance de ce dernier vis-à-vis de plusieurs paramètres sera également testée.

De la dimension microscopique, à laquelle l'influence de la troisième harmonique aura été montrée, nous passerons au niveau macroscopique (i.e., à l'échelle d'une propagation) lors du **troisième** Chapitre, qui utilisera pleinement les formules découlant des ajustements établis auparavant. Deux cas de figure seront alors envisagés. Le premier traitera de l'effet de la troisième harmonique générée durant la propagation d'un champ fondamental seul sur la dynamique de cette dernière, au cours d'une large étude paramétrique purement numérique. Le

---

deuxième, quant à lui, mêlera simulations et expériences pour étudier la propagation commune d'un champ fondamental, centré à une longueur d'onde  $\lambda_0 = 800$  nm, et de sa troisième harmonique, cette fois-ci produite en parallèle, dans de l'argon. Deux régimes de focales seront mis en jeu, et permettront d'exhiber différents comportements du canal plasma en fonction de la phase relative entre les deux champs.

Enfin, au cours du **quatrième** et dernier Chapitre, nous envisagerons le cas où la longueur d'onde centrale du laser se situe à proximité d'une résonance du système atomique, en l'occurrence du krypton – les conclusions étant généralisables aux autres gaz rares –. Dans un premier cas de figure, nous balaierons des valeurs de longueur d'onde centrale du laser autour de  $\lambda_0 = 300$  nm : un renforcement résonant du processus de filamentation, se traduisant par une forte modification du profil du filament à la résonance, sera ainsi mis en lumière. Cette observation sera appuyée par des simulations numériques, permettant d'atteindre une meilleure compréhension des mécanismes physiques sous-jacents : notamment, de la population est promue dans des états excités par pompage optique via des transitions résonantes à trois photons. Dans la continuité de cette étude, l'analyse expérimentale des raies d'émission, qui découlent des états peuplés précédemment, sera présentée. Les expériences ayant eu lieu jusqu'à ce que la rédaction du présent manuscrit ne commence, les résultats, bien que nombreux, devront être complétés pour caractériser la totalité des processus mis en jeu. Pour finir, une situation rassemblant champ de troisième harmonique et processus de résonance sera examinée de manière purement simulatoire. Un champ fondamental, centré à  $\lambda_0 = 400$  nm, accompagné de sa troisième harmonique interagira avec le krypton. Dans ce cas, le processus de modulation de phase croisée prend place au voisinage d'une résonance du système atomique, ce qui a pour conséquence que la valeur de l'indice non-linéaire associé à ce processus s'en trouve grandement renforcée. Cette dernière étant négative, elle pourra assumer un rôle défocalisant dans le contexte d'une propagation, comme cela sera démontré.

Des perspectives pour ce travail seront données pour conclure ce manuscrit.

- 
- 
- [1] T.H. Maiman,  
*Nature* **187**, 493 (1960), *Stimulated Optical Radiation in Ruby*.
- [2] A.L. Schwalow, and C.H. Townes,  
*Phys. Rev.* **112**, 1940 (1958), *Infrared and Optical Masers*.
- [3] C.V. Shank, and E.P. Ippen,  
*Appl. Phys. Lett.* **24**, 373 (1974) *Subpicosecond kilowatt pulses from a mode-locked cw dye laser*.
- [4] P.F. Moulton,  
*J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 125 (1986), *Spectroscopic and laser characteristics of Ti :Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*.
- [5] D. Strickland, and G. Mourou,  
*Opt. Commun.* **55**, 447 (1985), *COMPRESSION OF AMPLIFIED CHIRPED OPTICAL PULSES*.
- [6] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, and G. Mourou,  
*IEEE J. Quant. Electron.* **24**, 398 (1988), *Generation of Ultrahigh Peak Power Pulses by Chirped Pulse Amplification*.
- [7] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou,  
*Opt. Lett.* **20**, 73 (1995), *Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air*.
- [8] A. Couairon, and A. Mysyrowicz,  
*Phys. Rep.* **441**, 47 (2007), *Femtosecond filamentation in transparent media*.
- [9] L. Bergé, S. Skupin, R. Nuter, J. Kasparian, and J.-P. Wolf,  
*Rep. Progress Phys.* **70**, 1633 (2007), *Ultrashort filaments of light in weakly ionized, optically transparent media*.
- [10] S.L. Chin, S.A. Hosseini, W. Liu, Q. Luo, F. Théberge, N. Akozbek, A. Becker, V.P. Kandidov, O.G. Kosareva, and H. Schroeder,  
*Can. J. Phys.* **83**, 863 (2005), *The propagation of powerful femtosecond laser pulses in optical media : physics, applications, and new challenges*.
- [11] M. Durand, A. Houard, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Durecu, B. Moreau, D. Fleury, O. Vasseur, H. Borchert, K. Diener, R. Schmitt, F. Théberge, M. Châteauneuf, J.-F. Daigle, and J. Dubois,  
*Opt. Express* **21**, 26836 (2013), *Kilometer range filamentation*.
- [12] P. Rohwetter, J. Kasparian, K. Stelmaszczyk, Z. Hao, S. Hénin, N. Lascoux, W.M. Nakaema, Y. Petit, M. Queisser, R. Salae, E. Salmon, L. Wöste, and J.-P. Wolf,  
*Nature Photon.* **4**, 451 (2010), *Laser-induced water condensation in air*.

- 
- [13] J. Kasparian, M. Rodriguez, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, H. Wille, R. Bourayou, S. Frey, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.-P. Wolf, and L. Wöste, *Science* **301**, 61 (2003), *White-Light Filaments for Atmospheric Analysis*.
  - [14] I. Dicaire, V. Jukna, C. Praz, C. Milian, L. Summerer, and A. Couairon, *Laser & Photon. Rev.* **10**, 481 (2016), *Spaceborne laser filamentation for atmospheric remote sensing*.
  - [15] N. Aközbek, M. Scalora, C.M. Bowden, and S.L. Chin, *Opt. Commun.* **191**, 353 (2001), *White-light continuum generation and filamentation during the propagation of ultra-short laser pulses in air*.
  - [16] J. Kasparian, R. Ackermann, Y.-B. André, G. Méchain, G. Méjean, B. Prade, P. Rohwetter, E. Salmon, K. Stelmaszczyk, J. Yu, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, L. Wöste, and J.-P. Wolf, *Opt. Express* **16**, 5757 (2008), *Electric events synchronized with laser filaments in thunderclouds*.
  - [17] C. D'Amico, A. Houard, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Couairon, and V.T. Tikhonchuk, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 235002 (2007), *Conical Forward THz Emission from Femtosecond-Laser-Beam Filamentation in Air*.
  - [18] A. Couairon, H.S. Chakraborty, and M.B. Gaarde, *Phys. Rev. A* **77**, 053814 (2008), *From single-cycle self-compressed filaments to isolated attosecond pulses in noble gases*.
  - [19] D.S. Steingrube, E. Schulz, T. Binhammer, M.B. Gaarde, A. Couairon, U. Morgner, and M. Kovacev, *New J. Phys.* **13**, 043022 (2011), *High-order harmonics generation directly from a filament*.
  - [20] K. Stelmaszczyk, P. Rohwetter, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, J. Kasparian, R. Ackermann, J.-P. Wolf, and L. Wöste, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 3977 (2004), *Long-distance remote laser-induced breakdown spectroscopy using filamentation in air*.
  - [21] D. Kiselev, L. Woeste, and J.-P. Wolf, *Appl. Phys. B* **100**, 515 (2010), *Filament-induced laser machining (FILM)*.
  - [22] M. Nurhuda, A. Suda, and K. Midorikawa, *Phys. Rev. A* **66**, R041802 (2002), *Ionization-induced high-order nonlinear susceptibility*.
  - [23] P.O. Kano, M. Brio, and J.V. Moloney, *Comm. Math. Sci.* **4**, 53 (2006), *NUMERICAL ANALYSIS OF THE AB INITIO COMPUTATION OF THE EFFECTS OF IONIZATION ON THE NONLINEAR SUSCEPTIBILITY COEFFICIENTS OF THE HYDROGEN ATOM*.
  - [24] M. Nurhuda, A. Suda, and K. Midorikawa, *New J. Phys.* **10**, 053006 (2008), *Generalization of the Kerr effect for high intensity, ultrashort laser pulses*.
-

- 
- [25] P. Béjot, E. Cormier, E. Hertz, B. Lavorel, J. Kasparian, J.-P. Wolf, and O. Faucher,  
*Phys. Rev. Lett.* **110**, 043902 (2013), *High-Field Quantum Calculation Reveals Time-Dependent Negative-Kerr Contribution*.
-

# DESCRIPTION THÉORIQUE DE LA FILAMENTATION ET SIMULATIONS NUMÉRIQUES

*Tout le monde n'a pas le bonheur de parler  
chinois dans sa propre langue.*

---

— Jacques Lacan

---

**B**EAUCOUP d'attention sera donnée à ce premier Chapitre, qui aura pour but de poser les bases théoriques du processus de filamentation. Il commencera ainsi en rappelant comment ce dernier est habituellement interprété, c'est-à-dire dans le cadre de la théorie des perturbations. Nous nous limiterons à l'étude de la propagation dans les gaz rares. A la suite de cela, la modélisation numérique de la propagation d'un tel faisceau [1, 2, 3] sera abordée : partant des équations de Maxwell, nous retrouverons puis dériverons l'équation gouvernant cette dernière pour aboutir à l'équation non-linéaire nommée U.P.P.E. (pour **U**nidirectional **P**ulse **P**ropagation **E**quation). Nous évoquerons le fonctionnement de l'algorithme utilisé pour la résoudre. Illustré par un exemple de propagation de faisceau laser intense, traité au moyen du code de propagation établi auparavant, nous discuterons des phénomènes connexes à une telle propagation. L'accent sera ensuite mis sur l'importance de décrire précisément les termes sources de l'équation de propagation, en distinguant notamment théorie des perturbations et théorie du champ fort. Pour ce faire, nous en viendrons enfin à la description du code d'E.S.D.T. (**E**quation de **S**chrödinger **D**épendante du **T**emps). En effet, cette équation régit l'évolution du système interagissant avec le champ laser : la résoudre en chaque point temporel nous donnera accès à la valeur de la fonction d'onde  $\Psi(\mathbf{r}, t)$  à chaque instant. La valeur des observables physiques d'intérêt pour la filamentation nous seront alors accessibles. L'algorithme alors développé s'appuiera sur la méthode dite des *B*-splines, dont nous décrirons le principe et exposerons les avantages. Les codes U.P.P.E. et E.S.D.T. constituent le support numérique sur lequel reposeront les différentes études reportées dans la suite de ce manuscrit.

---

# 1 Interprétation générale du processus

## 1.1 Effets linéaires et autofocalisation

Le processus de filamentation met en jeu un faisceau laser ultra-court (en l'occurrence femtoseconde<sup>1</sup>, 1 fs=10<sup>-15</sup> s) et ultra-intense se propageant sur des distances bien supérieures à celles prédites par la théorie des faisceaux gaussiens. Cette dernière définit la distance de Rayleigh  $z_R$ , à laquelle la largeur du faisceau gaussien a été multiplié par un facteur  $\sqrt{2}$  par rapport à sa valeur au waist, traduisant le fait que le faisceau diffracte :

$$z_R = \frac{\pi n_0 \sigma_0^2}{\lambda_0} \quad (1.1)$$

où  $\sigma_0$  est le waist du faisceau,  $\lambda_0$  la longueur d'onde dans le vide du laser et  $n_0$  l'indice de réfraction (linéaire) du milieu évalué à  $\lambda_0$ . Elle indique ainsi que, en régime linéaire, le faisceau laser conserve une taille relativement constante seulement sur une distance finie.

Outre la diffraction, il existe un autre phénomène linéaire ayant une influence significative sur une impulsion ultra-courte : la dispersion chromatique. Celle-ci est associée à tout milieu dispersif et, selon si elle est normale (i.e. quand  $k'' = \partial^2 k / \partial \omega^2|_{\omega_0} > 0$ , où  $k$  est le nombre d'onde dépendant de la longueur d'onde), respectivement anormale (quand  $k'' < 0$ ), a pour conséquence que les fréquences "rouges" se retrouveront dans le front avant (respectivement, dans le front arrière) de l'impulsion et les fréquences "bleues" dans le front arrière (respectivement, dans le front avant). Dans les deux cas, ceci a pour conséquence l'allongement de la durée de l'impulsion ainsi que la diminution de son éclairement<sup>2</sup> pic.

Ces deux effets linéaires constituent une limitation qui laissait à penser que des impulsions ultra-courtes et ultra-intenses étaient incapables de se propager sur de longues distances. Pour se donner un ordre d'idée, une impulsion de durée initiale 100 fs possédant un waist de 3 mm, se propageant en régime linéaire sur une distance de 1 km dans l'air, voit la valeur de son éclairement pic décroître d'un facteur d'environ 2400 (facteur d'environ 800 dû à la diffraction, et facteur 3 dû à la dispersion).

Néanmoins, le régime ayant cours aux valeurs d'éclairements mis en jeu lors de la filamentation est celui de l'optique non-linéaire, et un effet non-linéaire contrebalance en fait la diffraction : il s'agit de l'effet Kerr. Ce-dernier indique que l'indice de réfraction du milieu dépend de l'éclairement laser selon :

$$n = n_0 + n_2 I(r, t) \quad (1.2)$$

---

1. Le préfixe « femto- » vient du danois « femten », qui veut dire quinze.

2. Un récapitulatif précisant les grandeurs physiques employées ainsi que leurs unités est donné en [Annexe](#) .

où  $I$  est l'éclairement de l'impulsion, dépendant à la fois de la distance radiale  $r$  et du temps  $t$ . Pour sa part,  $n_2$  est l'indice de réfraction non-linéaire associé à la susceptibilité du troisième ordre  $\chi^{(3)}$  par la relation suivante :

$$\chi^{(3)} = \frac{4}{3}\epsilon_0 c n_2 n_0^2 \quad (1.3)$$

où  $\epsilon_0$  désigne la permittivité diélectrique du vide et  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide.

Sachant d'une part que ce coefficient  $n_2$  est positif lorsque  $\lambda_0$  est loin de toute résonance à un ou deux photons, et que d'autre part le cœur du faisceau est bien plus intense que ses bords ; il résulte que le centre se déplace à travers un milieu d'indice de réfraction plus élevé que les ailes et parcourt ainsi un chemin optique plus élevé, comme il le ferait avec une lentille convergente : ce processus est d'ailleurs couramment nommé *lentille Kerr*. Dans ce cas, le front d'onde se courbe [cf figure 1.1] et on dit alors que le faisceau s'autofocalise, du fait de sa propre intensité.

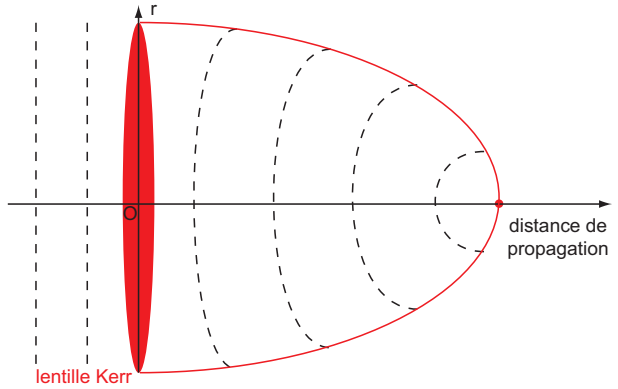


FIGURE 1.1: Représentation schématique de l'autofocalisation du faisceau par effet Kerr.

La puissance critique  $P_{cr}$ , paramètre introduit par Marburger [4], définit la puissance au-dessus de laquelle l'autofocalisation surpasse la diffraction<sup>3</sup> :

$$P_{cr} = 3.77 \frac{\lambda_0^2}{8\pi n_0 n_2} \quad (1.4)$$

Un autre régime, appelé multi-filamentation, est atteint lorsque cette valeur est très fortement dépassée [5]. Notons que le code de propagation que nous allons développer dans la suite de ce Chapitre n'est pas adapté pour le traitement d'un tel problème, comme nous le verrons plus loin.

L'autofocalisation du faisceau laser pourrait le mener à s'effondrer sur lui-même en une singularité [4, 6]. Bien évidemment, ce cas extrême n'arrive jamais : en effet, durant l'autofocalisation du faisceau, des effets vont en fait empêcher l'effondrement du faisceau.

3. La formule (1.4), et en particulier le facteur 3.77 est valable pour des faisceaux gaussiens.

---

## 1.2 Défocalisation

- *l'ionisation* : en même temps que le faisceau s'autofocalise, son éclairement augmente (et accroît donc au passage l'effet de l'autofocalisation) jusqu'à provoquer l'ionisation du milieu, cette-dernière étant fortement non-linéaire vis-à-vis de l'éclairement. Dans la plupart des cas, c'est ce mécanisme d'ionisation qui est invoqué pour expliquer la défocalisation du faisceau. En effet, les électrons libres provenant de l'ionisation apportent pour leur part une contribution négative à l'indice de réfraction, selon :

$$n_{\text{ionisation}} = -\frac{\rho(r, t)}{2\rho_c} \quad (1.5)$$

où  $\rho$  est la densité d'électrons libres, et  $\rho_c$  la densité critique de plasma à partir de laquelle un faisceau laser à la fréquence  $\omega_0 = 2\pi c / \lambda_0$  ne se propage plus, obtenue grâce au modèle de Drude [7, 8] :

$$\rho_c = \frac{\epsilon_0 m_e \omega_0^2}{e^2} \quad (1.6)$$

où  $m_e$  (respectivement  $e$ ) indique la masse (respectivement la charge électrique) de l'électron.

- *les non-linéarités d'ordres supérieurs* : la principale contribution à l'effet de défocalisation, selon les cas, ne proviendrait pas de l'ionisation mais des termes Kerr d'ordres élevés<sup>4</sup>  $n_{\text{HOKE}}$  intervenant dans le développement de l'indice de réfraction  $n$  :

$$n = n_0 + n_2 I(r, t) + n_{\text{HOKE}} \quad (1.7)$$

$$n_{\text{HOKE}} = \sum_{q>2} n_{2q} I(r, t)^q \quad (1.8)$$

Certains de ces termes étant négatifs, ils peuvent alors endosser le rôle d'effet défocalisant si l'éclairement est assez élevé. Il y a quelques années, au moyen d'une technique de mesure de l'indice de réfraction résolue en temps, l'inversion de l'indice non-linéaire à hauts éclairements était mise en évidence expérimentalement pour la première fois [9], donnant accès à un régime de filamentation indépendant de l'ionisation [10].

- *les effets vectoriels* : lorsque le faisceau est fortement focalisé, des effets vectoriels [11] peuvent prédominer. En effet, dans ce cas, la composante longitudinale du champ électrique peut devenir importante. On s'attend alors à ce que ces effets s'expriment lorsque la valeur de  $\lambda_0$  est proche de celle de la taille du faisceau  $\sigma_0$  [cf équation (1.1)], c'est-à-dire préférentiellement dans le domaine infrarouge.

---

4. En anglais, les H.O.K.E. pour **H**igher-**O**rdre **K**err **E**ffect.

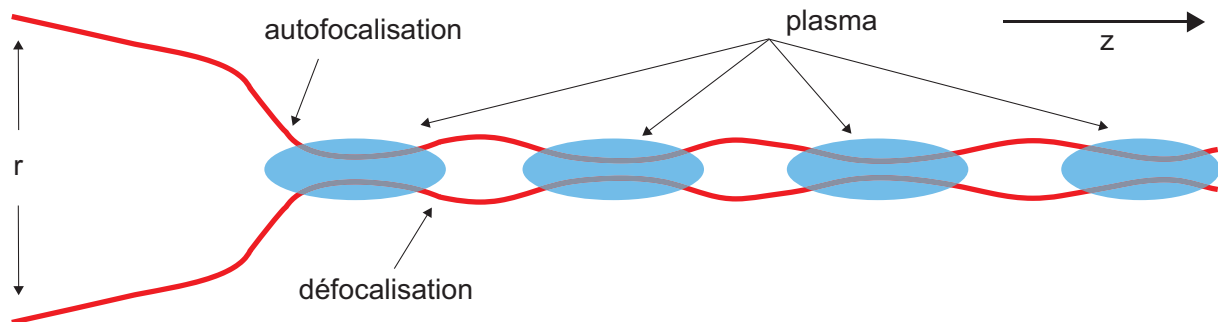


FIGURE 1.2: Représentation schématique de la répétition focalisation/défocalisation, responsable du phénomène de filamentation. La longueur de filamentation est définie par la distance couverte par ce processus cyclique.

L'équilibre dynamique qui s'établit entre effets focalisant (effet Kerr) et défocalisant (ionisation et/ou H.O.K.E.), représenté schématiquement sur la figure 1.2, constitue le paradigme du processus de filamentation. Une photo expérimentale d'un filament dans l'argon est par ailleurs représentée sur la figure 1.3 : ce « trait » blanc suivant la direction de propagation du faisceau laser, que l'on voit ici, correspond à la luminescence du plasma créée lorsque le milieu est ionisé.

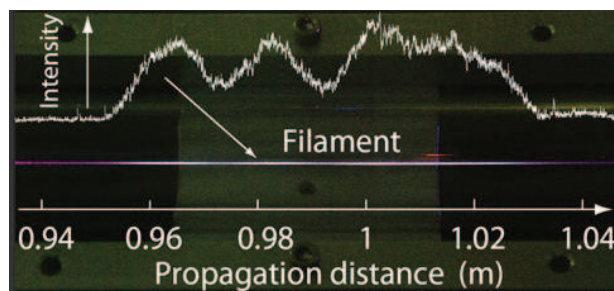


FIGURE 1.3: Photo expérimentale d'un filament.

Abordons désormais la modélisation numérique d'un tel processus. Supporter les résultats expérimentaux en parvenant également à traiter le problème au moyen de simulations numériques est en effet d'un grand avantage, que ce soit pour la compréhension des résultats, leur interprétation ou encore pour démontrer la pertinence (ou les limites) de la théorie utilisée.

---

## 2 Modèle de propagation : des équations de Maxwell à l'équation de propagation

Dans le cadre de l'approximation dipolaire, nous permettant de négliger les termes de polarisation (quadrupolaire, octopolaire, etc), les champs électriques  $\mathbf{E}$  et magnétique  $\mathbf{B}$  sont respectivement reliés au champ d'induction électrique  $\mathbf{D}$  et au champ d'induction magnétique  $\mathbf{H}$  par les relations suivantes :

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (1.9)$$

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H} + \mathbf{M} \quad (1.10)$$

où  $\mu_0$  est la perméabilité diélectrique du vide, liée à  $c$  par la relation  $\epsilon_0 \mu_0 c^2 = 1$ . Tous les champs dépendent des variables d'espace  $\mathbf{r} \equiv (x, y)$ , de temps  $t$  et de la variable de propagation  $z$ . Alors que l'aimantation  $\mathbf{M}$  sera considérée nulle par la suite, puisque nous ne considérerons que des matériaux non-magnétiques, la polarisation  $\mathbf{P}$  quant à elle, revêtira une importance particulière de par son statut de terme source de l'équation de propagation.

### 2.1 Equations de Maxwell et équation d'onde

Commençons par rappeler les équations de Maxwell, gouvernant la distribution spatio-temporelle des champs électrique et magnétique<sup>5</sup> :

$$\text{Maxwell-Gauss :} \quad \nabla \cdot \mathbf{D} = \rho_{\text{tot}} \quad (1.11)$$

$$\text{Maxwell-Faraday :} \quad \nabla \wedge \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (1.12)$$

$$\text{Maxwell-Flux :} \quad \nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (1.13)$$

$$\text{Maxwell-Ampère :} \quad \nabla \wedge \mathbf{B} = \mu_0 \left( \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \right) \quad (1.14)$$

où  $\rho_{\text{tot}}$  est la densité de charges locale du milieu et  $\mathbf{J}$  est la densité de courant. En utilisant ensuite la méthode du double rotationnel, l'on peut calculer l'équation de propagation associée au champ  $\mathbf{E}$ , comme suit :

$$\begin{aligned} \nabla \wedge (\nabla \wedge \mathbf{E}) &= \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) - \Delta \mathbf{E} \\ \nabla \wedge (\nabla \wedge \mathbf{E}) &= -\frac{\partial}{\partial t} (\nabla \wedge \mathbf{B}) = -\frac{\partial}{\partial t} \left( \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \right) \\ \Rightarrow \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) - \Delta \mathbf{E} &= -\frac{\partial}{\partial t} \left( \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \right) \end{aligned} \quad (1.15)$$

---

5.  $\nabla \cdot \mathbf{f}$  (respectivement  $\nabla \wedge \mathbf{f}$ ) correspond à la divergence (respectivement au rotationnel) de  $\mathbf{f}$ .

En injectant (1.9) dans l'équation obtenue ci-avant, on obtient :

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E}) + \mu_0 \left( \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} + \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \right) \quad (1.16)$$

Si l'on calcule le terme  $\nabla (\nabla \cdot \mathbf{E})$  dans le cas d'un champ gaussien, on peut montrer qu'il varie selon  $1/\sigma_0^2$ . D'un autre côté, on peut montrer que le terme  $\Delta \mathbf{E}$ , lui, évolue suivant  $1/\lambda_0^2$ . Le premier terme peut alors être considéré comme négligeable aussi longtemps que la taille du faisceau demeure très grande devant la longueur d'onde centrale de l'impulsion (en d'autres termes : aussi longtemps que la composante longitudinale du champ reste négligeable, ce qui est généralement acceptable). L'équation (1.16) devient alors :

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \left( \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} + \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \right) \quad (1.17)$$

Considérant un champ électrique polarisé linéairement et de manière transverse à la direction de propagation  $z$ , l'équation vectorielle (1.17) est réduite à l'équation scalaire suivante :

**Equation d'onde scalaire**

$$\Delta E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \left( \frac{\partial J}{\partial t} + \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \right)$$

(1.18)

Plaçons nous désormais en coordonnées cylindriques  $(r, \theta, z)$ , dans lesquelles le laplacien d'une fonction scalaire  $g$  a pour expression :

$$\Delta g = \frac{\partial^2 g}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial g}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 g}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2 g}{\partial z^2} \quad (1.19)$$

Supposons maintenant qu'il existe pour notre problème une symétrie cylindrique autour de l'axe de propagation  $z$ . Dans ce cas, l'équation (1.19) devient indépendante par rapport à  $\theta$ , et l'expression du laplacien se réduit alors à :

$$\Delta g = \Delta_{\perp} g + \frac{\partial^2 g}{\partial z^2} \quad (1.20)$$

avec  $\Delta_{\perp}$  le laplacien transverse, d'expression :

$$\Delta_{\perp} g = \frac{\partial^2 g}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial g}{\partial r} \quad (1.21)$$

Par la suite, il sera commode de décomposer le champ électrique en une superposition d'ondes de Bessel monochromatiques :

$$E(r, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{\infty} k_{\perp} J_0(k_{\perp} r) \tilde{E}(k_{\perp}, \omega) e^{-i\omega_0 t} dk_{\perp} d\omega \quad (1.22)$$

---

où  $\tilde{E}(k_{\perp}, \omega)$  correspond à la transformée de Fourier (domaine temporel) **et** de Hankel (domaine spatial) du champ électrique  $E(r, t)$ ,  $k_{\perp}$  étant la variable réciproque à  $r$  et correspondant à la composante transverse du vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ , et où  $J_0$  est la fonction de Bessel d'ordre zéro, solution de l'équation :

$$x^2 \frac{\partial^2 J_0(x)}{\partial x^2} + x \frac{\partial J_0(x)}{\partial x} + x^2 J_0(x) = 0 \quad (1.23)$$

De l'équation précédente et à l'aide de l'équation (1.21), on peut montrer au moyen d'un simple changement de variables que  $\Delta_{\perp} J_0(k_{\perp} r) = -k_{\perp}^2 J_0(k_{\perp} r)$ . Ainsi, dans le cas de notre problème à symétrie cylindrique, la fonction  $J_0(k_{\perp} r)$  est une fonction propre du laplacien scalaire orthogonal  $\Delta_{\perp}$ , de valeur propre  $-k_{\perp}^2$ . Le fait que les faisceaux dits de Bessel demeurent insensibles à la diffraction au cours de leur propagation [12, 13] est une conséquence de ceci. En effet, l'opérateur de diffraction laisse la fonction de Bessel inchangée, à une phase près.

Maintenant l'équation de propagation établie, discutons de comment les termes sources de celle-ci, que sont le vecteur densité de courant  $\mathbf{J}$  et le vecteur polarisation  $\mathbf{P}$ , sont habituellement exprimés. Remarquons au passage que ces termes proviennent tous deux du membre de droite de l'équation de Maxwell-Ampère, le premier correspondant à la densité de courant de conduction, tandis que le deuxième concerne la densité de courant de déplacement. La prépondérance de l'un sur l'autre permet par ailleurs de considérer que le milieu étudié est soit un bon diélectrique soit un bon conducteur.

Cette séparation en deux termes distincts est en réalité purement arbitraire : seule compte l'accélération des charges, qu'elles soient liées ou libres. Ainsi, ils pourraient être réunis sous le seul terme de densité de courant totale. Leur séparation est en fait historique : Maxwell, lorsqu'il synthétisa les différentes lois découvertes par ses prédécesseurs, ajouta en effet notamment le terme de courant de déplacement au théorème d'Ampère.

## 2.2 Premier terme source, la polarisation

Dans la totalité de ce manuscrit, le processus d'auto-guidage sera envisagé uniquement dans des gaz rares, en l'occurrence l'argon et le krypton. Outre le fait qu'ils sont transparents, condition sine qua non pour facilement mener des expériences, ils sont également relativement facilement modélisables numériquement, comme nous allons le voir plus loin dans ce Chapitre. De plus, les gaz rares possèdent un potentiel d'ionisation très élevé, du fait que toutes leurs couches électroniques sont remplies, les rendant ainsi particulièrement stables. Au moment de considérer le transport d'éclairements de l'ordre de grandeur de ceux mis en jeu lors de la filamentation, ceci constitue leur avantage majeur. Pour de tels gaz, aucun dipôle permanent n'existe.

---

La polarisation  $P$  correspond alors à la séparation des barycentres de charges liées positives et négatives. Du fait de leurs masses relatives, les noyaux sont considérés comme immobiles vis-à-vis des électrons, et la polarisation exprime ainsi une quantité proportionnelle à la position du nuage électronique, lié à l'atome par l'attraction coulombienne, par rapport au noyau.

Pour des champs électromagnétiques relativement faibles par rapport au champ coulombien, la position du nuage électronique suit en bonne approximation une loi linéaire en champ, c'est-à-dire que les charges peuvent être considérées comme des oscillateurs harmoniques. Cependant, la position du nuage électronique dévie fortement de sa position d'équilibre pour de fortes valeurs de champ électrique : l'anharmonicité de la réponse optique doit être prise en compte. Observable primordiale pour rendre compte de la réponse optique du milieu, elle est habituellement décrite dans le cadre de l'approximation du champ faible, qui permet d'exprimer la polarisation en termes perturbatifs, comme nous le verrons plus loin. Cette écriture n'est donc valide que si le champ électrique extérieur ne perturbe pas trop le système. La polarisation peut ainsi s'écrire comme la somme d'une contribution linéaire  $P_L$  et d'une contribution non-linéaire  $P_{NL}$  :

$$P = P_L + P_{NL} \quad (1.24)$$

Signalons que l'origine de la polarisation est, pour le cas considéré ici (i.e., les gaz rares), purement électronique, à la différence des molécules, pour lesquelles il faudrait considérer des contributions rotationnelle et vibrationnelle.

Pour les besoins des différentes études menées lors de cette thèse, nous développons ici deux cas de figures quant au traitement de la polarisation : celui habituellement utilisé, plus simple car considérant la susceptibilité non-linéaire comme indépendante de la fréquence ; le deuxième, plus compliqué car tenant compte d'une dépendance vis-à-vis de la fréquence, que nous devons utiliser au moment de traiter de la filamentation résonante.

Il est par ailleurs plus aisé de mener les calculs dans le domaine réciproque (fréquences) que dans le domaine temporel. Notamment dans celui-ci, l'équivalent d'une dérivée dans le domaine temporel n'est rien d'autre qu'une multiplication, plus facile à traiter. La définition de  $\tilde{P}(r, \omega)$ , la transformée de Fourier de  $P(r, t)$ , est :

$$\tilde{P}(r, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} P(r, t) e^{i\omega t} dt \quad (1.25)$$

La polarisation linéaire, exprimée dans le domaine des fréquences, est alors [14] :

$$\tilde{P}_L(r, \omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \tilde{E}(r, \omega) \quad (1.26)$$

où  $\chi^{(1)}$  est le terme du premier ordre de la susceptibilité, relié à l'indice de réfraction  $n$  du milieu par la relation suivante :

$$n(\omega) = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)} \quad (1.27)$$


---

lui-même relié au module du vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  :

$$k(\omega) = \frac{n(\omega) \omega}{c} \quad (1.28)$$

La polarisation non-linéaire, quant à elle, correspond à la somme des termes non-linéaires du développement de Taylor de la polarisation vis-à-vis du champ. Les gaz rares, monoatomiques, étant des milieux centro-symétriques, les termes d'ordres pairs s'annulent :

$$\tilde{P}_{\text{NL}}(r, \omega) = \sum_{q=1}^{\infty} \tilde{P}^{(2q+1)}(r, \omega) \quad (1.29)$$

### 2.2.1 Cas général

En régime perturbatif, la polarisation non-linéaire (1.29) peut être décrite par un développement de Taylor du champ électrique [14] :

$$P_{\text{NL}}(t) = \epsilon_0 \sum_{q=1}^{\infty} \int \dots \int R_{2q+1}(t_1, \dots, t_{2q+1}) \prod_{m=1}^{2q+1} E(t - t_m) dt_1 \dots dt_n \quad (1.30)$$

où  $R_{2q+1}(t_1, \dots, t_{2q+1})$  est la fonction réponse d'ordre  $2q + 1$  du milieu. Pour des raisons de causalité, cette fonction est nulle pour chaque temps "négatif". Dans le but de simplifier les calculs, contentons-nous de traiter seulement le troisième ordre de la polarisation, i.e. de dire que  $P_{\text{NL}} \simeq P^{(3)}$  :

$$\tilde{P}_{\text{NL}}(\omega) = \epsilon_0 \iiint R(t_1, t_2, t_3) E(t - t_1) E(t - t_2) E(t - t_3) e^{i\omega t} dt dt_1 dt_2 dt_3 \quad (1.31)$$

En passant par la transformée de Fourier du champ électrique, on obtient :

$$\tilde{P}_{\text{NL}}(\omega) = \epsilon_0 \iiint \iiint R(t_1, t_2, t_3) \tilde{E}(\omega_1) \tilde{E}(\omega_2) \tilde{E}(\omega_3) e^{-i[\omega_1(t-t_1) + \omega_2(t-t_2) + \omega_3(t-t_3)]} e^{i\omega t} d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 dt dt_1 dt_2 dt_3 \quad (1.32)$$

On définit alors :

$$\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = \iiint R(t_1, t_2, t_3) e^{i(\omega_1 t_1 + \omega_2 t_2 + \omega_3 t_3)} dt_1 dt_2 dt_3 \quad (1.33)$$

En remarquant ensuite que l'on peut faire apparaître la distribution de Dirac :

$$\delta(\omega - \omega_1 - \omega_2 - \omega_3) = \int e^{-i(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)t} dt \quad (1.34)$$

qui assure à cette occasion la conservation de l'énergie durant les processus de mélange de fréquences, on arrive à :

$$\tilde{P}_{\text{NL}}(\omega) = \epsilon_0 \iiint \chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) \tilde{E}(\omega_1) \tilde{E}(\omega_2) \tilde{E}(\omega_3) \delta[\omega - (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3)] d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 \quad (1.35)$$

---

que l'on peut simplifier comme suit :

$$\tilde{P}_{\text{NL}}(\omega) = \epsilon_0 \iint \chi^{(3)}[\omega_1, \omega_2, \omega - (\omega_1 + \omega_2)] \tilde{E}(\omega_1) \tilde{E}(\omega_2) \tilde{E}[\omega - (\omega_1 + \omega_2)] d\omega_1 d\omega_2 \quad (1.36)$$

En supposant désormais que la réponse du milieu est instantanée (par rapport à la durée de l'impulsion), la fonction réponse  $R$  peut être ré-écrite comme une fonction Dirac. Cela a pour conséquence que  $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3)$  est invariant en fréquence. Ainsi, et en considérant à nouveau tous les termes non-linéaires d'ordres impairs, la polarisation non-linéaire peut finalement être calculée suivant :

$$P_{\text{NL}}(r, t) = \epsilon_0 \sum_{q \geq 1} \chi^{(2q+1)} E^{2q+1}(r, t) \quad (1.37)$$

Cette écriture de la polarisation est celle qui sera utilisée dans la suite de ce Chapitre, mais le prochain paragraphe est dédié à la façon dont on peut écrire la polarisation dans le cas particulier où la longueur d'onde du champ électrique est proche d'une résonance du système atomique. Cette écriture sera utilisée lors d'une étude du Chapitre 4.

## 2.2.2 Cas où le champ électrique est proche d'une résonance du système atomique

Dans ce cas, considérer la susceptibilité non-linéaire comme indépendante de la fréquence est alors incorrect. L'une des recherches que nous mènerons au cours de cette thèse concerne ce cas : plus précisément, nous étudierons l'interaction d'un champ fondamental centré à  $\lambda_0 = 400$  nm, accompagné de sa troisième harmonique, dans le krypton. Nous nous trouverons alors proche d'une résonance à deux couleurs de ce système atomique.

Pour les besoins de notre étude, nous chercherons alors à reproduire la forme temporelle des parties réelle et imaginaire de la polarisation non-linéaire, dans le but d'en effectuer les ajustements. La solution alors envisagée sera de décrire la polarisation non-linéaire en une série de Taylor vis-à-vis de la fréquence, exprimant le fait que la réponse du milieu n'est pas instantanée. Cette technique a été appliquée [15] dans le cas où le processus d'auto-modulation de phase prend place à proximité d'une résonance à deux photons.

Ainsi, dans le cas qui nous concerne, la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre  $\chi^{(3)}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3; \omega_1, \omega_2, \omega_3)$  peut, à titre d'exemple, être développée au voisinage de  $\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 = 3\omega_0$ , correspondant alors à la génération de troisième harmonique, comme :

$$\begin{aligned} \chi_{\omega_1, \omega_2, \omega_3}^{(3)} &\simeq \chi_{\omega_0, \omega_0, \omega_0}^{(3)} + \sum_{j=1}^3 \frac{\partial \chi_{\omega_0, \omega_0, \omega_0}^{(3)}(\omega_j - \omega_0)}{\partial \omega_j} + \frac{1}{2} \sum_{j=1}^3 \frac{\partial^2 \chi_{\omega_0, \omega_0, \omega_0}^{(3)}}{\partial \omega_j^2} (\omega_j - \omega_0)^2 \\ &+ \sum_{j \neq k} \frac{\partial^2 \chi_{\omega_0, \omega_0, \omega_0}^{(3)}}{\partial \omega_j \partial \omega_k} (\omega_j - \omega_0)(\omega_k - \omega_0) + \dots \end{aligned} \quad (1.38)$$


---

---

En supposant ensuite que toutes les dérivées partielles de même ordre sont égales, on obtient :

$$\chi_{\omega_1, \omega_2, \omega_3}^{(3)} \simeq \sum_k \frac{\chi_k^{(3)}}{k!} (\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 - 3\omega_0)^k \quad (1.39)$$

avec :

$$\chi_k^{(3)} = \frac{\partial^k \chi_{\omega_0, \omega_0, \omega_0}^{(3)}}{\partial \omega^k} \quad (1.40)$$

On écrit alors le champ électrique  $E$  (réel) sous la forme  $E = (1/2)(\mathcal{A}_0 + \mathcal{A}_0^*)$ , où  $\mathcal{A}_0$  est l'enveloppe complexe du champ fondamental, exprimée en V/m. En remplaçant  $E$  par sa formule dans l'équation (1.36) et au prix de longs calculs non détaillés ici, on obtient pour le développement de Taylor du troisième ordre appliqué à l'enveloppe temporelle de la polarisation non-linéaire du troisième ordre, responsable de la génération de troisième harmonique :

$$\mathcal{P}_{\text{NL, THG}}^{(3)}(t) = \frac{\epsilon_0}{8} \sum_{k=0} \frac{i^k}{k!} \chi_k^{(3)} \frac{\partial^k \mathcal{A}_0(t)^3}{\partial t^k} \quad (1.41)$$

Chaque terme du développement modifie ainsi la forme temporelle de la polarisation non-linéaire d'une manière différente des autres. Ainsi, le  $k$ -ième coefficient de Taylor est responsable d'une contribution à la polarisation non-linéaire, dont la forme temporelle suit la  $k$ -ième dérivée temporelle du cube de l'enveloppe.

Comme nous le verrons au moment où nous traiterons l'étude en question, la différence dans la dépendance temporelle de chaque terme du développement nous permettra de remonter à leurs contributions relatives à la polarisation. Notons également que les coefficients  $\chi_k^{(3)}$  sont, à priori, des quantités complexes. Bien sur, la génération de troisième harmonique ne sera pas le seul processus mis en jeu.

## 2.3 Second terme source, la densité de courant

L'interaction lumière-matière qui se produit lorsque le faisceau ultra-intense se propage dans le milieu gazeux résulte potentiellement en l'arrachement d'électrons de leur ion parent, participant par la suite à la défocalisation du faisceau, de la manière que nous avons vu au cours de la première partie de ce Chapitre. Plusieurs façons d'ioniser un atome peuvent être identifiées.

### 2.3.1 Ionisation

Tout d'abord, abordons les processus d'ionisation purement optiques. Plusieurs régimes existent et, de manière assez simple, peuvent être associés à des valeurs d'éclairements typiques. Ainsi, par valeurs croissantes d'éclairements, on a :

□ *l'ionisation multiphotonique* (ou M.P.I., pour **M**ultiphoton **I**onization) : elle est dominante pour des valeurs modestes d'éclairements ou pour de très courtes longueurs d'onde, et consiste en l'absorption non-linéaire de  $K$  photons [fig. 1.5 (a)].  $K$  est défini comme le plus petit nombre entier supérieur à  $U_i/\hbar\omega_0$ , avec  $U_i$  le potentiel d'ionisation du gaz considéré et  $\hbar = h/2\pi$ , où  $h$  est la constante de Planck.

Ceci ne veut pas dire que des chemins d'ionisation mettant en jeu plus de  $K$  photons n'existent pas : on parle alors d'ionisation au-dessus du seuil (A.T.I. en anglais, pour **A**bove-**T**hreshold **I**onization) [16]. Dans ce cas, on représente ce qu'on appelle des pics ATI [cf figure 1.4, représentant la probabilité d'ionisation, obtenue par un calcul *ab initio*, en fonction de l'énergie fournie, pour une impulsion gaussienne à  $\lambda_0 = 800$  nm, de durée 27.5 fs et de  $5 \text{ TW.cm}^{-2}$  d'éclairement pic]. Ceux-ci traduisent justement cette possibilité d'ioniser le milieu en utilisant plus de photons que nécessaire au franchissement du seuil d'ionisation, défini par  $U_i$ . On observe ainsi que le premier pic est décalé par rapport au point d'énergie nulle, et se situe en fait à la différence  $K\hbar\omega_0 - U_i$ , traduisant le fait que l'absorption d'énergie par le système se fait par valeurs entières de photons. De plus, chaque pic est séparé du précédent et du suivant par la valeur de l'énergie d'un photon.

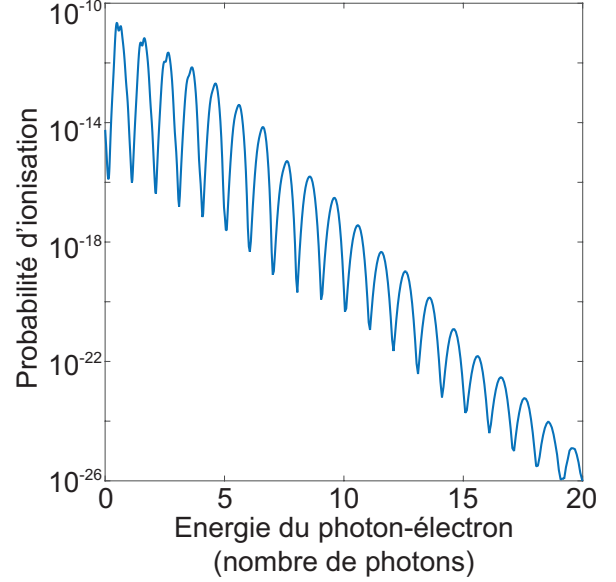


FIGURE 1.4: Probabilité d'ionisation en fonction de l'énergie fournie par le champ électrique.

□ *l'ionisation par effet tunnel* : lorsque le champ électrique commence à modifier significativement le potentiel coulombien produit par l'atome, la probabilité pour l'électron lié de passer à travers la barrière par effet tunnel devient non-négligeable [fig. 1.5 (b)].

A ce propos, lors de ses travaux sur l'ionisation due à une onde électromagnétique intense [17], Keldysh définit le paramètre adiabatique  $\gamma$  permettant d'identifier lequel des deux précédents régimes d'ionisation prédomine. Il s'écrit :

$$\gamma = \omega_0 \frac{\sqrt{2m_e U_i}}{|eF|} \quad (1.42)$$

où  $F$  est l'amplitude crête du champ électrique.  $\gamma$  est en fait la racine carrée du rapport du potentiel d'ionisation  $U_i$  sur l'énergie pondéromotrice de l'électron. La valeur de ce para-

mètre dit *de Keldysh* doit être lue de la manière suivante : si  $\gamma \ll 1$  (par exemple, lorsque la valeur de  $F$  est élevée), le régime d'ionisation tunnel est prépondérant ; en revanche, si  $\gamma \gg 1$  (avec  $F$  faible par exemple), le régime multiphotonique est celui qui domine. Toutefois,  $\gamma$  ne dépend pas seulement de l'éclairement du champ électrique, mais également de sa pulsation  $\omega_0$  : plus celle-ci sera élevée, plus le régime sera multiphotonique. Ceci peut être compris en se représentant le potentiel résultant du couplage entre le champ électrique et la barrière de Coulomb osciller, au rythme des cycles optiques du champ électrique. Par conséquent, si la pulsation de ce dernier est trop importante, l'électron n'a pas le temps de s'échapper par effet tunnel que la barrière est déjà remontée. C'est pourquoi le régime d'ionisation tunnel est plus difficile à atteindre avec un champ ultraviolet qu'avec un champ visible ou infrarouge. Ainsi, pour donner un ordre de grandeur, en appliquant la formule (1.42) à l'argon, on obtient  $\gamma = 1$  pour un éclairement  $I \simeq 130 \text{ TW.cm}^{-2}$  à  $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$ , et pour  $I \simeq 930 \text{ TW.cm}^{-2}$  à  $\lambda_0 = 300 \text{ nm}$ .

- l'ionisation « par suppression de la barrière » (ou B.S.I. pour **B**arrier **S**upression **I**onization) : le champ électrique est cette fois-ci tellement intense qu'il abaisse la barrière de Coulomb, libérant de ce fait l'électron [fig. 1.5 (c)].

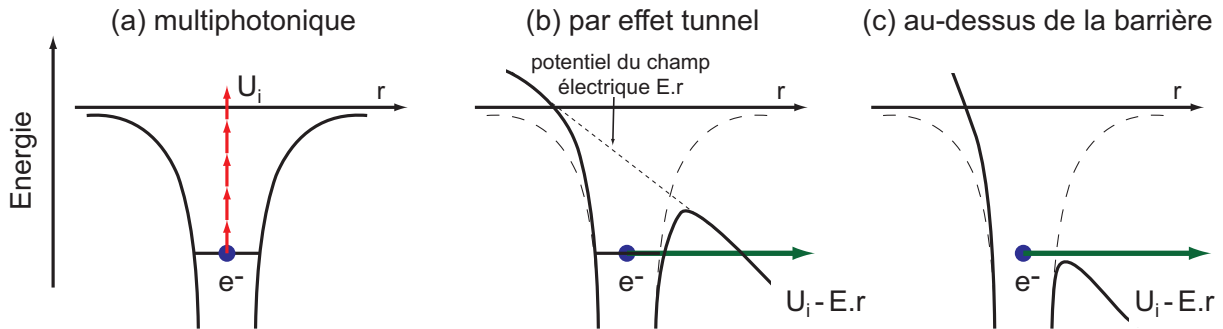


FIGURE 1.5: Diagrammes schématiques des différents régimes d'ionisation.

A la suite de l'étude de Keldysh, d'autres travaux ont été menés dans le but d'établir une formule capable de calculer approximativement la probabilité d'ionisation (multiphotonique et tunnel) par unité de temps  $W(I)$  d'atomes plongé dans un champ électrique intense [18, 19]. Ils ont abouti à la formule dénommée PPT<sup>6</sup>, modèle encore aujourd'hui utilisé dans les simulations numériques et dont le détail est donné en [Annexe B](#).

6. Pour Perelomov, Popov et Terent'ev, du nom de ses auteurs.

Une vingtaine d'années plus tard, la théorie ADK<sup>7</sup> [20] aboutit à une meilleure évaluation de l'ionisation d'une part par effet tunnel, et d'autre part appliquée à des molécules. En effet, PPT amenait dans ce dernier cas à des résultats en désaccord avec les observations.

Les théories de Keldysh, PPT et ADK concernent uniquement des champs monochromatiques. Cependant, rappelons que l'un des axes de développement de cette thèse est la remise en question de l'évaluation de cette probabilité d'ionisation, lorsque le champ fondamental est accompagné d'une ou plusieurs de ses harmoniques. Notons à ce sujet que, déjà à l'époque, deux des trois auteurs de la théorie PPT s'étaient intéressés à cette question [21].

Enfin, évoquons une dernière façon d'ioniser un atome, qui sera prise en compte dans nos équations : l'ionisation par avalanche [22]. Au contraire des mécanismes d'ionisation précédents, celui-ci est un processus collisionnel.

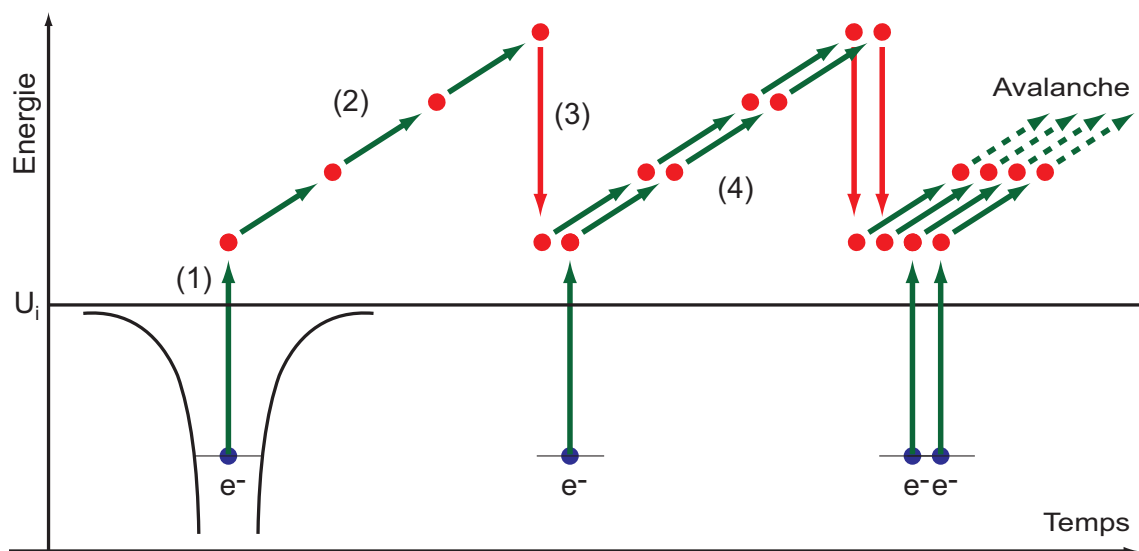


FIGURE 1.6: Etapes du processus d'ionisation par avalanche, de manière chronologique.

Ce processus se déroule en plusieurs étapes, schématisées par la figure 1.6 :

- *étape* (1) : un atome est ionisé par le champ électrique, et un électron est alors éjecté,
- *étape* (2) : par Bremsstrahlung inverse, l'électron libre est accéléré par absorption de photon(s),
- *étape* (3) : cet électron accéléré a une certaine chance de rentrer en collision avec un autre atome et d'ioniser ce dernier, perdant au passage une partie de son énergie cinétique,

7. Pour Ammosov, Delone et Krainov, du nom de ses auteurs.

- *étape (4)* : des électrons sont libérés en cascade, un électron libre en entraînant un autre et ainsi de suite, ce qui donne son nom au processus.

### 2.3.2 Densité de courant

Lorsque des atomes sont ionisés, les électrons libérés sont animés d'une vitesse  $\mathbf{v}_e$  et induisent une densité de courant  $\mathbf{J} = e\rho\mathbf{v}_e$ . Pour évaluer cette dernière, nous aurons recours à l'équation de Navier-Stokes, qui n'exprime rien de plus que « somme des forces = masse  $\times$  accélération » dans le cas de fluides. Appliquée au cas des électrons libres, associant par la même leur mouvement aux forces qui s'exercent sur eux, on obtient [23, 24] :

$$\frac{\partial \mathbf{v}_e}{\partial t} + \mathbf{v}_e \cdot \nabla \mathbf{v}_e = \frac{e}{m_e} \left( \mathbf{E} + \frac{\mathbf{v}_e \wedge \mathbf{B}}{c} \right) - \nu_e \mathbf{v}_e - \frac{\mathcal{S} \mathbf{v}_e}{\rho} \quad (1.43)$$

Notons que les deux termes du membre de gauche de l'équation précédente, et pas seulement le premier, proviennent de l'expression de l'accélération des électrons libres<sup>8</sup>.

Dans le membre de droite à présent, le premier terme correspond à la force de Lorentz, le deuxième est le terme de collisions ( $\nu_e$  étant la fréquence effective de collision) et le dernier terme est relié à la source externe de plasma  $\mathcal{S}$ , qui peut s'écrire en suivant le principe de continuité (ou loi de conservation)<sup>9</sup> :

$$\mathcal{S} = \frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{v}_e) \quad (1.44)$$

et est donc proportionnelle à l'évolution de la densité d'électrons libres :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = W(I) (\rho_{\text{at}} - \rho) + \frac{\sigma}{U_i} \rho I - \alpha \rho^2 \quad (1.45)$$

où l'on retrouve la probabilité d'ionisation par unité de temps  $W(I)$ , et où  $\rho_{\text{at}}$  est la densité atomique initiale,  $\alpha$  est le taux de recombinaison,  $\sigma(\omega)$  est la section efficace du Bremsstrahlung inverse, associée au processus d'ionisation par avalanche et définie par :

$$\sigma = \frac{e^2 \tau_c}{\epsilon_0 m_e c (1 + \tau_c^2 \omega_0^2)} \quad (1.46)$$

où  $\tau_c$  est le temps de collision d'un électron avec un atome neutre. Pour sa part, le deuxième terme du membre de droite de l'équation (1.44) correspond au terme de convection.

8. Le deuxième terme du membre de gauche de l'équation (1.43) varie comme le carré de la vitesse, et rend l'équation de Navier-Stokes non-linéaire, lui donnant à ce titre toute sa complexité mathématique (en physique, cette non-linéarité traduit la notion de turbulence). Elle est tellement complexe que sa résolution fait l'objet d'un des sept problèmes du millénaire posés par la fondation Clay, avec à la clé un prix d'un million de dollars pour quiconque parviendra à apporter la preuve que sa solution (en 3D) existe.

9. Cette formule est de la même forme que celle utilisée pour l'équation de la chaleur.

---

En combinant les équations (1.44) et (1.43), on obtient :

$$\frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} + \nu_e \mathbf{J} = \frac{e^2 \rho}{m_e} \mathbf{E} + \Xi \quad (1.47)$$

avec :

$$\Xi = \frac{e}{m_e c} \mathbf{J} \wedge \mathbf{B} - \left[ (\nabla \cdot \mathbf{J}) \frac{\mathbf{J}}{e \rho} + (\mathbf{J} \cdot \nabla) \mathbf{v}_e \right] \quad (1.48)$$

représentant les forces pondéromotrices. Pour des éclaircissements inférieurs à  $10^{15} \text{ W/cm}^2$ ,  $\Xi$  peut être négligé. Par conséquent,  $\tilde{J}$  (dans l'espace des fréquences) vérifie :

$$\tilde{J} = \frac{e^2 (\nu_e + i\omega)}{m_e (\nu_e^2 + \omega^2)} \rho \widetilde{E} \quad (1.49)$$

## 2.4 Etablissement de l'équation de propagation pour un champ complexe

Après avoir développé les expressions des termes sources [et obtenu les équations (1.26) et (1.37) pour la polarisation, et l'équation (1.49) pour la densité de courant] de l'équation de propagation, nous allons désormais pouvoir les réinjecter dans l'équation (1.18), que nous rappelons ici :

$$\Delta E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \left( \frac{\partial J}{\partial t} + \frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \right)$$

### 2.4.1 Obtention de l'équation de propagation pour le champ réel

Le but de cette sous-partie est de transformer l'équation (1.18) en une équation ne contenant plus que des dérivées premières, plus simples à traiter. Pour ce faire, les équivalences suivantes dans le domaine réciproque vont nous être utiles :

$$\frac{\partial}{\partial t} \Leftrightarrow -i\omega \quad (1.50)$$

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} \Leftrightarrow -\omega^2 \quad (1.51)$$

$$\Delta_{\perp} \Leftrightarrow -k_{\perp}^2 \quad (1.52)$$

A celles-ci peuvent être ajoutées les équivalences associées à la transformée de Fourier, que l'on peut effectuer selon  $z$  :

$$\frac{\partial}{\partial z} \Leftrightarrow i k_z \quad (1.53)$$

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} \Leftrightarrow -k_z^2 \quad (1.54)$$

où  $k_z$  est la composante selon  $z$  du vecteur d'onde  $k$ .

En scindant ensuite la polarisation en deux pour faire apparaître ses parties linéaire et non-linéaire, et en rappelant que le laplacien s'exprime selon (1.20), l'équation de propagation (1.18) exprimée dans le domaine réciproque devient alors :

$$\begin{aligned} [-k_{\perp}^2 - k_z^2 + k^2(\omega)] \tilde{E} &= -i\mu_0\omega \tilde{J} - \mu_0\omega^2 \tilde{P}_{\text{NL}} \\ \tilde{E} &= \mu_0\omega \frac{i\tilde{J} + \omega\tilde{P}_{\text{NL}}}{k_{\perp}^2 + k_z^2 - k^2(\omega)} \end{aligned} \quad (1.55)$$

En transformant le dénominateur du membre de droite de la précédente équation par :

$$\frac{1}{k_z^2 + k_{\perp}^2 - k^2(\omega)} = \frac{1}{2\sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2}} \left( \frac{1}{k_z - \sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2}} - \frac{1}{k_z + \sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2}} \right), \quad (1.56)$$

l'on sépare les propagateurs avant et arrière, de manière analogue à la méthode de factorisation proposée par [25]. L'approximation donnant son nom à U.P.P.E. (Unidirectional Pulse Propagation Equation) intervient à cet endroit, puisqu'elle consiste à négliger la composante se propageant vers l'arrière vis-à-vis de celle se propageant vers l'avant, rendant la propagation décrite unidirectionnelle. Le terme ainsi négligé correspond au terme de gauche dans la parenthèse de l'équation (1.56). On peut donc écrire :

$$-\left(k_z + \sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2}\right) \tilde{E}(k_{\perp}, \omega, z) = \mu_0\omega \frac{i\tilde{J} + \omega\tilde{P}_{\text{NL}}}{2\sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2}} \quad (1.57)$$

Par transformée de Fourier inverse sur  $z$  [cf équation (1.53)], on arrive à :

$$-i\frac{\partial \tilde{E}}{\partial z} - \sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2} \tilde{E} = \mu_0\omega \frac{i\tilde{J} + \omega\tilde{P}_{\text{NL}}}{2\sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2}} \quad (1.58)$$

De plus, on peut exprimer  $k_z$  comme suit :

$$k_z = \sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2} \quad (1.59)$$

et ainsi, en faisant quelques arrangements sur (1.58), aboutir à U.P.P.E. :

#### Unidirectional Pulse Propagation Equation

$$\frac{\partial \tilde{E}(k_{\perp}, \omega)}{\partial z} = ik_z \tilde{E}(k_{\perp}, \omega) + \frac{\mu_0\omega}{2k_z} (i\omega\tilde{P}_{\text{NL}} - \tilde{J})$$

(1.60)

Toutes les simulations numériques de propagation présentes dans ce manuscrit découlent de cette équation. On notera également que cette équation est indépendante de la méthode d'évaluation de  $\mathbf{P}$  et  $\mathbf{J}$ , que celle-ci soit faite via la théorie du champ faible ou du champ fort.

---

### 2.4.2 Passage en champ complexe

On définit le vecteur de Poynting  $\Pi$ , de la manière la plus générale par :

$$\Pi = \mathbf{E} \wedge \mathbf{H} \quad (1.61)$$

et pour un milieu non-magnétique :

$$\Pi = \frac{\mathbf{E} \wedge \mathbf{B}}{\mu_0} \quad (1.62)$$

De plus, dans les approximations où la taille du faisceau est grande devant sa longueur d'onde et que son enveloppe varie lentement en fonction de  $z$ , on peut considérer que  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{B}$  sont reliés par :

$$\mathbf{B} = \frac{n}{c} \mathbf{u} \wedge \mathbf{E} \quad (1.63)$$

où  $\mathbf{u}$  est la direction de propagation de l'onde. Ainsi :

$$\begin{aligned} \Pi &= \frac{n}{\mu_0 c} E^2 \\ \Pi &= \epsilon_0 c n E^2 \end{aligned} \quad (1.64)$$

En écrivant le champ électrique (réel) sous la forme  $E = (1/2)(\xi + \xi^*)$ , dont l'unité est alors le V/m, l'équation précédente peut être réécrite de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \Pi &= \epsilon_0 c n \left[ \frac{1}{2} (\xi + \xi^*) \right]^2 \\ \Pi &= \frac{\epsilon_0 c n}{4} (\xi^2 + 2|\xi|^2 + \xi^{*2}) \end{aligned} \quad (1.65)$$

Notons que  $\xi$  ne correspond pas à l'enveloppe, mais bien au champ complexe (i.e., avec la porteuse). On réinjecte le champ électrique sous cette forme dans l'équation (1.60), qui devient ainsi :

$$\frac{\partial \tilde{\xi}}{\partial z} = i k_z \tilde{\xi} + \frac{\mu_0 \omega}{k_z} (i \omega \tilde{P}_{\text{NL}} - \tilde{J}) \quad (1.66)$$

avec :

$$\tilde{J} = \frac{e^2 (v_e + i\omega)}{2m_e (v_e^2 + \omega^2)} \tilde{\rho} \tilde{\xi} \quad (1.67)$$

Le terme de polarisation non-linéaire  $\tilde{P}_{\text{NL}}$ , quant à lui, sera tronqué puisque nous ne tiendrons compte que du terme d'ordre  $q = 1$ , i.e. du terme en  $n_2$ . Plus de détails concernant la définition des indices de réfractions non-linéaires  $n_{2q}$ , dans le cas général où l'on considère également les termes d'ordres  $q > 1$ , sont disponibles en [Annexe C](#). De plus, du point de vue expérimental, la mesure est sensible à la valeur moyenne de  $\langle \Pi \rangle$  (sur un cycle optique) de  $\Pi$ . Ainsi :

$$\langle \Pi \rangle = \frac{1}{2} \epsilon_0 c n |\xi|^2 \quad (1.68)$$


---

Homogène à un éclairage, on écrit  $I = \langle \Pi \rangle$ . On définit alors  $\varepsilon = \sqrt{I}$ , le champ complexe d'unité  $\sqrt{W}/m$ , telle que :

$$\varepsilon = \sqrt{\frac{\epsilon_0 c n}{2}} \xi \quad (1.69)$$

L'équation (1.66) s'écrit alors, en opérant le changement de variable défini par l'équation précédente :

$$\frac{\partial \tilde{\varepsilon}}{\partial z} = i k_z \tilde{\varepsilon} + \frac{\mu_0 \omega}{k_z} \left[ i \omega \epsilon_0 n_2 \left( \widetilde{|\varepsilon|^2} \varepsilon + \frac{\tilde{\varepsilon}^3}{3} \right) - \frac{e^2 (v_e + i \omega)}{2 m_e (v_e^2 + \omega^2)} \tilde{\rho} \varepsilon \right] \quad (1.70)$$

où  $n_2$  est l'indice de réfraction non-linéaire associé à la susceptibilité d'ordre 3, tous deux étant reliés par la formule (1.3). Le terme  $|\varepsilon|^2 \varepsilon$  correspond à l'effet Kerr, tandis que le terme  $\varepsilon^3$  est pour sa part responsable de la génération de troisième harmonique.

Lors des simulations numériques et tant que la composante qui se rétro-propage est négligeable, comme nous l'avons supposé, il est plus pratique de suivre l'impulsion au cours de sa propagation. On va alors utiliser une origine des temps glissante, telle que le temps zéro corresponde au moment où l'impulsion arriverait en  $z$  si elle se propageait à une vitesse constante  $v$ . Ceci est permis grâce au changement de variables suivant :

$$\zeta = z, \quad \tau = t - z/v \quad (1.71)$$

où  $\tau$  représente le retard dans le référentiel de l'impulsion. La vitesse  $v$  peut être choisie arbitrairement, mais un choix pratique est d'opter pour  $v = v_g = 1/k'_0$ , c'est-à-dire à faire coïncider  $v$  avec la vitesse de groupe de l'impulsion. Elle est ainsi obtenue à partir de la dérivée  $k'_0 = (\partial k / \partial \omega)|_{\omega_0}$  de la relation de dispersion dans le milieu  $k = k(\omega)$ , à la fréquence centrale de l'impulsion  $\omega_0$ . Par suite, les dérivées partielles sont :

$$\partial / \partial z = \partial / \partial \zeta - \frac{1}{v_g} \partial / \partial \tau \quad (1.72)$$

$$\partial / \partial t = \partial / \partial \tau \quad (1.73)$$

Ainsi, dans l'espace réciproque :

$$\partial / \partial z = \partial / \partial \zeta + \frac{i \omega}{v_g} \quad (1.74)$$

En réinjectant ensuite l'égalité précédente dans l'équation (1.70), on aboutit à :

$$\frac{\partial \tilde{\varepsilon}}{\partial z} = i \left( k_z - \frac{\omega}{v_g} \right) \tilde{\varepsilon} + \frac{\mu_0 \omega}{k_z} \left[ i \omega n_2 \epsilon_0 \left( \widetilde{|\varepsilon|^2} \varepsilon + \frac{\tilde{\varepsilon}^3}{3} \right) - \frac{e^2 (v_e + i \omega)}{2 m_e (v_e^2 + \omega^2)} \tilde{\rho} \varepsilon \right] \quad (1.75)$$

Enfin, une dernière considération reste à faire. En effet, l'ionisation du milieu induit des pertes optiques au niveau de l'impulsion, qui doivent donc être prises en compte dans l'équation de propagation. On suppose alors que, lors de l'ionisation d'un atome, l'énergie perdue par

le champ est strictement égale à  $U_i$  (ce qui n'est pas forcément correct). Dans ce cas, l'énergie perdue par l'impulsion par unité de volume et de temps est :

$$\frac{d^4 E}{dx dy dz dt} = W(I) \rho_{at} U_i \quad (1.76)$$

Egalement :

$$\frac{d^4 E}{dx dy dz dt} = \frac{d}{dz} I \quad (1.77)$$

De plus, conformément à la définition de  $\varepsilon$  établie précédemment, on a :

$$\frac{dI}{dz} = \frac{d\varepsilon}{dz} \varepsilon^* + \frac{d\varepsilon^*}{dz} \varepsilon \quad (1.78)$$

L'atténuation que subit l'impulsion vaut alors :

$$\frac{d\varepsilon}{dz} = \frac{W(I)}{2I} \rho_{at} U_i \varepsilon \quad (1.79)$$

L'équation générale portant sur le champ complexe s'écrit donc finalement :

**Equation sur le champ complexe**

$$\frac{\partial \tilde{\varepsilon}}{\partial z} = i(k_z - \omega / v_g) \tilde{\varepsilon} + \frac{\mu_0 \omega}{k_z} \left[ i \omega \epsilon_0 n_2 \left( |\tilde{\varepsilon}|^2 \tilde{\varepsilon} + \frac{\tilde{\varepsilon}^3}{3} \right) - \frac{e^2 (v_e + i\omega)}{2m_e (v_e^2 + \omega^2)} \tilde{\rho} \tilde{\varepsilon} \right] - \frac{W(I)}{2I} \rho_{at} U_i \varepsilon$$

(1.80)

## 2.5 Implémentation numérique

Le but de cette partie n'est pas de décrire de manière exhaustive le code de propagation employé ici, mais plutôt d'en donner un aperçu abordant les points importants. Notons tout d'abord que supposer que le problème possède une symétrie cylindrique revient à considérer un problème 2D+1, c'est-à-dire un problème à 2 dimensions (temps  $t$  et rayon  $r$ , dimensions décrivant l'impulsion) + 1 (l'axe de propagation  $z$ ). C'est pour cette raison que ce code est inapte à rendre compte de la dynamique du processus de multi-filamentation, dont nous avons parlé au début de ce Chapitre. En effet, de par son profil aléatoirement distribué dans le plan transverse à la direction de propagation, ce phénomène nécessite d'avoir recours aux trois dimensions spatiales en plus de la dimension temporelle, c'est-à-dire utiliser un modèle 3D+1, pour le simuler.

### 2.5.1 Conditions initiales

Après avoir défini les constantes universelles <sup>10</sup> utiles à la simulation, nous devons en fixer les conditions initiales. En effet, connaissant la valeur du champ électrique  $\varepsilon(r, t, z)$  à la position  $z$ , l'équation (1.80) nous permet d'accéder à sa valeur à la position  $z + dz$  : il faut donc lui fournir un champ de départ. En bonne approximation de la réalité, on le suppose de profil gaussien en éclairnement, de la forme :

$$\varepsilon(r, t, z = 0) = \frac{\varepsilon_0}{\sqrt{1 - 4iC/\sigma_t^2}} e^{-(\sigma_t^2 + 4iC)t^2 / (\sigma_t^4 + 16C^2)} e^{-r^2/\sigma_r^2} e^{i\phi(r)} \quad (1.81)$$

où  $\phi(r)$  définit une phase dépendante de  $r$ ,  $C$  est le paramètre de glissement de fréquence, et avec :

$$\varepsilon_0 = \frac{1}{\sigma_r} \sqrt{\frac{2P_0}{\pi}} \quad (1.82)$$

définissant le champ électrique en  $\sqrt{W} \cdot m^{-1}$ ,  $P_0$  étant la puissance initiale.

Les conditions initiales portent alors sur la description du champ électrique, ainsi que sur les conditions de propagation. On définit alors :

- le pas  $dz$  évoqué ci-avant, définissant de quelle distance progresse la propagation à chaque itération. Plus de détails sont donnés dans le paragraphe sur la résolution numérique d'U.P.P.E..
- la durée  $\Delta t$  de l'impulsion (en éclairnement), définie F.W.H.M. <sup>11</sup>. Pour une gaussienne, on a :

$$\Delta t = \sqrt{2 \ln 2 \left[ \sigma_t^2 + \left( \frac{4C}{\sigma_t} \right)^2 \right]} \quad (1.83)$$

Pour la majorité des simulations présentées dans la suite de ce manuscrit,  $\Delta t$  sera fixé à 100 fs.

- le rayon  $\Delta r$  de l'impulsion, défini F.W.H.M.. Pour une gaussienne, on a  $\sigma_r = \Delta r / \sqrt{2 \ln 2}$ . Pour la majorité des simulations présentées dans la suite de ce manuscrit,  $\Delta r$  sera fixé à 3 mm.
- l'énergie  $\mathcal{E}$ , à laquelle est reliée la puissance initiale  $P_0$  :

$$P_0 = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{\mathcal{E}}{\sigma_t} \quad (1.84)$$

10. Disponibles en [Annexe 2](#).

11. F.W.H.M. pour **F**ull **W**idth at **H**alf **M**aximum, i.e. la largeur totale à mi-hauteur.

---

à comparer avec la valeur de la puissance critique [équation (1.4)] pour savoir si le régime de filamentation est alors atteignable ou non.

- la longueur d'onde centrale de l'impulsion  $\lambda_0$ .
- la distance focale  $f$ . Aussi appelée focalisation externe, une lentille convergente est en effet choisie pour focaliser le faisceau. Si ce-dernier est tout à fait en mesure d'y arriver seul (auto-focalisation, si  $P_0 > P_{cr}$ ), il le fait sur une distance bien plus grande que dans le cas où on l'y aide. En dehors de permettre d'étudier l'influence de la focalisation (en utilisant des lentilles de distances focales différentes) sur le processus de filamentation, faire ce choix permet en fait de s'affranchir de distances de travail trop grandes, pour un gain de place au cours des expériences et de temps de calcul lors des simulations.
- le paramètre de glissement de fréquence  $C$ . Sachant que ce cas ne sera pas étudié dans la suite de ce manuscrit, le champ électrique initial s'écrit alors (avec  $C = 0 \text{ fs}^2$ ) :

$$\mathcal{E}(r, t, z = 0) = \varepsilon_0 e^{-t^2/\sigma_t^2} e^{-r^2/\sigma_r^2} e^{-ik_0 r^2/(2f)} \quad (1.85)$$

L'argument de la troisième exponentielle dans l'équation (1.85), correspondant à la phase  $\phi(r)$  de l'équation (1.81), modélise le fait que le faisceau a traversé la lentille convergente de focale  $f$ . Son expression demeure valide tant que le champ n'est pas trop polychromatique ni trop focalisé. Pour plus de détails concernant le calcul de cet argument, consulter l'Annexe [E](#).

### 2.5.2 Grille numérique

Comme à chaque fois que l'on veut simuler un modèle numériquement, on doit vérifier que la grille (ou boîte) numérique permet d'assurer le déroulement "logique" de la simulation. Ainsi, pour notre algorithme de propagation, nous définissons plusieurs variables :

- $t$ , la fenêtre temporelle sur laquelle est évaluée la simulation : afin d'éviter les potentiels rebonds sur les bords de la boîte, évoqués précédemment, nous fixons l'étendue de celle-ci à 12 fois la durée de l'impulsion. Ayant fixé  $\Delta t = 100 \text{ fs}$ , elle vaut ainsi  $1.2 \text{ ps}$ , c'est-à-dire  $600 \text{ fs}$  de part et d'autre du centre de l'impulsion.
- $N_t$ , le nombre de points de cette fenêtre temporelle. L'algorithme<sup>12</sup> utilisé pour effectuer les transformées de Fourier étant optimisé pour un nombre de points qui est une puissance de deux, nous choisissons dans toutes nos simulations :  $N_t = 2^{13} = 8192$ .
- $r$ , la fenêtre radiale. De la même manière que pour  $t$ , nous nous assurons que l'impulsion ne déborde pas, en fixant  $r = 6.5 \sigma_r$ .

---

12. FFT pour Fast Fourier Transform

- 
- $N_r$  enfin, le nombre de points de la fenêtre radiale. Pour toutes les simulations présentées dans la suite de manuscrit,  $N_r = 2048$ .

### 2.5.3 Résolution numérique de l'équation de propagation

L'équation (1.80) peut s'exprimer de la manière suivante :

$$\frac{\partial \tilde{\varepsilon}}{\partial z} = \mathcal{L} \tilde{\varepsilon} + \widetilde{\mathcal{N}}(\varepsilon) - \widetilde{\mathcal{K}}(\varepsilon) \quad (1.86)$$

où :

$$\mathcal{L} = i(k_z - \omega/v_g) \quad (1.87)$$

correspond à la partie linéaire de l'équation (1.80),  $\widetilde{\mathcal{N}}$  à sa partie non-linéaire :

$$\widetilde{\mathcal{N}}(\varepsilon) = \frac{\mu_0 \omega}{k_z} \left[ i \omega \epsilon_0 n_2 \left( \widetilde{|\varepsilon|^2 \varepsilon} + \frac{\tilde{\varepsilon}^3}{3} \right) - \frac{e^2 (v_e + i\omega)}{2m_e (v_e^2 + \omega^2)} \widetilde{\rho \varepsilon} \right] \quad (1.88)$$

et  $\mathcal{K}$  aux pertes :

$$\mathcal{K}(\varepsilon) = \frac{W(I)}{2I} \rho_{\text{at}} U_i \varepsilon \quad (1.89)$$

Pour résoudre la précédente équation, nous utilisons une technique dite *split-step*. Celle-ci consiste à résoudre séparément les parties linéaire et non-linéaire de l'équation de propagation. Cette séparation est réalisée pour des raisons de simplicité : en effet, la partie linéaire est traitée dans le domaine spectral, tandis que la partie non-linéaire l'est dans le domaine temporel<sup>13</sup>. Ainsi, l'algorithme se présente de la façon suivante :

- passage par transformées de Fourier et de Hankel du champ électrique dans les espaces réciproques :  $\varepsilon(r, t, z) \longrightarrow \tilde{\varepsilon}(k_\perp, \omega, z)$ .

- résolution de la partie linéaire seule, sur la moitié du pas  $dz$  :

$$\frac{\partial \tilde{\varepsilon}(k_\perp, \omega, z)}{\partial z} = \mathcal{L} \tilde{\varepsilon}(k_\perp, \omega, z) \implies \tilde{\varepsilon}(k_\perp, \omega, z + dz/2) = \exp\left(\mathcal{L} \frac{dz}{2}\right) \times \tilde{\varepsilon}(k_\perp, \omega, z) \quad (1.90)$$

- retour dans le domaine spatio-temporel par transformées de Fourier et de Hankel inverses du champ électrique :  $\tilde{\varepsilon}(k_\perp, \omega, z + dz/2) \longrightarrow \varepsilon(r, t, z + dz/2)$ .
- évaluation de la probabilité d'ionisation  $W(I)$  grâce à la formule de P.P.T., puis évaluation de la valeur de  $\rho$  en intégrant l'équation (1.45).

---

13. Le calcul des termes  $|\varepsilon|^2 \varepsilon$  et  $\varepsilon^3/3$  est plus aisé dans le domaine temporel, alors qu'ils feraient intervenir des produits de convolution dans le domaine spectral.

- 
- actualisation du champ électrique en considérant les pertes dues à l'ionisation :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \varepsilon(r, t, z + dz/2)}{\partial z} &= -\mathcal{K}[\varepsilon(r, t, z + dz/2)] \\ \Rightarrow \varepsilon(r, t, z + dz/2) &= \exp\left[-\frac{W(I)}{2I} \rho_{\text{at}} U_i dz\right] \varepsilon(r, t, z + dz/2) \end{aligned} \quad (1.91)$$

- traitement de la partie non-linéaire seule :

$$\frac{\partial \tilde{\varepsilon}(k_{\perp}, \omega, z + dz/2)}{\partial z} = \widetilde{\mathcal{N}}[\varepsilon(r, t, z + dz/2)] \quad (1.92)$$

Cette équation est résolue grâce une méthode *Runge-Kutta* d'ordre 6, qui permet d'approximer de manière itérative les solutions d'équations différentielles. Cette étape de calcul doit toutefois vérifier la condition suivante, qui assure la stabilité de la propagation :

$$\mathcal{N}(\varepsilon) dz \ll 1 \quad (1.93)$$

- passage par transformées de Fourier et de Hankel du champ électrique dans les espaces réciproques :  $\varepsilon(r, t, z + dz/2) \rightarrow \tilde{\varepsilon}(k_{\perp}, \omega, z + dz/2)$ .
- résolution de la partie linéaire seule, sur le reste du pas  $dz$  :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \tilde{\varepsilon}(k_{\perp}, \omega, z + dz/2)}{\partial z} &= \mathcal{L} \tilde{\varepsilon}(k_{\perp}, \omega, z + dz/2) \\ \Rightarrow \tilde{\varepsilon}(k_{\perp}, \omega, z + dz) &= \exp\left(\mathcal{L} \frac{dz}{2}\right) \times \tilde{\varepsilon}(k_{\perp}, \omega, z + dz/2) \end{aligned} \quad (1.94)$$

- retour dans le domaine spatio-temporel par transformées de Fourier et de Hankel inverses du champ électrique :  $\tilde{\varepsilon}(k_{\perp}, \omega, z + dz) \rightarrow \varepsilon(r, t, z + dz)$ .
- calcul des observables physiques d'intérêt pour la filamentation. Consulter l'[annexe A](#) pour plus de détails.
- mise à jour de la valeur du pas  $dz$ . Ce paramètre est en effet constamment réévalué au cours de la simulation : au tout début de la propagation (i.e. lorsque le faisceau n'est pas encore focalisé, et donc que les effets non-linéaires ne s'expriment pas encore), il n'est nul besoin d'être très résolu en  $z$  (ce qui serait inutilement coûteux en temps de calcul) ; à contrario, quand le faisceau commence à être focalisé il devient nécessaire de l'être. Pour nos simulations, nous avons choisi de diminuer la valeur de  $dz$  à mesure que celle de l'éclairement  $I$  augmente, afin de toujours respecter la condition (1.93). Ceci est fait grâce à la formule suivante :

$$dz = dz_{\min} + \frac{dz_0 - dz_{\min}}{2} \times \left[1 - \operatorname{erf}\left(\frac{I - I_{\text{sat}}}{D_I}\right)\right] \quad (1.95)$$


---

Quatre paramètres sont ainsi définis, et la figure 1.7 permet de visualiser leurs différents rôles :

- $dz_0$  correspond au pas  $dz$  en début de simulation, lorsque l'éclairement est faible.
- $dz_{\min}$  est la valeur minimale que pourra prendre le pas  $dz$  au cours de la simulation.
- $I_{\text{sat}}$  fixe la valeur de l'éclairement pour lequel le pas  $dz$  sera égal à la valeur moyenne du pas initial  $dz_0$  et du pas minimal  $dz_{\min}$ . Sa valeur doit être assez petite pour s'assurer que la discrétisation en  $z$  sera assez grande lorsque les effets non-linéaires commenceront à se manifester, mais pas trop non plus pour éviter que le calcul ne prenne du temps inutilement.
- $D_I$  permet de jouer sur la pente de la courbe : plus sa valeur sera grande, plus la pente sera douce. Ici encore, un compromis doit être trouvé, puisqu'une pente trop douce impliquerait que la valeur de  $dz$  change peu sur la plage d'éclairements mis en jeu, tandis qu'une pente trop abrupte ne peut évidemment pas constituer un choix appréciable.

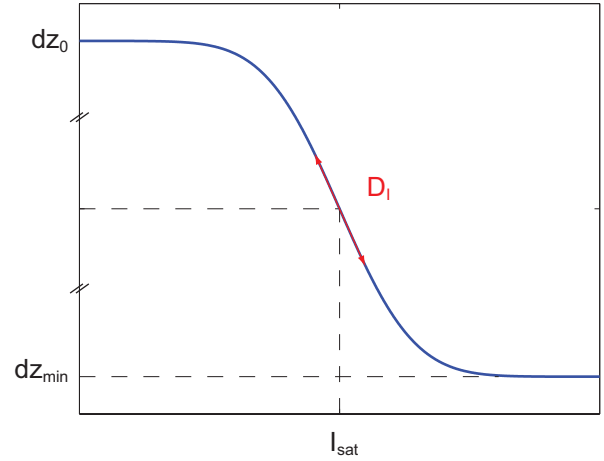


FIGURE 1.7: Evolution du pas  $dz$  en fonction de l'éclairement  $I$  du champ électrique.

L'algorithme répète ainsi ces étapes en boucle et la simulation s'achève lorsque la distance  $L_{\text{max}}$ , fixée par l'utilisateur avant que la propagation ne commence, est atteinte.

---

### 3 Illustration de propagation par simulation numérique

Dans cette partie, nous allons utiliser le code de propagation développé lors de la partie précédente pour illustrer l'exemple de la propagation dans 1 bar d'Argon d'une impulsion, dont les caractéristiques sont indiquées dans le tableau 1.1.

Ceci nous permettra, en plus de discuter des différents phénomènes non-linéaires qui affectent grandement la distribution spatio-temporelle de l'impulsion lorsqu'elle se propage et qu'elle filamente, de préciser les ordres de grandeur des valeurs que prennent les différentes observables physiques reliées au processus de filamentation.

Rappelons que l'autofocalisation par effet Kerr, décrite à la partie 1, et nécessaire pour initier la filamentation, est l'un de ces effets non-linéaires.

Les simulations que nous allons employer pour cela proviennent en fait de l'étude menée sur l'influence sur la filamentation de la troisième harmonique auto-induite, dont nous discuterons au Chapitre 3.

#### 3.1 Ordres de grandeur

Lors de sa propagation, un faisceau laser ultra-court et ultra-intense subit l'autofocalisation par effet Kerr. En un certain point de sa propagation, l'impulsion atteint ensuite un éclairement limite, traduisant le fait que les effets défocalisants ont compensé l'autofocalisation [26]. On parle alors d'« éclairement de clamping ».

Comme on peut le voir sur la figure 1.8(a), représentant l'éclairement en fonction de la distance de propagation pour plusieurs valeurs de distances focales, cet éclairement limite peut atteindre la valeur de plusieurs dizaines de  $\text{TW.cm}^{-2}$  au point de focalisation. Notons également qu'il atteint cette valeur maximale légèrement en avant du lieu de la distance focale correspondante. En effet, en plus de la focalisation externe liée à la lentille convergente, rappelons que l'impulsion subit également une auto-focalisation (due à l'effet Kerr), qui est en fait responsable de ce léger décalage. On remarque également que pour les deux dernières valeurs de focales (i.e.

| Caractéristique | Valeur                                |
|-----------------|---------------------------------------|
| $\lambda_0$     | 800 nm                                |
| $\Delta t$      | 100 fs                                |
| $\Delta r$      | 3 mm                                  |
| $\mathcal{E}$   | 4.6 mJ ( $4.5 \times P_{\text{cr}}$ ) |

TABLE 1.1: Caractéristiques de l'impulsion utilisée pour illustrer numériquement le processus de filamentation. Plusieurs valeurs pour la focale de la lentille sont utilisées.

87.5 cm et 1 m), contrairement à toutes les autres, une deuxième focalisation intervient. Au fur et à mesure que l'éclairement augmente, l'ionisation du milieu dans lequel l'impulsion se propage augmente. La figure 1.8(b) représente la densité d'électrons libres en fonction de la distance de propagation. Cette densité est exprimée en nombre d'électrons libres par  $\text{cm}^3$ , et son ordre de grandeur est de  $10^{16} - 10^{17} \text{ e}^- \cdot \text{cm}^{-3}$ .

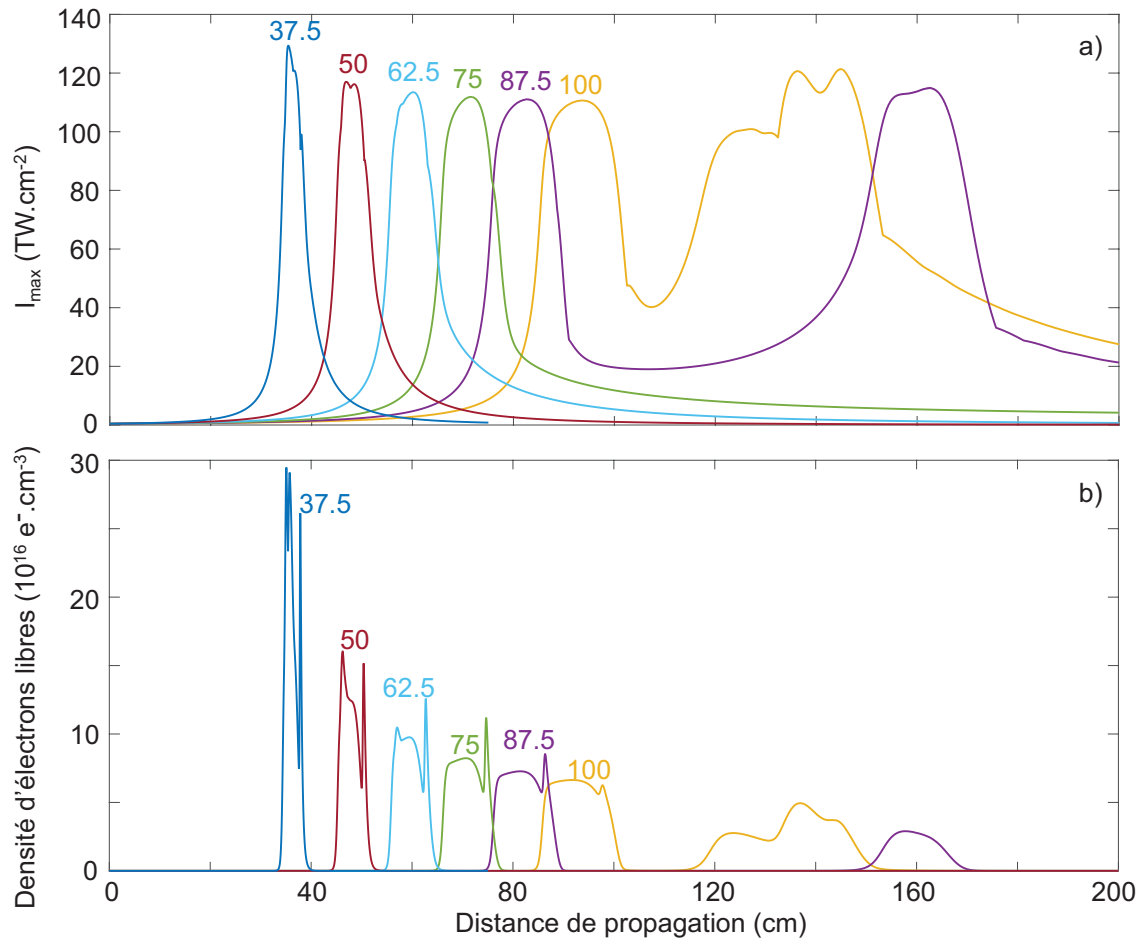


FIGURE 1.8: (a) : Eclairement maximal atteint par l'impulsion en fonction de la distance de propagation. (b) : Densité d'électrons libres induite par l'impulsion en fonction de la distance de propagation. Les focales sont indiquées dans la même couleur que les courbes qui leur correspondent.

De plus, observons que la densité d'électrons libres conserve une valeur conséquente sur une longueur plus importante (et donc, est associée à la formation d'un filament plus long) si la focale est elle-même élevée. En effet, une focale courte impose au faisceau laser une contrainte géométrique beaucoup plus importante qu'une focale longue. Dans ce cas, ce dernier subira ensuite une défocalisation plus forte, et donc divergera plus rapidement. Remarquons enfin que dans le cas des deux focales les plus élevées, la deuxième focalisation observée ci-avant entraîne elle-aussi l'ionisation du milieu.

La figure 1.9, qui est associée à la focale de 1 m, représente la fluence en fonction de la distance de propagation. On peut ainsi constater que, lors de la filamentation, la fluence peut atteindre des valeurs de l'ordre du  $\text{J.cm}^{-2}$ .

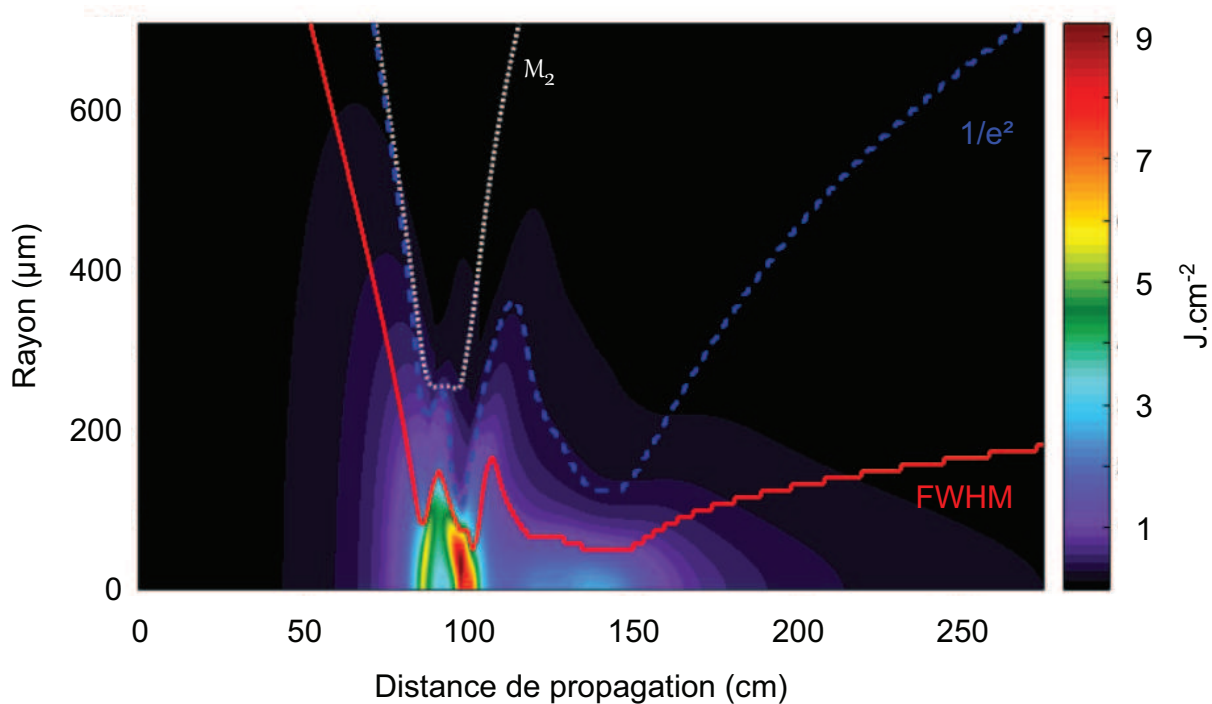


FIGURE 1.9: Fluence en fonction de la distance de propagation. Dans ce cas, la focale est de 1 m. Les différentes courbes de couleurs correspondent au rayon de l'impulsion, calculé de plusieurs façons : en blanc, via le moment d'ordre 2 ; en bleu, à  $1/e^2$  ; en rouge, FWHM.

Par-dessus celle-ci, trois courbes de couleurs sont tracées, et représentent le rayon de l'impulsion en fonction de la distance de propagation, calculé d'une façon différente pour chaque courbe. Ainsi, la courbe en pointillés blancs correspond à la méthode d'évaluation du rayon décrite en [Annexe A](#), qui prend en compte le bain de photons entourant le filament. Par conséquent, on trouve dans ce cas des valeurs de rayons plus élevées que pour les deux autres courbes :

---

celle en traitillés bleus, calculant le rayon à  $1/e^2$ , ainsi que la rouge qui le calcule FWHM. Quelque soit la courbe à la quelle on décide de se reporter, on peut observer que, à l'endroit de la focalisation, l'impulsion de rayon initial 3 mm se retrouve alors majoritairement confinée sur une longueur radiale de l'ordre de la centaine de micromètres, et le demeure sur une distance de plusieurs dizaines de centimètres.

Bien sur, le comportement du filament dépend également fortement des caractéristiques de l'impulsion (durée, énergie, taille de faisceau, ...), ainsi que de la pression du gaz, autant de paramètres que nous avons décidé ici de fixer pour éviter de nous éparpiller.

Les ordres de grandeur associés à l'auto-guidage du faisceau laser ayant été fixés, nous allons pouvoir aborder la description de plusieurs processus non-linéaires prenant place au cours de la filamentation.

### 3.2 Elargissement spectral et supercontinuum

Lors de la filamentation, le spectre de l'impulsion est fortement élargi, ceci pouvant aboutir à l'apparition d'un continuum [27] dont l'extension va du visible à l'infrarouge.

On présente sur la figure 1.10 le supercontinuum que l'on obtient lors de la simulation où la focale de la lentille vaut  $f = 1$  m. Nous rappelons [cf figure 1.8] que, dans ce cas, l'impulsion subit deux focalisations : la première en un lieu situé un peu en avant de la focale, la deuxième à environ  $z = 140$  cm.

Initialement, le spectre du champ électrique possède deux composantes : l'une centrée à  $\omega_0$ , l'autre centrée à  $3\omega_0$ . Lors de la première focalisation de l'impulsion, ces deux composantes subissent un élargissement spectral, mais pas assez fort pour les faire se recouvrir. Ce n'est que lors de la deuxième focalisation que cela va se produire, la composante centrée en  $\omega_0$  s'élargissant fortement, jusqu'à atteindre la deuxième. Au passage, on peut alors voir qu'elles interfèrent spectralement.

Les techniques LIDAR (pour **L**ight **D**etection and **R**anging) tirent profit d'une telle propriété d'élargissement spectral pour effectuer des diagnostics atmosphériques [28, 29]. Leur principe consiste à faire propager le laser dans l'atmosphère, récupérer la partie du spectre qui est alors rétro-diffusée puis l'analyser. La détection de polluants ainsi que la détermination de leur composition ou encore de leur abondance dans l'atmosphère est alors envisageable [30, 31]. L'avantage de produire un continuum dans la zone d'intérêt est l'acquisition complète du spectre, qui est alors possible en un seul coup contrairement aux techniques plus conventionnelles nécessitant une source accordable en longueur d'onde.

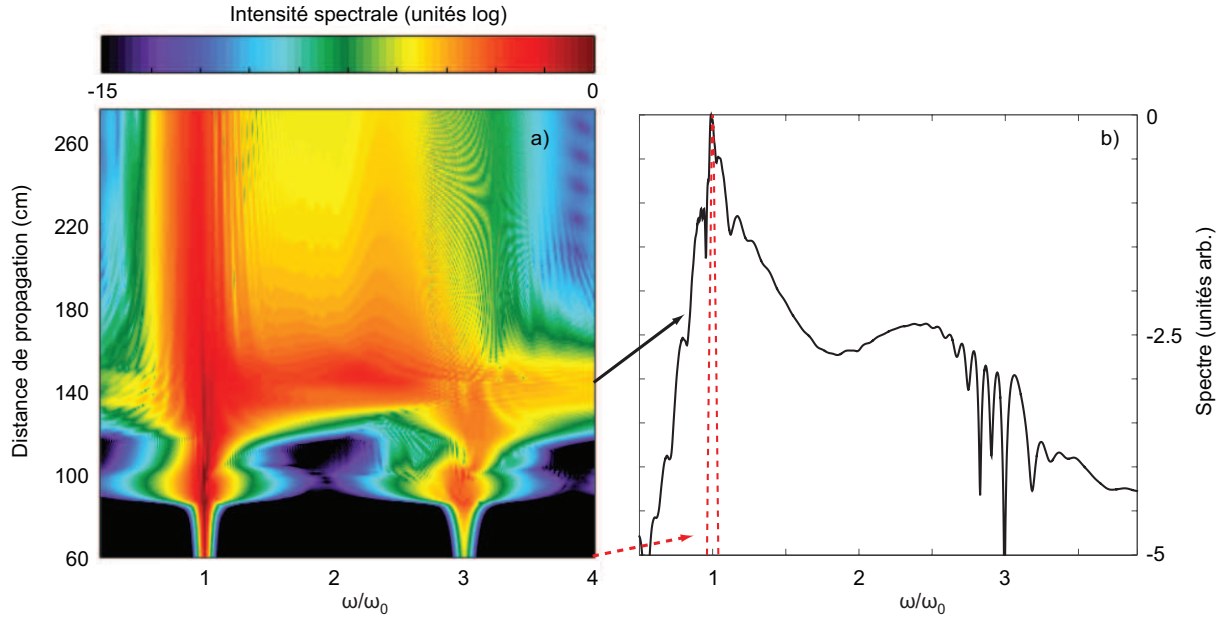


FIGURE 1.10: (a) Spectre en fonction de la distance de propagation; (b) Spectre avant filamentation (en traitillés rouges) comparé au spectre en  $z = 140$  cm (en noir), i.e. à l'endroit de la seconde focalisation de l'impulsion. La focale est ici de 1 m.

Deux origines principales sont identifiables pour cet élargissement spectral :

- l'autofocalisation du faisceau par effet Kerr trouve ainsi son équivalent dans le domaine temporel avec l'automodulation de phase (abrégée dans la suite du manuscrit par SPM, pour **S**elf-**P**hase **M**odulation). En effet, l'éclairement ne dépend pas seulement de la distance radiale, mais également du temps. Ce comportement peut être mis en équation, puisqu'on peut relier la fréquence instantanée  $\omega$  à la phase temporelle  $\phi$ , chacune dépendante du temps, par :

$$\omega(t) = -\frac{\partial \phi(t)}{\partial t} \quad (1.96)$$

avec  $\phi(t) = kz - \omega_0 t$ . En remplaçant  $k$  par son expression dépendante de  $n$ , lui-même exprimé selon (1.2), on obtient :

$$\phi(t) = [n_0 + n_2 I(t)] \frac{\omega_0}{c} z - \omega_0 t \quad (1.97)$$

Ainsi, en insérant l'équation précédente dans la dérivée de (1.96), on a finalement :

$$\omega(t) \simeq \omega_0 - \frac{n_2 \omega_0}{c} z \frac{\partial I(t)}{\partial t} \quad (1.98)$$

Ainsi, par un raisonnement analogue à celui mené pour expliquer l'autofocalisation, on dit que le front avant (respectivement, arrière) de l'impulsion produit des fréquences "vers

le rouge" (respectivement, "vers le bleu") [cf figure 1.11(a)]. Observant une symétrie centrale concernant l'impulsion, cette production de nouvelles fréquences à l'intérieur de l'impulsion se fait par conséquent elle-aussi de manière symétrique, de part et d'autre de la fréquence centrale  $\omega_0$  [cf figure 1.11(b)].

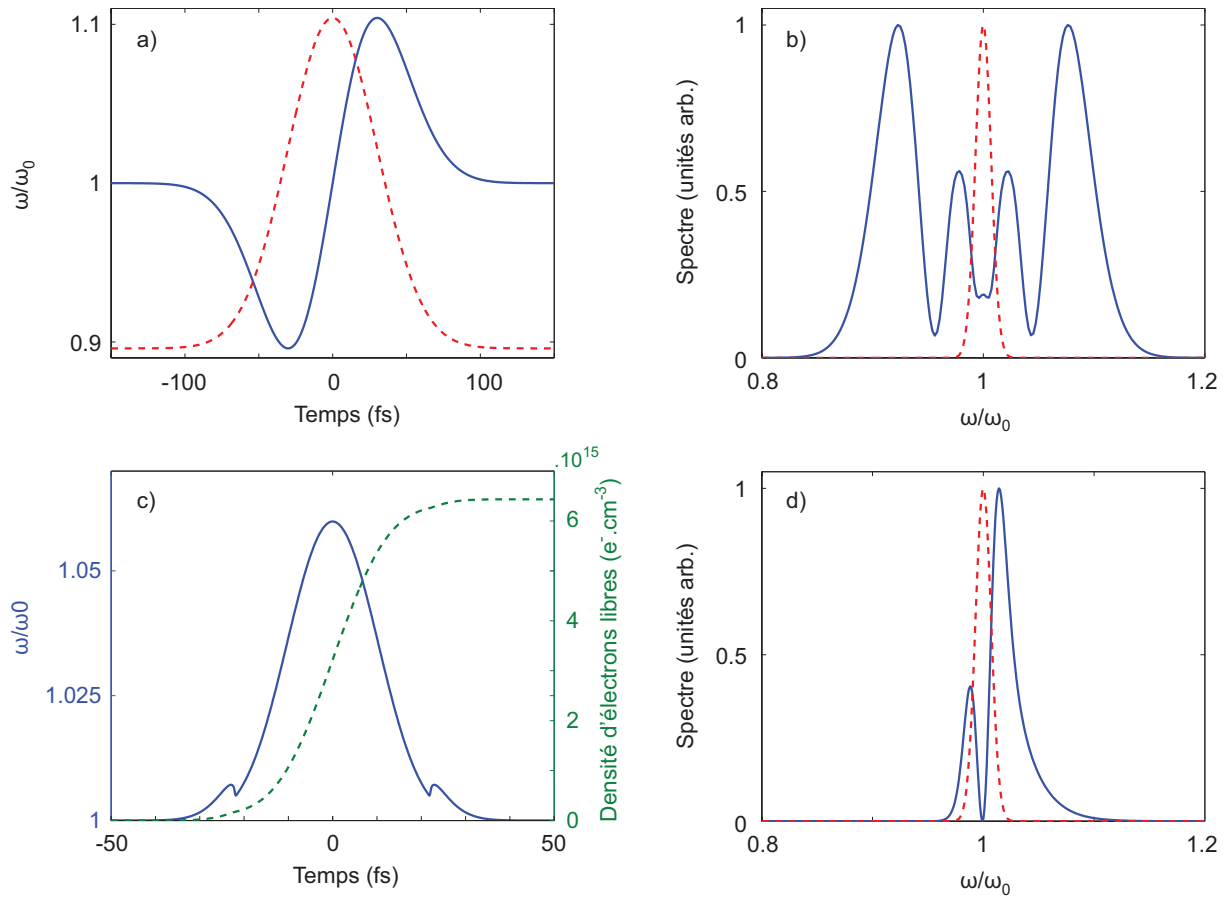


FIGURE 1.11: Propagation sur une distance de  $z = 25$  cm d'une impulsion gaussienne de  $71 \text{ TW} \cdot \text{cm}^{-2}$  d'éclairement crête, et d'une durée de 71 fs dans l'argon. (a) Evolution de la fréquence instantanée en fonction du temps (en trait plein bleu) lorsque la SPM est considérée seule, l'impulsion étant représentée en traitillés rouges (en unités arbitraires) pour la comparaison; (b) Spectre associé (en rouge, initialement; en bleu, à  $z = 25$  cm); (c) Evolution de la fréquence instantanée en fonction du temps (en trait plein bleu) lorsque le plasma est considéré seul, la densité d'électrons libres étant représentée en vert pour la comparaison; (d) Spectre associé (en rouge, initialement; en bleu, à  $z = 25$  cm).

---

□ l'impulsion subit également une modification spectrale lors de son interaction avec le plasma. Le terme de plasma correspond ici à la trainée d'ions et d'électrons libres, que l'impulsion laisse dans son sillage. On peut dans ce cas, de la même manière que pour la SPM ci-avant, mettre en équation le comportement qui est alors celui de l'impulsion. En exprimant à nouveau la fréquence instantanée  $\omega$  en fonction de la phase temporelle  $\phi$ , cette dernière prenant maintenant en compte la densité de plasma dépendante du temps  $\rho(t)$ , on peut montrer que le décalage en fréquence  $\Delta\omega_\rho$  induit par le plasma s'écrit :

$$\Delta\omega_\rho = \frac{\omega_0 z}{c} \frac{1}{2n_0\rho_c} \frac{\partial\rho(t)}{\partial t} \quad (1.99)$$

Le signe de cette quantité est donc le même que celui de  $\partial\rho(t)/\partial t$ . Or, ce dernier est positif (ou nul) en tout point, comme le montre la figure 1.11(c) représentant l'évolution au cours du temps de la densité d'électrons libres. En effet, chaque électron, au moment où il est libéré, s'ajoute à la somme d'électrons libres déjà produite par l'impulsion aux temps précédents : on parle alors d'effet cumulatif. Ainsi, d'après son expression (1.99), le décalage en fréquence  $\Delta\omega_\rho$  est lui-aussi positif (ou nul) : le plasma est donc responsable de l'apparition de fréquences décalées "vers le bleu" dans l'impulsion [33, 34], ainsi qu'on peut le voir sur la figure 1.11(d).

### 3.3 Auto-raïdissement

Autre conséquence de la différence de vitesse de groupe entre le pic de l'impulsion et son front arrière : le changement de forme de l'impulsion, aussi appelé auto-raïdissement [32]. En effet, le pic de l'impulsion étant ralenti par rapport au reste de l'impulsion, il est progressivement repoussé vers l'arrière de l'impulsion, comme on peut le voir sur la figure 1.12(a), si bien que la pente diminue pour le front avant de l'impulsion tandis qu'elle se raidit sur son front arrière.

Ceci n'est pas sans conséquences sur le processus d'auto-modulation de phase, dont nous venons de parler : d'une part, l'élargissement spectral sera plus fort à l'arrière de l'impulsion qu'à l'avant ; d'autre part, le front montant de l'impulsion concernant une plus grande partie de cette dernière que le front descendant, le déplacement des fréquences « vers le rouge » durera plus longtemps. De ce fait, le pic spectral le plus élevé est situé « dans le rouge », tandis que le plus large est, quant à lui, situé « dans le bleu », ainsi que le montre la figure 1.12(b). L'élargissement spectral est alors asymétrique.

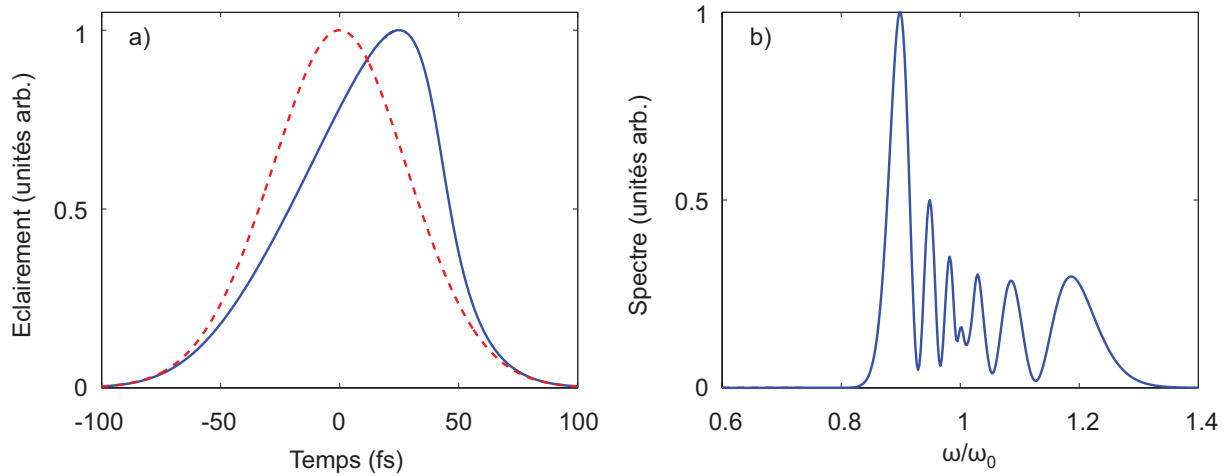


FIGURE 1.12: (a) Forme temporelle de l'impulsion après 25 cm de propagation (en traitillés rouges : sans tenir compte de l'auto-raïdissement, en trait plein bleu : si l'on en tient compte). Initialement, l'impulsion a un éclairement crête de  $71 \text{ TW.cm}^{-2}$  et de durée 62 fs. (b) Spectre associé au cas où l'on tient compte de l'auto-raïdissement.

### 3.4 Pulse-splitting

Le phénomène d'auto-raïdissement se produisant avant que l'autofocalisation ne soit maximale, il peut avoir pour conséquence que le front arrière s'autofocalise plus rapidement que le front avant. Ainsi, il peut être responsable du phénomène dit de pulse splitting [35]. Si ce dernier est causé par dispersion de vitesse de groupe, l'impulsion se retrouve temporellement scindée en deux de manière symétrique.

Cependant, ce phénomène peut également être dû au plasma. C'est ce cas qui est illustré sur la figure 1.13, représentant la distribution spatio-temporelle de l'éclairement du champ électrique pour différents points de la propagation d'une impulsion focalisée par une lentille d'une focale de 75 cm. Ainsi, à  $Z = 50 \text{ cm}$  l'impulsion entre à peine dans la zone de focalisation : sa forme est donc similaire avec celle qui était la sienne initialement. Puis, à  $Z = 67 \text{ cm}$ , alors que l'impulsion n'a pas encore atteint le point focal, on peut observer que le front arrière de celle-ci (i.e. dans les temps positifs) subit une forte défocalisation, qui se poursuit jusqu'à  $Z = 70 \text{ cm}$ . Puisque cette dernière n'affecte que le front arrière de l'impulsion, on déduit que c'est le plasma qui en est responsable du fait de son caractère cumulatif [cf figure 1.11(c)].

Ensuite, à partir de  $Z = 72 \text{ cm}$  (et encore à  $Z = 74 \text{ cm}$ ), cette partie de l'impulsion précédemment défocalisée, et s'étant intensifiée à cause de la focalisation, s'auto-focalise séparément du reste de l'impulsion. Ainsi, une fois le point focal dépassé, par exemple à  $Z = 78 \text{ cm}$ , l'impulsion initiale est dans ce cas coupée en deux : c'est le pulse-splitting, causé ici par le plasma.

On remarquera que les oscillations temporelles visibles sur toutes les figures présentées dans

la figure 1.13, issue d'une étude présentée dans le suite du manuscrit mettant en jeu un champ de troisième harmonique, sont en fait dues à la présence de troisième harmonique auto-induite.

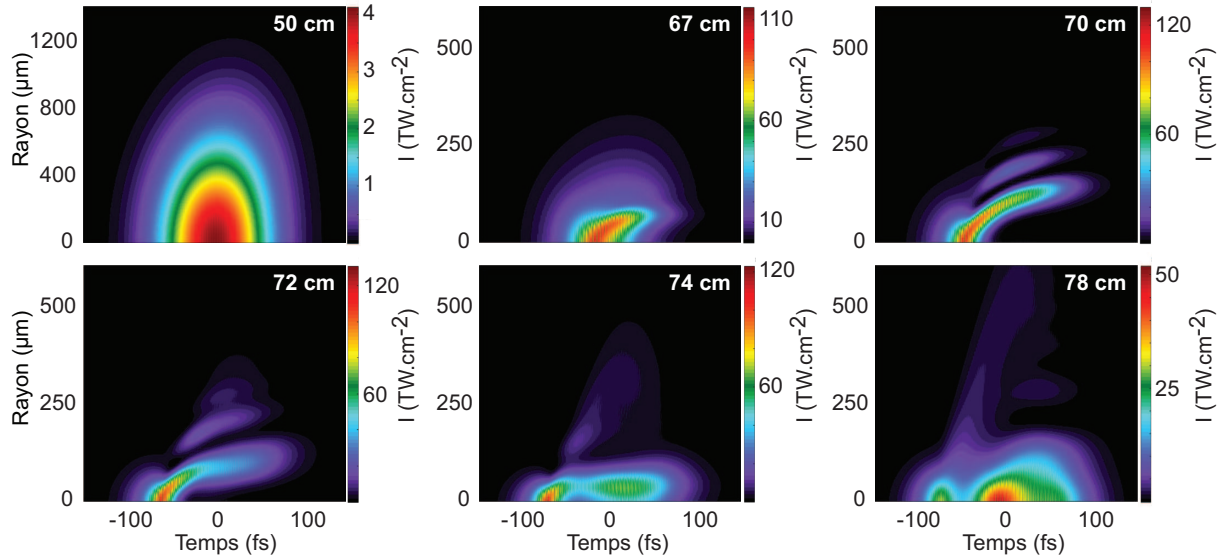


FIGURE 1.13: Représentation de la distribution spatio-temporelle de l'éclairement du champ électrique pour différentes étapes de la propagation. La focale a une valeur de 75 cm.

### 3.5 Compression temporelle

La figure 1.14 permet de mettre, en fonction de la distance de propagation, la durée de l'impulsion en corrélation avec la forme de l'impulsion représentée sur la précédente figure.

On observe qu'à  $Z \simeq 60$  cm, l'impulsion voit sa durée diminuer d'un facteur deux, pour passer de 100 fs initialement à une cinquantaine de femtosecondes à son maximum de compression au sein du filament. De la même manière qu'élever une gaussienne à une puissance (supérieure à un) raccourcit sa largeur totale à mi-hauteur, l'auto-focalisation du faisceau entraîne une compression temporelle de l'impulsion.

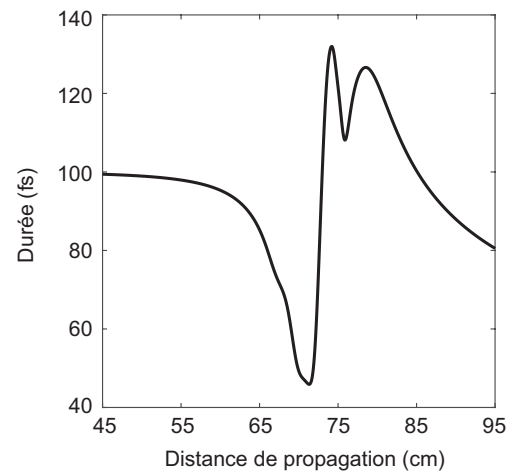


FIGURE 1.14: Durée de l'impulsion en fonction de la distance de propagation, en lien avec la figure 1.13.

---

Cette réorganisation du profil temporel de l'impulsion est d'une importance particulière lorsqu'il s'agit de produire des impulsions attosecondes [36] ( $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ ).

Par la suite, à l'endroit où le phénomène de pulse-splitting entre en jeu, la durée de l'impulsion augmente brusquement pour arriver à environ 130 fs, traduisant en fait la présence de deux « sous-impulsions » s'étalant sur une durée plus longue que celle de l'impulsion du début.

A terme, celle située dans le front avant de l'impulsion disparaîtra à cause de l'absorption multiphotonique, ce qui aura pour conséquence que la durée de l'impulsion diminuera à nouveau, passant sous la barre des 100 fs initiales.

### 3.6 Emission conique

Venons-en enfin à la description d'un phénomène typique associé à la filamentation : l'émission conique. On observe dans ce cas [cf fig. 1.15(a), issue de [37]] une tache blanche sur l'axe de propagation, entourée par des anneaux colorés dont la longueur d'onde va en diminuant du centre vers les bords, à l'inverse de la diffraction "normale", pour laquelle le rouge diffracte plus que le bleu et devrait donc se retrouver plus étalé. Le processus engendrant la création des anneaux colorés peut être vu comme issu d'un mélange à quatre ondes non-colinéaire de type  $2\omega_0 \rightarrow \omega_I + \omega_{EC}$ . En principe, l'accord de phase de ce processus est impossible à obtenir en régime linéaire. On peut néanmoins montrer [38] que l'effet Kerr modifie les conditions d'accord de phase (on parle alors d'instabilité de modulation), permettant alors au processus de mélange à quatre ondes de se produire de manière efficace.

La figure 1.15(b) correspond à la simulation effectuée pour une focale de 1 m, et représente l'intensité du spectre en fonction de la fréquence et de la divergence du faisceau par rapport à son axe de propagation (et donc à travers cette-dernière, en fonction de  $k_{\perp}$ ). Trois zones y sont identifiées par des lettres :

- ❑ zone (A) : elle est nommée émission conique infrarouge par [39], même si elle est identifiée comme provenant du mélange à quatre ondes impliquant la fréquence fondamentale  $\omega_0$  et la fréquence de l'émission conique décalée vers le bleu  $\omega_{EC}$  qui lui correspond. La fréquence alors créée vaut  $\omega_I = 2\omega_0 - \omega_{EC}$ .
- ❑ zone (B) : l'émission conique à proprement parler, telle qu'elle est décrite ci-avant. La distribution radiale du décalage en fréquences, que traduisent l'apparition des anneaux colorés, est donc convenablement dépeinte par les simulations numériques.
- ❑ zone (C) : sur l'axe de propagation (i.e. pour des angles faibles), le faisceau subit un élargissement spectral, abordé précédemment, tant vers l'infrarouge [zone (C1), élargissement

dû à la SPM] que vers le visible [zone (C2), élargissement dû en partie à la SPM mais surtout au plasma]. Cet élargissement spectral correspond à la tache blanche visible au centre de la figure 1.15(a).

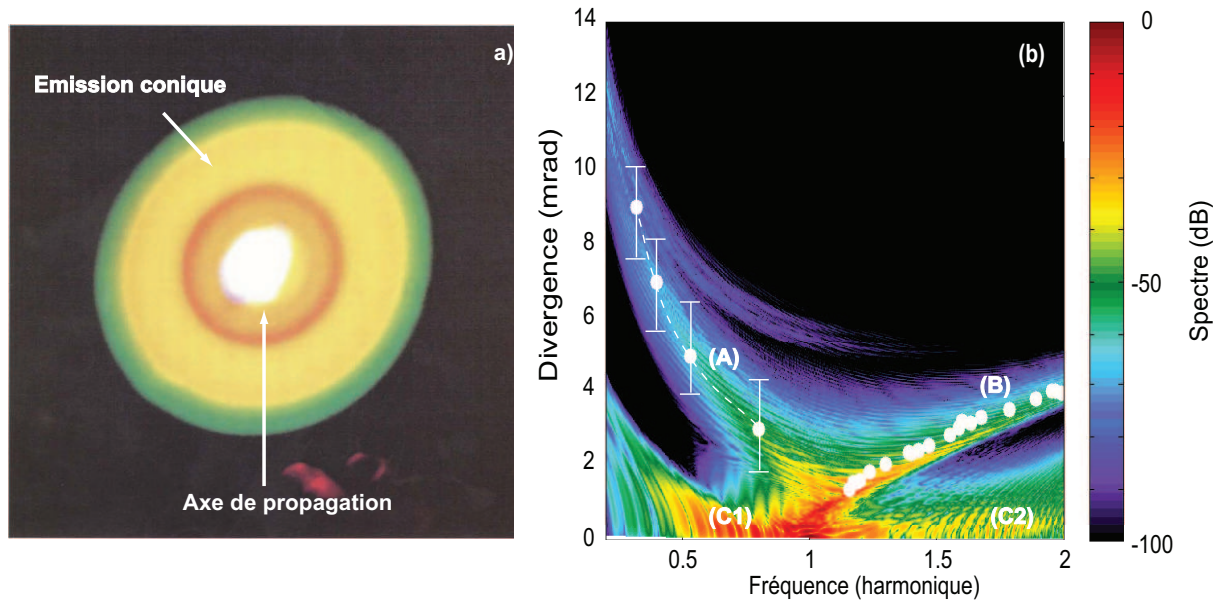


FIGURE 1.15: (a) : Photo expérimentale d'émission conique, issue de [37]. (b) : Intensité du spectre en fonction de la fréquence et de la divergence du faisceau, après 24 m de propagation (dont 16 m de filamentation), tirée de [40]. L'impulsion était alors centrée à  $\lambda_0 = 800$  nm, avait une durée de 45 fs, une énergie de 5 mJ. Les points blancs correspondent aux données expérimentales de [39] (partie IR) et de [41] (partie visible-UV).

---

## 4 Equation de Schrödinger Dépendante du Temps (E.S.D.T.) et base des splines

Lors de la partie 2 de ce Chapitre, nous nous sommes placés dans le cadre du modèle établi, c'est-à-dire que nous avons utilisé la théorie des perturbations pour développer la réponse optique du milieu en termes de puissance du champ électrique. Celle-ci est valide dans l'approximation du champ faible, qui stipule que le champ laser appliqué au système doit demeurer négligeable devant le champ intra-atomique, responsable de la liaison noyau-électron. La valeur  $E_c$  de celui-ci peut être évaluée grâce à la formule suivante dans le cas de l'hydrogène :

$$E_c = \frac{|e|}{4\pi\epsilon_0 a_0^2} \simeq 5.1 \times 10^{11} \text{ V.m}^{-1} \quad (1.100)$$

où  $a_0 \simeq 52 \text{ pm}$  est le rayon de Bohr. Or, comme nous venons de le voir à la partie précédente, les éclaircissements atteints (et transportés par le filament) lors de la propagation d'un faisceau laser ultra-intense sont de l'ordre de la dizaine à la centaine de  $\text{TW.cm}^{-2}$ . A titre d'exemple, un éclaircissement pic d'une valeur de  $62 \text{ TW.cm}^{-2}$  correspond à une valeur de champ pic de  $2.2 \times 10^{10} \text{ V.m}^{-1}$ , soit environ 4.4 % de la valeur du champ intra-atomique.

L'approximation du champ faible, légitimant le développement de la polarisation en série perturbative du champ électrique, peut donc raisonnablement être contestée, d'autant plus que des processus tels que la génération de hautes harmoniques<sup>14</sup> [42] ou encore l'ionisation au-dessus du seuil [16], mettant en jeu des valeurs d'éclaircissements similaires à celles liées à la filamentation sont, eux, traités en dehors de la théorie des perturbations.

Ainsi, la solution est d'avoir recours à une méthode non-perturbative, une méthode dite « champ fort », en d'autres termes : résoudre l'Equation de Schrödinger Dépendante du Temps (ou E.S.D.T.)<sup>15</sup>, qui régit l'évolution de l'atome interagissant avec le champ laser.

La résolution de l'E.S.D.T. à chaque instant  $t$  nous permet d'avoir accès à la valeur de la fonction d'onde  $\Psi(\mathbf{r}, t)$  à tous les temps. Cette fonction d'onde contient toutes les informations sur l'état du système au temps  $t$ . Il faudra donc en extraire les informations pertinentes pour évaluer des quantités physiques, en lien avec la réponse optique microscopique du système. Nous pourrions ainsi évaluer les termes sources de l'équation de propagation établie à la partie 2. L'E.S.D.T. est une équation différentielle du premier ordre par rapport au temps, ce qui signifie que la connaissance de l'état initial du système, et de sa fonction d'onde  $\Psi(\mathbf{r}, t = t_0)$  est suffisante pour la détermination de la fonction d'onde à un temps  $t$  ultérieur  $\Psi(\mathbf{r}, t)$ .

---

14. H.H.G. en anglais, pour **H**igh-**H**armonics **G**eneration.

15. T.D.S.E. en anglais, pour **T**ime-**D**ependent **S**chrödinger **E**quation.

---

---

Une autre méthode de résolution existe cependant, et consiste à effectuer les calculs dans une base, c'est-à-dire à réduire cette équation différentielle en un problème d'algèbre matricielle, pour lequel il existe des algorithmes numériques de résolution très puissants. La base des états propres du système en l'absence de champ électrique constitue l'exemple le plus intuitif pour cela. Toutefois, au cours de cette thèse, c'est dans une autre base que les calculs ont été effectués : la base des fonctions splines [43, 44].

En particulier, la fonction d'onde  $\Psi(\mathbf{r})$  peut être séparée en deux parties, radiale  $\mathcal{U}_{o,l}(r)$  et angulaire  $Y_l^m(\theta, \varphi)$ , comme suit :

$$\Psi(\mathbf{r}) = \frac{\mathcal{U}_{o,l}(r)}{r} Y_l^m(\theta, \varphi) \quad (1.101)$$

où  $l$  est le moment angulaire,  $m$  est le moment magnétique et  $Y_l^m(\theta, \varphi)$  est l'harmonique sphérique<sup>16</sup> à  $l$  et  $m$  donnés, état propre de l'opérateur moment cinétique  $\mathbf{L}$ . Comme nous aurons l'occasion d'y revenir plus loin,  $m$  sera fixé nul.

$\mathcal{U}_{o,l}(r)$  est la fonction d'onde radiale :  $o$  équivaut à  $n$ , le nombre quantique principal, dans le cas d'un état lié, et à  $c$  dans le cas d'un état du continuum. Nous faisons cette distinction du fait que les états du continuum ne sont pas indexables par le nombre quantique  $n$ . Ainsi, la partie angulaire sera traitée par les harmoniques sphériques, tandis que les fonctions splines se chargeront de la partie radiale.

Nous commencerons ainsi cette partie par la présentation de ces fonctions. Nous montrerons ensuite brièvement qu'elles permettent de calculer la structure atomique (énergies, fonctions d'onde, ...) de notre atome. Nous considérerons alors l'hydrogène ; en effet, il existe pour cet atome des solutions analytiques auxquelles nous pourrions comparer les résultats obtenus par la méthode des B-splines. Enfin, nous expliquerons comment nous pouvons les employer pour résoudre l'E.S.D.T., et en retirer par la même les valeurs que prennent les observables physiques d'importance dans le contexte de la filamentation.

---

16. La formule générale des harmoniques sphériques est [45] :

$$Y_l^m(\theta, \varphi) = \frac{(-1)^{(l+m)}}{2^l l!} \sqrt{\frac{2l+1}{4\pi} \frac{(l-m)!}{(l+m)!}} e^{im\varphi} (\sin\theta)^m \frac{d^{l+m}}{d(\cos\theta)^{l+m}} \sin\theta^{2l}$$

---

## 4.1 Les fonctions splines

Nous allons dans cette partie définir ce qu'est une spline, expliquer l'avantage qu'elles possèdent sur d'autres fonctions et décrire comment nous procédons pour les construire.

Historiquement, avant l'arrivée de l'informatique, les dessinateurs industriels utilisaient une règle en bois souple, appelée « spline », pour épouser au mieux la forme d'une courbe passant par plusieurs points fixés. Ils l'obligeaient à passer par les points en question, au niveau desquels il leur suffisait de planter un clou afin d'y caler la règle. Lorsque l'informatique et les ordinateurs se sont développés, le principe utilisé par les dessinateurs a alors été mathématisé et le terme de spline a été conservé par la suite.

En ce qui concerne le domaine de la physique atomique, on a besoin d'interpoler des fonctions d'ondes. Pour ce faire, on peut penser à l'interpolation par des polynômes, relativement simple à mettre en place. En effet, leur avantage réside dans le fait que ces fonctions, leurs dérivées et leurs primitives sont facilement calculables, par des opérations élémentaires telles que l'addition, la multiplication et la soustraction. Cependant, dans certains cas (comme nous le verrons plus loin), les fonctions d'ondes que l'on doit calculer se révèlent être très compliquées, voire impossibles, à interpoler par des polynômes. C'est pourquoi on utilise préférentiellement les fonctions splines, que l'on va aborder à présent.

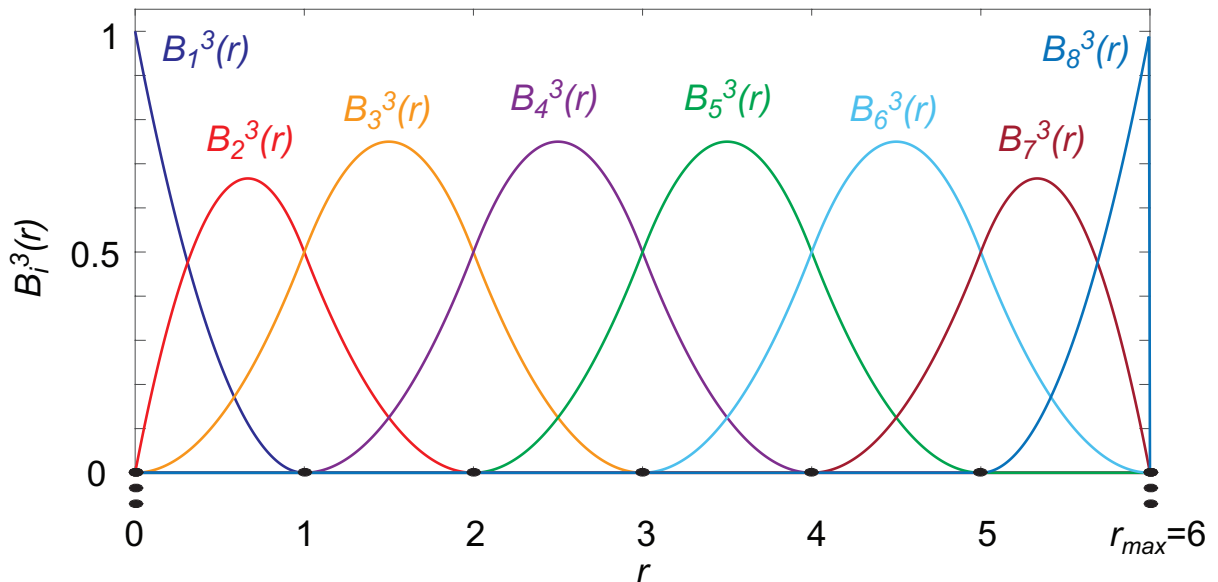


FIGURE 1.16: Représentation de toutes les splines d'ordre 3 sur l'intervalle  $[0,6]$ . L'espace est discrétisé de telle manière que les nœuds soient des nombres entiers.

- *une spline est un polynôme défini par morceaux*

Une spline est construite à partir de polynômes définis sur des intervalles contigus, et est notée  $B_i^k$ , où  $i$  est son « numéro » en partant de la borne inférieure de l'espace. Elle est caractérisée par son ordre  $k$  : une spline d'ordre  $k$  est un polynôme par morceaux de degré  $k - 1$ . A titre d'illustration, on peut se référer à la figure 1.16. Les huit splines qui y sont représentées sont définies sur trois intervalles chacune, sur lesquelles elles sont égales à trois polynômes différents. Les équations de ces derniers, sont recensées dans le tableau 1.2, pour les cinq premières splines.

|                | $B_1^3(r)$     | $B_2^3(r)$                | $B_3^3(r)$                          | $B_4^3(r)$                         | $B_5^3(r)$                           |
|----------------|----------------|---------------------------|-------------------------------------|------------------------------------|--------------------------------------|
| $r \in [0, 1]$ | $r^2 - 2r + 1$ | $-\frac{3}{2}r^2 + 2r$    | $\frac{1}{2}r^2$                    | 0                                  | 0                                    |
| $r \in [1, 2]$ | 0              | $\frac{1}{2}r^2 - 2r + 2$ | $-r^2 + 3r - \frac{3}{2}$           | $\frac{1}{2}r^2 - r + \frac{1}{2}$ | 0                                    |
| $r \in [2, 3]$ | 0              | 0                         | $\frac{1}{2}r^2 - 3r + \frac{9}{2}$ | $-r^2 + 5r - \frac{11}{2}$         | $\frac{1}{2}r^2 - 2r + 2$            |
| $r \in [3, 4]$ | 0              | 0                         | 0                                   | $\frac{1}{2}r^2 - 4r + 8$          | $-r^2 + 7r - \frac{23}{2}$           |
| $r \in [4, 5]$ | 0              | 0                         | 0                                   | 0                                  | $\frac{1}{2}r^2 - 5r + \frac{25}{2}$ |

TABLE 1.2: Equations des cinq premières splines de la figure 1.16, sur chaque sous-intervalle.

Les splines étant d'ordre trois dans cet exemple, les polynômes qui la composent sont de degré deux. Les intervalles sur lesquels les splines sont mises en jeu proviennent de la discrétisation utilisée : lors des calculs, on subdivise l'espace (dont on a défini la taille  $r_{\max}$ ) en plusieurs sous-intervalles, chacun délimité par deux points-supports consécutifs<sup>17</sup>. Un nombre  $y$  de points-supports est ainsi employé, définissant  $y - 1$  sous-intervalles. A partir de ces points-supports, on construit une séquence de nœuds  $t = [t_1, t_2, t_3, \dots]$ . Ces nœuds sont représentés par les points noirs sur la figure 1.16. Cette séquence est croissante, mais plusieurs nœuds consécutifs peuvent être identiques. C'est le cas sur la figure 1.16, pour laquelle les nœuds situés aux extrémités ont une multiplicité de trois, c'est-à-dire qu'ils reviennent à trois reprises dans la séquence de nœuds  $t$ . On peut en effet montrer que la multiplicité d'un nœud est directement reliée à la continuité de la spline en ce nœud, et c'est en la fixant à l'unité que nous obtenons la continuité optimale, les bords constituant alors des cas particuliers.

17. Pour plus de détails à propos des différentes séquences de points-supports servant à discrétiser l'espace, on pourra se référer à l'Annexe  $\mathcal{F}$ .

---

Ceci nous amène aux propriétés des splines, qui constituent également leur plus grand avantage.

- ***une spline est non-nulle seulement sur un intervalle fermé***

On parle alors de support compact. En fait, comme on peut par exemple le constater avec la spline  $B_2^3(r)$  sur l'intervalle  $[0,2]$  sur la figure 1.16, une spline possède un support sur lequel elle diffère de zéro et s'annule partout en dehors, ce qui signifie qu'il n'existe que très peu de recouvrements entre splines. Cette propriété est pleinement utilisée par la suite. En effet, nous serons amenés, lors de la résolution de l'E.S.D.T., à calculer des intégrales mettant en jeu des splines, du type :

$$\int_0^{\infty} B_i(r).B_j(r)dr \quad (1.102)$$

$\forall i, j = 1, \dots, N$ , où  $N$  est le nombre total de splines utilisées.

Du fait du peu de recouvrements entre splines, ce type d'intégrale vaudra zéro dans la grande majorité des cas. Ce sont toutes ces intégrales nulles qui constituent le point fort des splines, comme nous aurons l'occasion de le constater par la suite. L'intégrale prendra une valeur non-nulle à de rares exceptions, quand bien même un millier de splines serait utilisé.

Ce nombre d'exceptions est en fait égal à  $2k - 1$  ( $k$  de part et d'autre de la spline numéro  $i$ , moins la spline  $i$  qui est comptée deux fois sinon). En effet, en tout point  $r$  de l'espace (sauf aux extrémités, qui constituent des cas particuliers), seules  $k$  splines sont non-nulles : on peut par exemple le constater en  $r \in [0, 1]$  sur la figure 1.16, où seules les  $k = 3$  splines numérotées de 1 à 3 diffèrent de zéro. Ceci est directement dû à la manière de construire les splines, que nous allons maintenant détailler.

- ***les splines sont construites par récurrence***

Ce paragraphe concerne l'évaluation numérique des splines. A titre d'illustration de la méthode de construction, on pourra regarder en parallèle la figure 1.17 (à lire en suivant les flèches). Elle illustre de manière générale la construction des splines d'ordre sept sur l'intervalle  $[0,6]$ .

La récurrence est initialisée avec les splines d'ordre un : ce sont des polynômes de degré nul, valant un sur le support des splines, et zéro en dehors. Ensuite, on utilise la relation de récurrence suivante, pour calculer les splines d'ordre directement supérieur :

$$B_i^k(r) = \frac{r - t_i}{t_{i+k-1} - t_i} B_i^{k-1}(r) + \frac{t_{i+k} - r}{t_{i+k} - t_{i+1}} \quad (1.103)$$

la fonction spline d'ordre  $k$  est donc la combinaison (non-linéaire) de deux splines d'ordre immédiatement inférieur. Remarquons alors que la construction d'une spline d'ordre trois nécessite l'utilisation de trois splines d'ordre un. De manière générale, il faut  $k$  splines d'ordre un

pour construire une spline d'ordre  $k$ . Réciproquement, une spline d'ordre  $k$  intervient dans la construction de  $k$  splines d'ordre  $k$ . C'est pourquoi on a observé dans le paragraphe précédent que seules  $k$  splines d'ordre  $k$  sont non-nulles en un point  $r$  quelconque. Remarquons également qu'en tout point de l'intervalle  $[0, r_{\max}]$ , la somme de toutes les splines vaut l'unité.

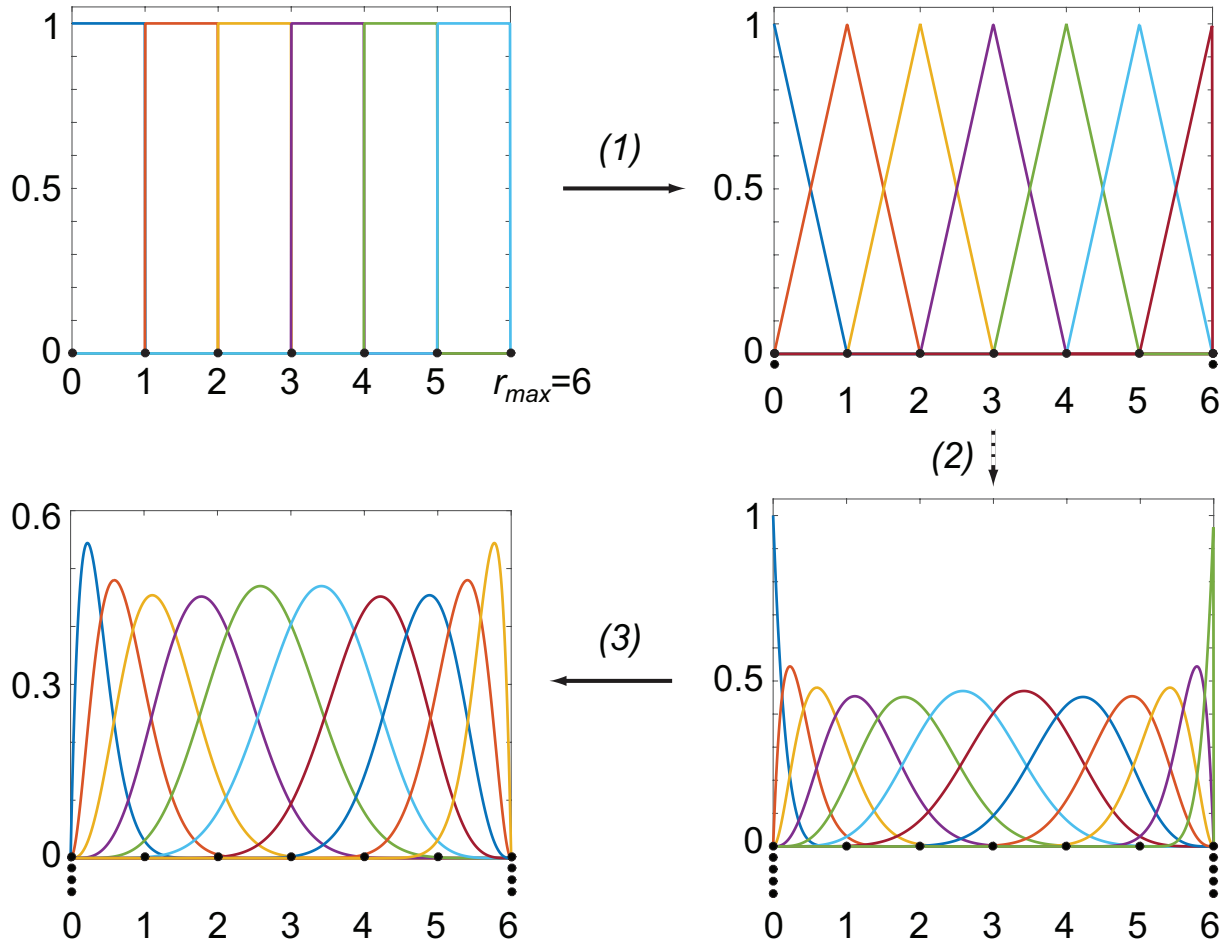


FIGURE 1.17: Schéma de construction récurrente des splines d'ordre sept.

Observons que la multiplicité des bords augmente d'une unité à chaque fois que l'ordre des splines fait de même. En effet, une spline d'ordre  $k$  étant non-nulle sur  $k$  sous-intervalles contigus, il faut prendre en compte le fait que les première et dernière spline ne doivent pas dépasser les bords. On peut d'ailleurs voir que ces dernières ne sont construites « qu'à moitié ». C'est donc à cet endroit qu'interviennent ces « nouveaux » nœuds. Toutefois, nous recherchons uniquement des solutions nulles aux bornes de la boîte. Une manière simple d'y parvenir est de supprimer la première et la dernière spline, de sorte qu'aucune spline ne diffère de zéro en ces points extrêmes. Pour ce faire, nous abaissons simplement d'une unité la multiplicité des points

extrêmes [dernière étape sur la figure 1.17]. Le but est alors atteint, sans pour autant toucher à la valeur des autres splines.

- **les dérivées des splines sont elles-mêmes des splines, qui sont également calculées par récurrence**

Dans des calculs ultérieurs, nous aurons besoin des dérivées première, seconde, .. des splines. Celles-ci sont également calculées par récurrence, grâce à la formule suivante :

$$\frac{\partial}{\partial r} B_i^k(r) = (k-1) \left[ \frac{B_i^{k-1}(r)}{t_{i+k-1} - t_i} - \frac{B_{i+1}^{k-1}(r)}{t_{i+k} - t_{i+1}} \right] \quad (1.104)$$

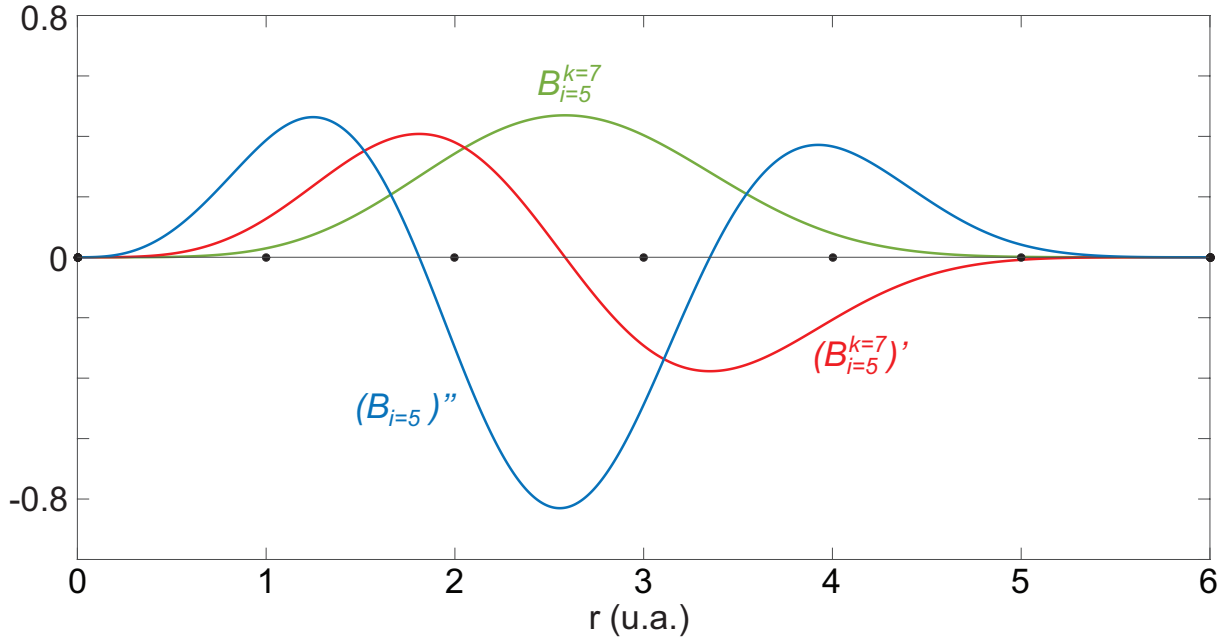


FIGURE 1.18: Une spline d'ordre  $k = 7$  (en vert) et ses deux premières dérivées (en rouge puis en bleu).

Ainsi, la  $j$  – ième dérivée d'une spline d'ordre  $k$  est une spline d'ordre  $k - j$ . On peut également vérifier sur la figure 1.18 que les deux premières dérivées d'une de nos splines d'ordre sept sont bien continues. De manière plus générale, toutes les dérivées jusqu'à la  $(k - 2)$  – ième incluse sont continues. Ce point est important, car des calculs ultérieurs impliqueront jusqu'à la dérivée seconde des splines, et il est important qu'elles soient continues.

- 
- *les calculs seront réalisés dans une base de fonctions splines*

Dans notre cas, un algorithme sera utilisé pour construire une base de fonctions splines. Dire que l'on va travailler dans celle-ci revient plus simplement à dire que l'on va interpoler les fonctions d'ondes par des splines. L'avantage de définir une base est de travailler avec des coefficients de décomposition  $\alpha_i$ , tels que la fonction  $f(r)$  à interpoler vaille :

$$f(r) = \sum_i \alpha_i B_i^k(r) \quad (1.105)$$

Le fait de décomposer l'équation de Schrödinger sur une base permet de réduire cette équation différentielle en un problème d'algèbre matricielle, pour lequel il existe des algorithmes numériques de résolution très puissants. Les éléments des matrices ainsi mises en jeu sont calculés par le biais d'intégrales du type de l'équation (1.102). Comme nous l'avons expliqué précédemment, ces intégrales calculées avec des splines, seront nulles dans la plupart des cas, ce qui aura donc pour conséquence de créer des matrices très creuses. Des matrices si peu remplies facilitent grandement la tâche des algorithmes numériques.

L'objet d'interpolation que constituent les B-splines ayant été introduit et expliqué, utilisons-le pour résoudre l'équation de Schrödinger en l'absence de champ, et donc d'interaction (i.e. l'équation de Schrödinger stationnaire). Dans ce cas, on retrouve tout simplement la structure atomique du système étudié ; ici, l'hydrogène. Cet atome étant bien connu d'un point de vue analytique, il sera aisé de comparer les résultats obtenus lors de la résolution de l'équation de Schrödinger stationnaire avec la théorie.

---

## 4.2 Structure atomique

Pour le cas de l'hydrogène, le système est un électron plongé dans un potentiel central  $V_H(r) = -1/r$ , créé par le cœur (i.e. le noyau). Nous recherchons les états stationnaires de l'hydrogène, qui sont solutions de l'équation de Schrödinger indépendante du temps :

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta + V_H(\mathbf{r}) \right] \Psi(\mathbf{r}) = E \Psi(\mathbf{r}) \quad (1.106)$$

où l'on retrouve la masse de l'électron  $m_e$  et l'opérateur laplacien  $\Delta$ .  $E$  est l'énergie et  $\Psi(\mathbf{r})$  la fonction d'onde. Par la suite, pour simplifier les calculs que nous aurons à réaliser, nous allons utiliser le système des unités atomiques, dans lequel  $\hbar$  et  $m_e$ , par exemple, seront posées égales à 1. Pour plus de détails, consulter l'[Annexe D](#).

En écrivant la fonction d'onde selon (1.101), l'équation (1.106) se résume alors à ceci :

$$\left[ -\frac{d^2}{2dr^2} + \frac{l(l+1)}{2r^2} + V_H(r) \right] \mathcal{U}_{o,l}(r) = E_{o,l} \mathcal{U}_{o,l}(r) \quad (1.107)$$

où  $E_{o,l}$  est l'énergie associée à l'état  $|o, l\rangle$ .

Notre but est d'interpoler la fonction  $\mathcal{U}_{o,l}(r)$  par des fonctions splines :

$$\mathcal{U}_{o,l}(r) = \sum_i \alpha_i B_i^k(r) \quad (1.108)$$

En notation *bra-ket*, cette équation s'écrit :

$$|\mathcal{U}_{o,l}(r)\rangle = \sum_i \alpha_i |B_i^k\rangle \quad (1.109)$$

et l'équation (1.107) devient pour sa part :

$$\mathbf{H}_l |\mathcal{U}_{o,l}\rangle = E_{o,l} |\mathcal{U}_{o,l}\rangle \quad (1.110)$$

où  $\mathbf{H}_l$  est le Hamiltonien libre du système (i.e. sans champ) :

$$\mathbf{H}_l = -\frac{d^2}{2dr^2} + \frac{l(l+1)}{2r^2} + V_H(r) \quad (1.111)$$

En effectuant une projection dans la base des splines de l'équation (1.110), dans laquelle on aura substitué  $|\mathcal{U}_{o,l}\rangle$  par l'expression (1.109), et en projetant ensuite à gauche sur les *bras*  $\langle B_j^k|$ , on achève la transformation de l'équation (différentielle) de Schrödinger en un problème d'algèbre matricielle, et plus précisément un problème aux valeurs propres généralisées :

$$\mathbf{H}_l \mathbf{v} = E_{o,l} \mathbf{S} \mathbf{v} \quad (1.112)$$

---

où  $v$  est le vecteur regroupant les coefficients de décomposition  $\alpha_i$ . Il apparaît également la matrice  $\mathbf{S}$ , appelée matrice de recouvrement, découlant de la non-orthogonalité de la base des fonctions splines. Les éléments de matrices devant être calculés s'écrivent :

$$h_{i,j} = -\frac{1}{2} \int_0^\infty B_i(r) \frac{d^2}{dr^2} B_j(r) dr + \frac{l(l+1)}{2} \int_0^\infty \frac{B_i(r) B_j(r)}{r^2} dr + \int_0^\infty B_i(r) V_H(r) B_j(r) dr \quad (1.113)$$

$$s_{i,j} = \int_0^\infty B_i(r) B_j(r) dr \quad (1.114)$$

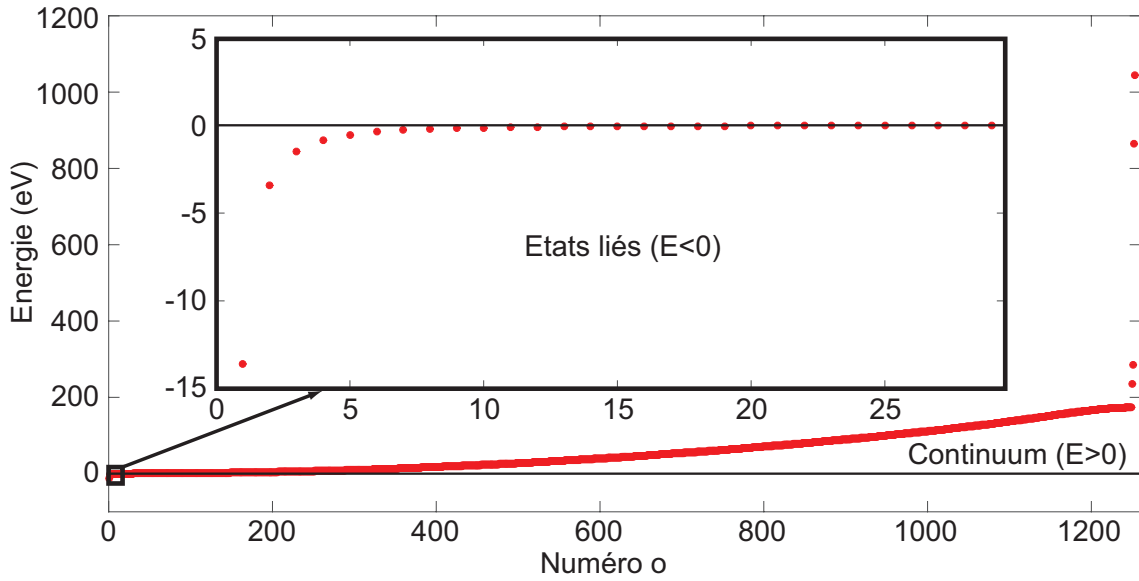


FIGURE 1.19: Etats renvoyés par la diagonalisation de  $\mathbf{H}_l$ .

En effectuant la diagonalisation de la matrice  $\mathbf{H}_l$ , on obtiendra les valeurs propres (i.e. les énergies) et les vecteurs propres (i.e. les fonctions propres) du système atomique considéré. Du point de vue théorique, un problème de potentiel central comme celui-ci possède deux types de solutions, distinguables selon le signe de leur énergie : si  $E < 0$ , la solution est un état lié ; si  $E > 0$ , alors la solution est un état libre (ou état du continuum),  $E = 0$  étant le seuil d'ionisation. Dans les deux cas, le nombre de solutions est infini mais le spectre des états liés est discret, tandis que celui des états libres est continu. La simulation numérique ne pouvant rendre parfaitement compte du concept d'infinité d'états, pour des raisons évidentes, la diagonalisation de

la matrice  $\mathbf{H}_I$  va en fait renvoyer un ensemble fini d'états discrets d'énergies positives et négatives [cf figure 1.19]. Tout en comparant les résultats renvoyés par la méthode numérique avec la théorie, donnons plus de détails quant à la description de ces états.

#### 4.2.1 Etats liés

Les énergies de chaque état lié de l'atome d'hydrogène sont connues analytiquement, elles ne dépendent que de la valeur du nombre quantique  $n$ . On a ainsi :

$$E(n) = \frac{E_I}{n^2} \quad (\text{en eV}) \quad (1.115)$$

$$E(n) = -\frac{1}{2n^2} \quad (\text{en u.a., i.e. en Hartree}) \quad (1.116)$$

avec  $E_I = -13.6 \text{ eV}$  l'énergie d'ionisation de l'atome d'hydrogène.

Comme le montre la figure 1.20(a), les énergies des états liés renvoyées par la méthode des splines sont globalement fidèles aux énergies calculées grâce à l'équation (1.115), sauf pour les états de grands nombres quantiques  $n$ .

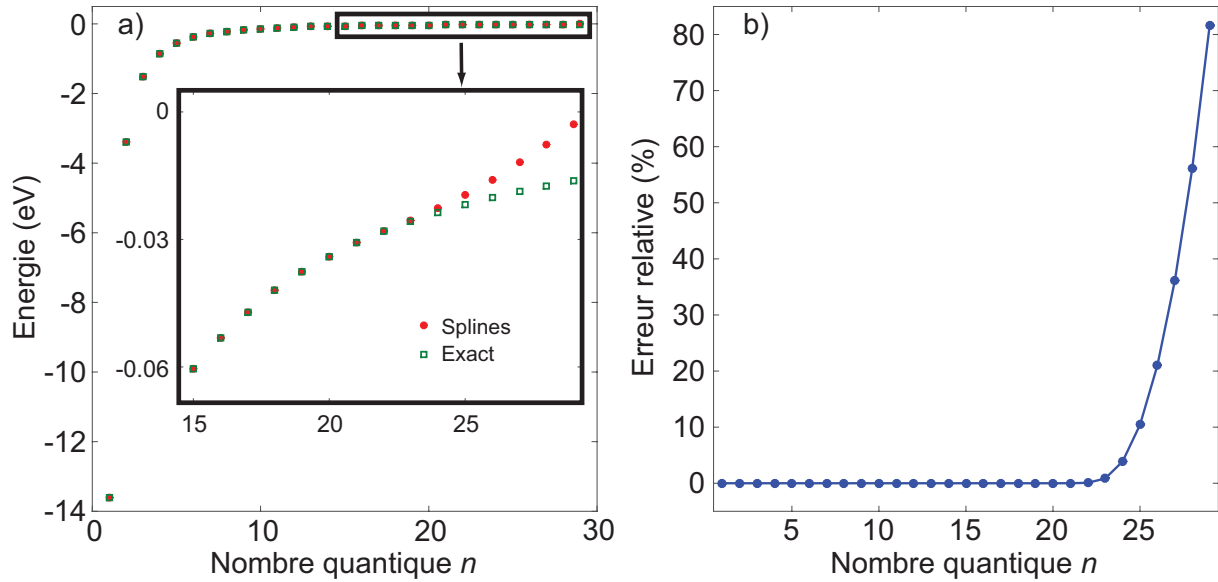


FIGURE 1.20: (a) comparaison des énergies obtenues avec les B-splines/énergies théoriques, (b) erreur relative entre les deux.

En effet, la méthode des B-splines impose de confiner le problème dans une boîte numérique de dimension finie (entre  $r = 0$  et  $r_{\max}$ ), ce qui est en contradiction avec le fait que l'extension spatiale des états liés tende vers l'infini quand  $n$  tend vers l'infini, la valeur moyenne

de la position d'un électron dans un état  $|n, l\rangle$  variant comme  $n^2$ . Le paramètre  $r_{\max}$  va en fait fixer le nombre maximum d'états liés descriptibles par cette technique. Plus précisément, la reproduction fidèle d'une fonction d'onde ne pourra se faire que si elle est entièrement contenue dans la boîte. Fixer une valeur de  $r_{\max}$  revient en fait à ajouter une barrière de potentiel infini en  $r = r_{\max}$  au système. Si la boîte est plus petite que le volume effectivement occupé par l'électron dans l'état  $|n, l\rangle$ , alors le calcul de la structure fournira une fonction d'onde liée, état propre du Hamiltonien modifié par la barrière de potentiel infini. C'est pourquoi l'erreur sur l'énergie [voir figure 1.20(b)] augmente fortement pour les états de nombres quantiques  $n$  supérieurs à 22. La précision avec laquelle il est possible de reproduire les énergies s'applique également aux fonctions d'ondes.

L'expression analytique des fonctions d'ondes à laquelle nous comparons nos résultats est également connue [46]. La figure 1.21 illustre l'interpolation de la fonction d'onde 6g par la méthode des splines. Les courbes en traitillés représentent la contribution de chaque B-spline d'ordre  $k = 7$  [i.e. les termes  $\alpha_i B_i^k$  de l'équation (1.108)]. L'évaluation de la fonction d'onde implique en tout point  $r$  la somme de sept B-splines d'ordre 7.

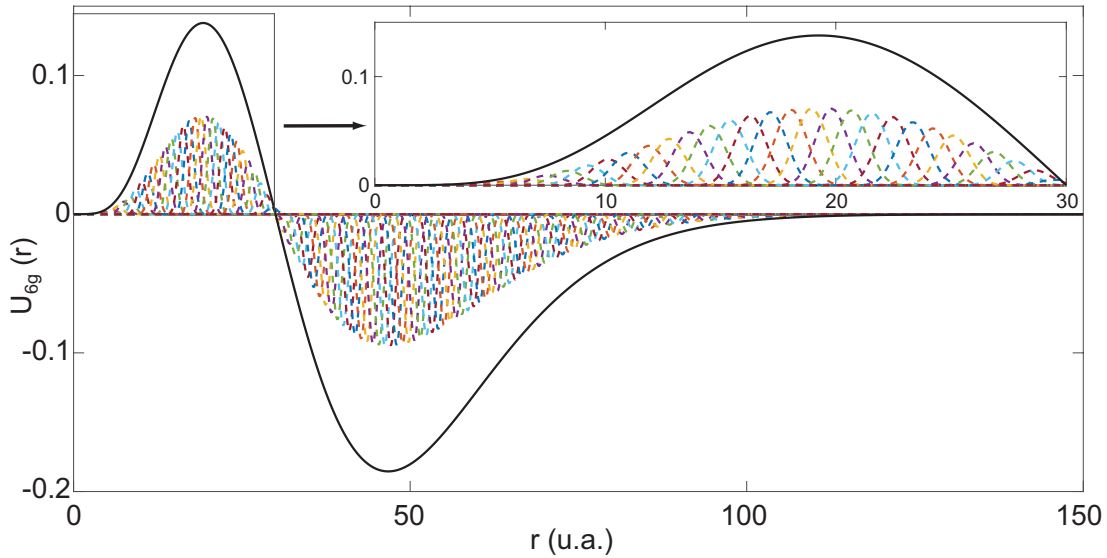


FIGURE 1.21: Expansion spatiale de la fonction d'onde 6g en termes de B-splines (noir plein), ainsi que les fonctions splines qui la composent (courbes en traitillés).

Intéressons-nous maintenant aux fonctions d'onde associées aux énergies que nous renvoie la méthode des B-splines [cf. figure 1.20(a)]. Nous allons comparer les fonctions d'onde des états 1s et 28s renvoyées par la méthode des splines aux solutions analytiques, sachant que l'énergie

du premier est bien décrite (erreur relative de l'ordre de  $10^{-7}$ ), tandis que celle du second ne l'est pas (erreur relative de 82%).

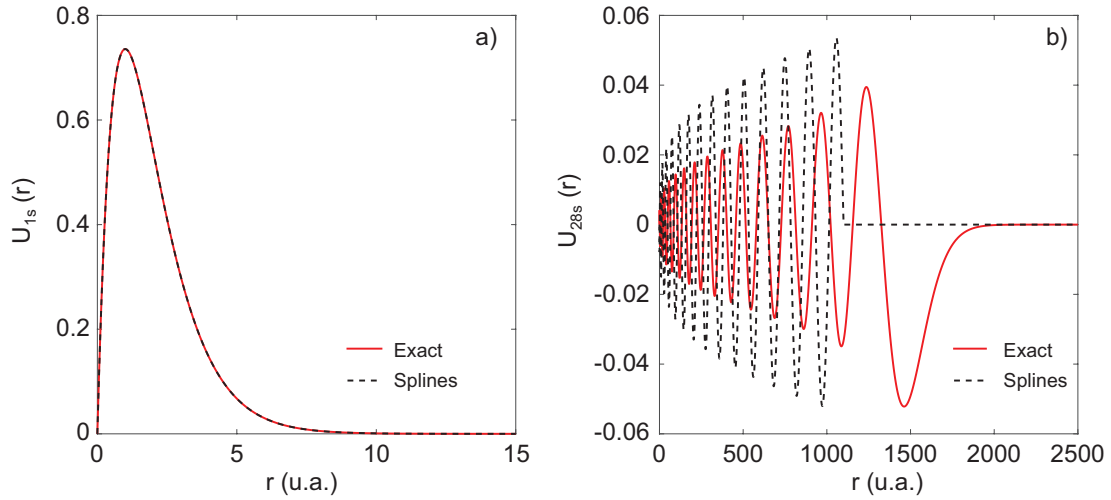


FIGURE 1.22: Fonctions d'onde radiales de deux états liés de l'hydrogène : (a) 1s, (b) 28s.

Ainsi, comme représentée sur la figure 1.22, la fonction d'onde associée à l'état 1s calculée par la méthode des splines est fidèle à la fonction d'onde analytique, à l'inverse de celle de l'état 28s. En effet, la fonction d'onde de ce dernier n'est pas contenue entièrement dans la boîte numérique utilisée, et est donc fortement perturbée par la barrière de potentiel infinie présente en  $r = r_{\max} = 1250$  u.a..

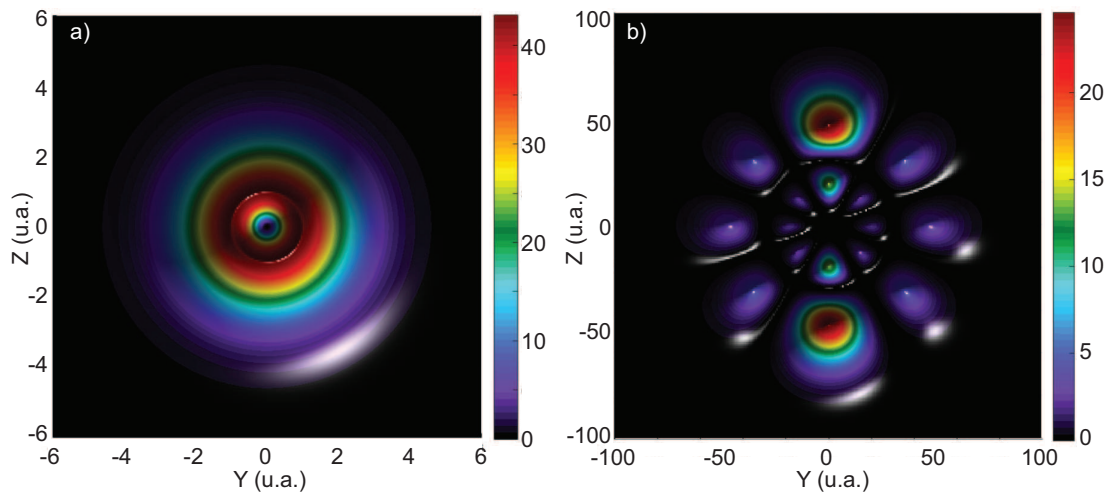


FIGURE 1.23: Densités de probabilité d'un électron dans l'état lié : (a) 1s, (b) 6g.

La méthode des splines ne décrivant convenablement qu'un nombre fini d'états, nous devons nous assurer par la suite que tous les états participant aux processus étudiés sont correctement représentés. Une fois la partie radiale des fonctions d'ondes évaluée par la méthode des splines, on peut réaliser une reconstruction 3D de ces-dernières. En effet, la densité de probabilité  $P_{n,l}(\mathbf{r})$  d'un état  $|n, l\rangle$  s'écrit :  $P_{n,l}(\mathbf{r}) = |\Psi_{n,l}(\mathbf{r})|^2$ .

L'état 1s possède une densité de probabilité qui est invariante angulairement [cf figure 1.23(a)]. En effet, l'harmonique sphérique  $Y_0^0$  mise en jeu n'apporte aucune dépendance angulaire. De plus, la densité de probabilité est à son maximum sur le rayon de Bohr  $a_0$  ( $\simeq 52$  pm). A l'inverse, un état mettant en jeu un nombre quantique  $l \neq 0$  n'est pas invariant angulairement [cf figure 1.23(b)] : l'électron a une probabilité de présence plus importante suivant  $Z$ ,  $m$  ayant été fixé nul.

#### 4.2.2 Etats du continuum

Les solutions de (1.107) pour des valeurs positives de l'énergie se présentent sous la forme d'une famille de fonctions dépendantes d'une variable continue : l'énergie. A l'inverse, le spectre en énergie que renvoie la méthode des B-splines est discret, y compris pour ces valeurs d'énergies positives. En effet, les conditions aux limites imposées par la barrière de potentiel infini ont comme conséquence de quantifier les énergies descriptibles par notre méthode. Cette quantification est semblable à celle des modes longitudinaux de propagation dans une cavité optique, ou pour une corde vibrante, imposée par les conditions aux limites. Les fonctions numériques auxquelles aboutit le calcul peuvent néanmoins être interprétées comme une représentation du continuum. Pour cela, on doit admettre que chacune d'entre elles décrit une bande d'états du continuum, de résolution  $\Delta E$  (cf figure 1.24). Celle-ci est inversement proportionnelle à la valeur de  $r_{\max}$  choisie, de la même manière que la discrétisation en fréquence d'une Transformée de Fourier est d'autant plus fine que la plage temporelle d'observation est grande. Il faudra veiller par la suite à ce que cette

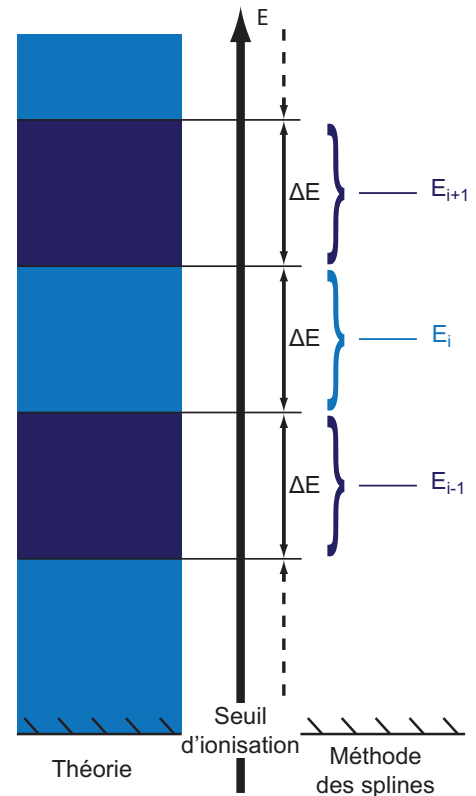


FIGURE 1.24: Schéma d'interprétation des solutions discrétisées des énergies du continuum.

discrétisation du continuum soit suffisamment fine pour bien rendre compte de l'influence de celui-ci sur l'effet étudié. Les états du continuum sont des fonctions très oscillantes (cf figure 1.25), qu'il aurait été complexe d'interpoler avec de simples polynômes. A l'inverse, les splines interpolent aisément ce type de fonctions quasi-sinusoïdales.

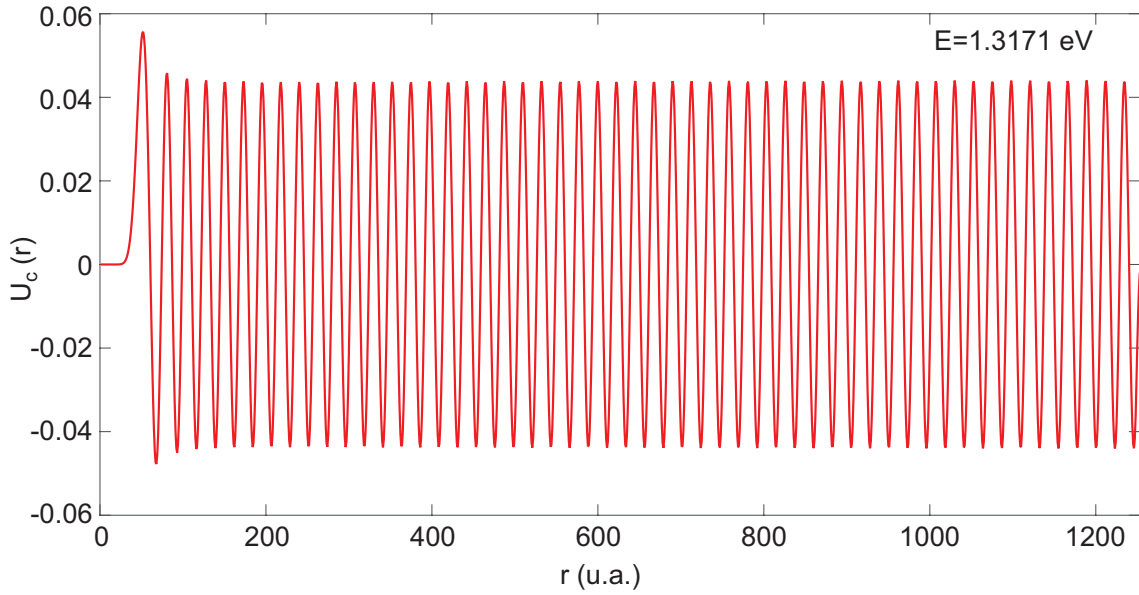


FIGURE 1.25: Exemple de fonction d'onde du continuum.

### 4.3 Généralisation au cas des gaz rares

En dehors du cas de l'hydrogène, certes très utile pour vérifier la validité de la méthode des B-splines mais de peu d'intérêt dans le contexte de la filamentation, nous nous intéresserons à des gaz monoatomiques tels l'argon et le krypton. Dans le cadre des simulations numériques, ceux-ci seront alors modélisés grâce à des pseudo-potentiels, chargés de rendre compte des effets de cœur dûs aux électrons remplissant les couches internes.

Dans le cas des systèmes multi-électroniques, tels que ces deux gaz, nous nous placerons dans l'approximation dite S.A.E., pour **Single-Active Electron** [47]. Celle-ci considère qu'un seul électron est susceptible d'être excité ou ionisé, les autres étant "gelés". En effet, prendre en compte tous les électrons de ces systèmes, ainsi que toutes les corrélations possibles entre eux, requerrait d'avoir recours à des simulations extrêmement lourdes. Les formules de ces pseudo-potentiels ( $V_{Ar}$  pour l'argon,  $V_{Kr}$  pour le krypton) peuvent être trouvées en [Annexe G](#).

### 4.3.1 Etats de cœur

Les pseudo-potentiels  $V_{Ar}(r)$  et  $V_{Kr}(r)$  renvoient des valeurs d'énergies et de fonctions propres tout à fait acceptables, permettant de bien modéliser le gaz monoatomique correspondant. Ils présentent cependant une anomalie : des états de cœur, c'est-à-dire des états dont l'énergie est inférieure à celle (nulle) de l'état fondamental, subsistent.

Dans le cas du krypton, et pour une boîte numérique constituée de 300 splines d'ordre 7 discrétisant un intervalle de 40 u.a., ceux-ci sont représentés par les losanges rouges sur la fig. 1.26. Le carré noir (resp. les ronds bleus) représente l'état fondamental (resp. les quelques états excités décrits par la boîte numérique). La boîte numérique est volontairement choisie petite, pour faire apparaître le plus d'états de cœur possibles : en effet, ceux-ci possédant une énergie encore plus négative que le fondamental, ils sont donc encore plus localisés près du noyau que les autres états.

Pour distinguer l'état fondamental des états de cœur présents pour  $l = 1$  (i.e. pour les états  $p$ ), il suffit de connaître les écarts d'énergie approximatifs entre le fondamental et quelques états liés : on peut alors facilement trouver l'état fondamental en identifiant lequel des états  $p$  permet de faire le mieux coller la structure atomique renvoyée par les B-splines à la réalité.

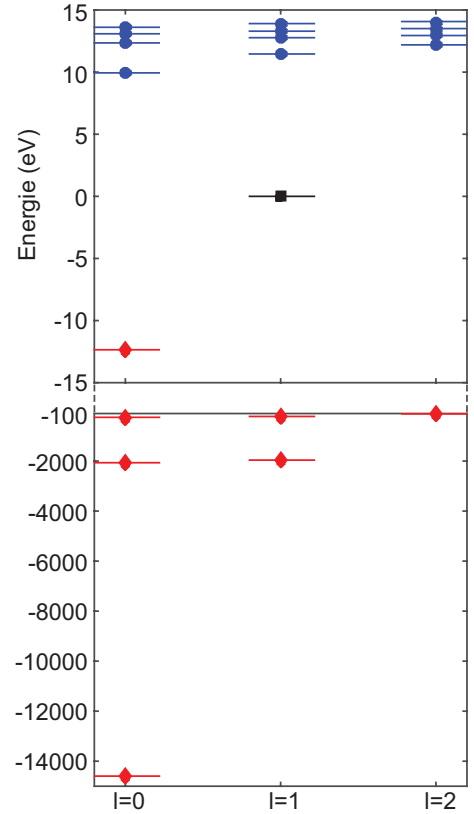


FIGURE 1.26: Énergie des états du krypton, évalués grâce à  $V_{Kr}$ .

### 4.3.2 Suppression des états de cœur, première étape

Censés être remplis, ces états de cœur sont donc pourtant susceptibles de participer activement à l'évolution dynamique du système durant la simulation, et ainsi rendre la pertinence de cette-dernière plus que discutable. Pour surmonter cette difficulté, Muller [48] a établi un protocole, illustré sur la figure 1.27 dans le cas de  $V_{Kr}$ , permettant d'éliminer (la plupart de) ces états de cœur : observant que les fonctions d'onde associées aux états de cœur, qu'il souhaitait éliminer, partageaient un nœud commun avec quelques fonctions d'onde d'états liés localisés principalement proche du noyau, il décida de fixer la borne inférieure de l'intervalle des posi-

tions  $r_0$  en ce nœud. Les fonctions d'ondes renvoyées par la méthode des splines s'annulant aux extrémités de l'intervalle défini, les états de cœur n'étaient alors plus décrits (comme on peut le voir grâce au rectangle grisé dans l'encart de la figure 1.27), tandis qu'un impact négligeable avait lieu sur les états liés les plus proches du noyau. L'extension spatiale des fonctions d'onde des états liés de plus haute énergie faisait qu'elles demeuraient, pour leur part, inchangées.

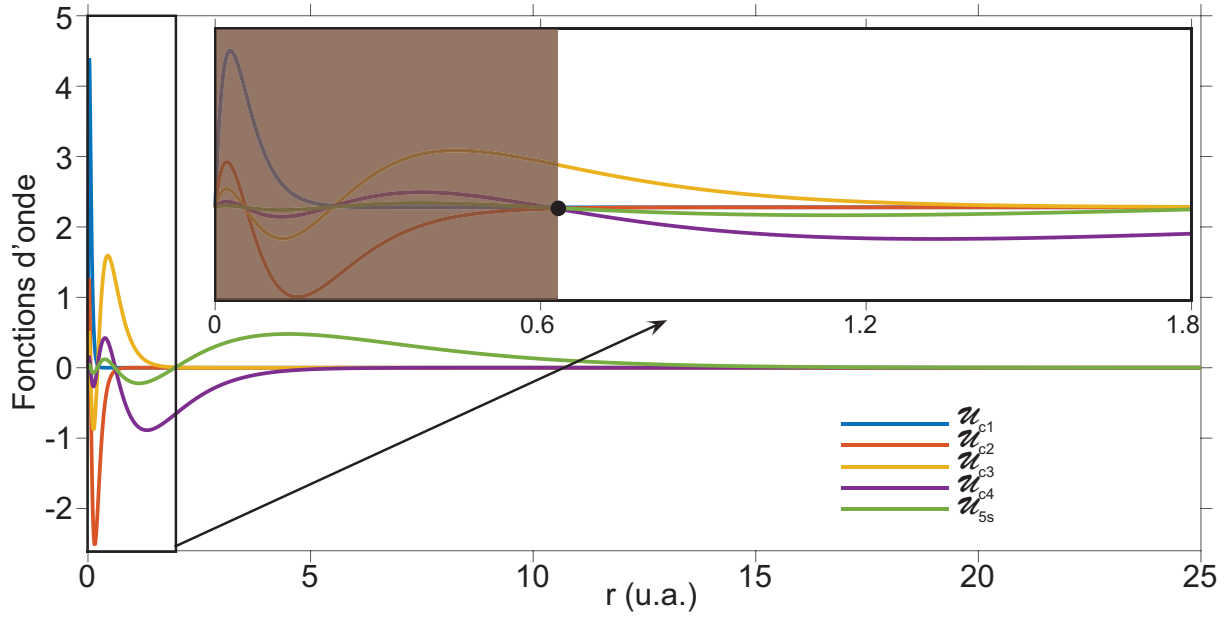


FIGURE 1.27: Procédure pour l'élimination des états de cœur (notés  $cn$ ,  $n = 1$  à  $4$ ) renvoyés parmi les états  $s$  grâce à  $V_{Kr}$  : un nœud commun à plusieurs fonctions d'onde est repéré en  $r = 0.615$  u.a. (rond noir). Fixer  $r_0$  à cette valeur élimine toutes les fonctions d'onde majoritairement localisées entre  $0$  et  $r_0$  (partie foncée de l'encart). La fonction d'onde de l'état  $5s$  n'est pas perturbée par ce choix de  $r_0$ , et est donc seule à subsister avec celle de l'état  $c4$ .

Il appliqua cette procédure au cas de  $V_{Ar}$ , décrivant la structure atomique de l'Argon. Au moment de travailler dans le Krypton, nous avons nous-mêmes utilisé cette technique au sujet de  $V_{Kr}$  (cf figure 1.27). Les pseudo-potentiels  $V_{Ar}(r)$  et  $V_{Kr}(r)$  ont ainsi pu être utilisés dans toutes les simulations numériques d'E.S.D.T. des Chapitres 2 et 3, grâce aux valeurs de  $r_0$  suivantes :

$$V_{Ar} \implies r_0 = 0.5 \text{ u.a.} \quad (1.117)$$

$$V_{Kr} \implies r_0 = 0.615 \text{ u.a.} \quad (1.118)$$

---

### 4.3.3 Suppression des états de cœur, deuxième étape

Cependant, même après avoir effectué ce traitement il demeure malgré tout encore un état de cœur, renvoyé parmi les états  $l = 0$ , en l'occurrence l'état noté *c4* sur la figure 1.27), dont on peut voir que la fonction d'onde n'est pas très perturbée par le fait de fixer  $r_0 = 0.615 \text{ u.a.}$ . Situé à 12.3 eV (resp. 15.2 eV) en-dessous du fondamental dans le cas du Krypton (resp. de l'Argon), il a été vérifié qu'il n'agissait aucunement au cours de nos études concernant l'influence des harmoniques sur le processus d'ionisation (Chapitres 2 et 3). Néanmoins, au moment de traiter la filamentation résonante (Chapitre 4), une résonance à trois photons (à  $\lambda_c$ ) entre le fondamental et cet état de cœur avait lieu sur la plage de longueurs d'onde investiguées, à la fois dans le cas de l'Argon ( $\lambda_c = 244.7 \text{ nm}$ ) et du Krypton ( $\lambda_c = 302.4 \text{ nm}$ ). Cette résonance avait une influence aussi importante qu'irréaliste sur les résultats alors obtenus. Il nous a donc fallu empêcher toute transition vers cet état de cœur. La solution qui a été envisagée consiste simplement à supprimer ce dernier état de cœur. Pour ce faire, nous avons ajouté une correction à  $V_{\text{Ar}}$  et  $V_{\text{Kr}}$ , portant uniquement sur les états *s*, l'état de cœur se trouvant parmi eux. Les pseudo-potentiels alors obtenus sont nommés  $V_{\text{Ar,m}}$  et  $V_{\text{Kr,m}}$  ("m" pour "modifié") et ont été utilisés pour les simulations d'E.S.D.T. présentées dans le Chapitre 4, avec  $r_0$  toujours défini selon (1.117) et (1.118). De plus, ces pseudo-potentiels dépendent du moment angulaire, et à ce titre la résolution de l'E.S.D.T. doit être effectuée dans la jauge des longueurs. Les formules associées à cette correction, pour chacun des deux gaz, peuvent également être trouvées en [Annexe G](#).

### 4.3.4 Comparaison E.S.D.T./réalité

Précisons à ce stade que la méthode des splines ne renvoie qu'un seul état par paire de nombres quantiques  $(n, l)$ , ce qui ne représente pas la réalité de la situation (même pour le cas analytique de l'hydrogène). En effet, la définition d'un état quantique est effectuée par la donnée de son moment cinétique total  $J$  résultant du couplage  $L - S$ , en plus de ses nombres quantiques  $n$  et  $l$ . Plusieurs valeurs peuvent être prises par  $J$  : c'est la structure fine. C'est de cette multiplicité des états de mêmes nombres quantiques  $n$  et  $l$  dont ne rend pas compte notre méthode de résolution. On peut constater la limitation de cette dernière sur la figure 1.28, permettant de comparer les énergies des états du Krypton renvoyés grâce au pseudo-potentiel  $V_{\text{Kr}}$ , en rouge, avec les "vrais" états [49], en noir. On se limite pour cette illustration au premier état excité pour chaque  $l$  tel que  $0 \leq l \leq 3$  (i.e., dans le cas du Krypton, les états  $5s$ ,  $5p$ ,  $4d$  et  $4f$ ).

De fait, cette méthode échouera donc à rendre compte quantitativement de l'effet étudié en expérience. On montrera toutefois par la suite, dans le cas de la filamentation résonante par exemple, que le résultat qualitatif obtenu sera tout à fait probant.

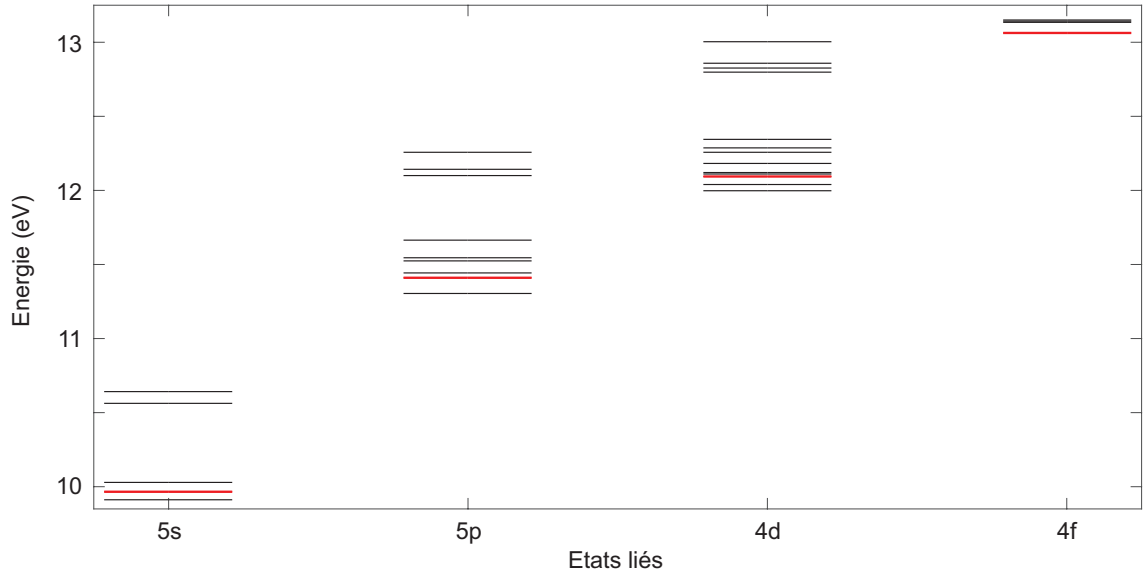


FIGURE 1.28: Comparaison entre les états  $5s$ ,  $5p$ ,  $4d$  et  $4f$  du Krypton, renvoyés par la méthode des splines (en rouge), avec la totalité des états existants, en noir.

Nous venons de détailler le fonctionnement de la méthode des splines, et sa pertinence lorsqu'elle est appliquée au calcul de la structure atomique a été démontrée. Notons que lors d'une simulation, cette étape du calcul de la structure atomique est systématiquement effectuée. En effet, c'est au cours de celle-ci que le calcul des énergies et des états propres du système considéré (utiles pour le traitement des résultats) est effectué, ainsi que celui de la matrice de changement de base, qui est évidemment d'une importance primordiale. Cependant, cette étape ne prend pas plus de quelques minutes à être franchie<sup>18</sup>. La partie la plus longue concerne la résolution de l'interaction entre le champ électrique et le système atomique, que nous allons maintenant aborder.

## 4.4 Programme numérique de l'E.S.D.T.

### 4.4.1 Représentation du champ électrique

Le champ de l'impulsion électromagnétique auquel est soumis le système atomique peut être exprimé en fonction des potentiels vecteur  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$  et scalaire  $U(\mathbf{r}, t)$ . Le champ électrique est défini classiquement, à partir de ces potentiels par la relation ( $\nabla \equiv$  opérateur gradient) :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) - \nabla U(\mathbf{r}, t) \quad (1.119)$$

18. Pour le cas où on utilise le calcul parallèle, de Matlab par exemple.

---

De plus, la taille des systèmes atomiques pouvant d'une part être estimée à quelques dizaines de fois le rayon de Bohr  $a_0$ , et d'autre part que la longueur d'onde des impulsions généralement utilisée est de quelques centaines de nanomètres, alors on peut de manière raisonnable faire l'approximation que le potentiel électrique est spatialement constant dans le volume occupé par l'atome. Dans l'approximation dipolaire électrique, le champ électrique polarisé linéairement selon  $\mathbf{e}_z$  s'écrit donc maintenant de manière plus simple :

$$\mathbf{E}(t) = -\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{A}(t) = -\frac{\partial}{\partial t}A(t)\mathbf{e}_z \quad (1.120)$$

en fixant au passage la condition  $U(t) = 0$ .

#### 4.4.2 Invariance et changement de jauges

Les potentiels vecteur et scalaire ne sont pas définis de manière unique [50] : on peut en effet appliquer ce qu'on appelle un changement de jauge en effectuant les opérations suivantes sur les potentiels :

$$\begin{aligned} \mathbf{A}'(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) + \nabla\chi(\mathbf{r}, t) \\ U'(\mathbf{r}, t) &= U(\mathbf{r}, t) - \frac{\partial}{\partial t}\chi(\mathbf{r}, t) \end{aligned} \quad (1.121)$$

où  $\chi(\mathbf{r}, t)$  est la fonction de jauge. Ainsi, choisir des potentiels particuliers définit un choix de jauge.

#### 4.4.3 Equation de Schrödinger Dépendante du Temps

L'Equation de Schrödinger Dépendante du Temps régit l'évolution de la fonction de d'onde  $\Psi(\mathbf{r}, t)$  de notre atome lorsqu'il est soumis au champ électrique  $\mathbf{E}(t)$ , et s'écrit de manière générale :

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\mathbf{r}, t) = \left[ \frac{1}{2m} [\mathbf{p} - e\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)]^2 + eU(\mathbf{r}, t) + V_H(\mathbf{r}) \right] \Psi(\mathbf{r}, t) \quad (1.122)$$

où  $\mathbf{p}$  est l'impulsion, définie comme suit :

$$\mathbf{p} = -i\hbar\nabla = -i\nabla \text{ (en u.a.)} \quad (1.123)$$

En développant l'équation (1.122) et en ayant fixé  $U(t) = 0$ , on obtient :

$$i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\Psi(\mathbf{r}, t) = \left[ \frac{\mathbf{p}^2}{2m_e} + V_H(\mathbf{r}) - \frac{e}{m_e}\mathbf{p}\cdot\mathbf{A}(t) \right] \Psi(\mathbf{r}, t) \quad (1.124)$$

Lors du développement, le terme  $e^2\mathbf{A}^2(t)/2m_e$  a été supprimé : ne dépendant d'aucune variable canonique ( $\mathbf{r}$  et  $\mathbf{p}$ ), il ne peut en effet induire aucune transition.

---

---

En repartant de l'équation (1.122), et en utilisant la fonction de jauge  $\chi(\mathbf{r}, t) = -\mathbf{r} \cdot \mathbf{A}(t)$ , on peut obtenir une autre équation :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \left[ \frac{\mathbf{p}^2}{2m_e} + V_H(\mathbf{r}) + e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t) \right] \Psi(\mathbf{r}, t) \quad (1.125)$$

L'E.S.D.T. peut alors, dans le système des unités atomiques, être ré-écrite sous la forme :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = [\mathbf{H}_I + \mathbf{H}_I(t)] \Psi(\mathbf{r}, t) \quad (1.126)$$

où  $\mathbf{H}_I$  est défini par l'équation (1.111), dans laquelle on remplace  $V_H$  par  $V_{Ar}$  (respectivement, par  $V_{Kr}$ ) dans le cas où l'on mène notre étude dans l'Argon (respectivement, dans le Krypton).

Pour sa part,  $\mathbf{H}_I(t)$  correspond au terme d'interaction dépendant du temps, et peut être exprimé dans les différentes jauges.

$$\text{jauge des longueurs} \Rightarrow e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (1.127)$$

$$\text{jauge des vitesses} \Rightarrow -\frac{e}{m_e} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}(t) \quad (1.128)$$

La dénomination des deux jauges provient de la présence des variables canoniques  $\mathbf{r}$  [longueurs : équation (1.125)] et  $\mathbf{p}$  [vitesses : équation (1.124)] dans les termes d'interaction avec le champ. Notons également que toute quantité physique qui ne prendrait pas la même valeur dans les deux jauges ne pourrait pas être considérée comme une observable physique, celle-ci devant être invariante par changement de jauge. Par exemple, les populations intra-impulsion ne le sont pas [51].

On fixera la condition initiale de l'équation différentielle (1.126) par l'état fondamental  $\Psi_f$  dans lequel se trouve le système avant l'arrivée du champ électrique :  $\Psi(\mathbf{r}, t = -\infty) = \Psi_{1s}$  pour l'hydrogène,  $\Psi(\mathbf{r}, t = -\infty) = \Psi_{4p}$  pour le krypton, et  $\Psi(\mathbf{r}, t = -\infty) = \Psi_{3p}$  pour l'argon. On peut à ce niveau expliquer pourquoi le nombre quantique  $m$  a été fixé nul. En effet, considérant d'une part que l'état fondamental possède un nombre quantique  $m$  nul – ce qui est exactement vrai pour l'hydrogène, mais pas pour l'argon et le krypton – et d'autre part que la polarisation de notre champ (linéaire selon l'axe  $Z$ ) interdit des transitions  $\Delta m \neq 0$ ,  $m$  sera conservé au cours de l'interaction.

#### 4.4.4 Résolution numérique

En suivant une procédure semblable à celle suivie pour obtenir la structure atomique à la partie précédente, on sépare la fonction d'onde en une partie radiale et une partie angulaire. Ici, elle dépend en plus du temps  $t$  :

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \sum_{i,l} \alpha_i(t) \frac{B_i^k(r)}{r} Y_l^0(\theta, \varphi) \quad (1.129)$$


---

L'E.S.D.T. est résolue de la même manière que décrite précédemment : par décomposition sur une base de fonctions splines. Ainsi, le passage sous forme matricielle s'effectue en remplaçant (1.129) dans (1.126), et en projetant sur les bras  $\langle B_i^k |$  :

$$i\mathbf{S}\dot{\alpha}(t) = [\mathbf{H}_I + \mathbf{H}_I(t)] \alpha(t) \quad (1.130)$$

où  $\alpha(t)$  est un vecteur rassemblant les coefficients de décomposition  $\alpha_i(t)$ . On retrouve bien sur la matrice de recouvrement  $\mathbf{S}$ . En connaissant l'état du système à un instant  $t$ , l'état du système à  $t + \delta t$  peut ainsi être évalué en résolvant numériquement l'équation (1.130). Notons qu'en calculant le produit scalaire  $\mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_z$ , projection du vecteur  $\mathbf{p}$  sur l'axe  $Z$  et intervenant dans l'E.S.D.T. au niveau du Hamiltonien d'interaction<sup>19</sup>, on fait apparaître les opérateurs sinus et cosinus, comme suit :

$$p_z = \mathbf{p} \cdot \mathbf{e}_z = -i \left( \partial r \cos\theta - \frac{\sin\theta}{r} \partial\theta \right) \quad (1.131)$$

Ces opérateurs sinus et cosinus ont pour conséquence de coupler les états entre eux, suivant la règle de sélection  $\Delta l = \pm 1$ , d'une manière que nous aurons l'occasion de voir dans un prochain paragraphe.

#### 4.4.5 Evaluation des observables physiques

Une fois la valeur de la fonction d'onde  $\Psi(\mathbf{r}, t)$  calculée à tous les temps, il est nécessaire d'en retirer toutes les informations qu'elle contient. Ce traitement fait l'objet de cette partie. Nous illustrons notre propos en traitant, en parallèle, l'exemple où un champ fondamental gaussien centré à 800 nm, de durée 31 fs (FWHM), interagit avec de l'hydrogène.

➤ *l'ionisation :*

en champ fort, la structure liée du système atomique peut être très perturbée par les variations du champ électrique et l'atome peut alors se retrouver ionisé. Ainsi, si l'on note  $P_{n,l}(t)$  la probabilité de trouver l'électron dans l'état libre  $|n, l\rangle$  au temps  $t$ , on obtient :

$$P_{n,l}(t) = |\langle \Phi_{n,l} | \Psi(\mathbf{r}, t) \rangle|^2 \quad (1.132)$$

où  $\Phi_{n,l}$  est l'état libre de nombres quantiques  $n$  et  $l$  du Hamiltonien sans champ. Ce-dernier est obtenu en résolvant l'équation de Schrödinger stationnaire par la méthode des B-splines (cf. partie précédente).  $\Psi(\mathbf{r}, t)$  est la solution de (1.126) à l'instant  $t$ . On peut alors en déduire la probabilité d'ionisation  $P_I$ , qui correspond à l'ensemble de la population qui n'est dans aucun état lié à la fin de l'impulsion. Elle s'exprime donc :

$$P_I = 1 - \sum_{n,l} P_{n,l} \quad (1.133)$$

---

19. Ici, en jauge des vitesses. Le raisonnement est le même en jauge des longueurs, avec le terme  $\mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_z$ .

Pour les faibles amplitudes de champ électrique, l'ionisation se comporte de manière perturbative. Dans ce cas, on parle de régime multiphotonique (cf. partie 2.3). Pour être ionisé, le système doit absorber un nombre suffisant de photons pour que l'électron soit arraché au potentiel attractif coulombien. Dans le cas de l'hydrogène (énergie d'ionisation de 13.6 eV) soumis à un champ à 800 nm (l'énergie d'un photon est alors de 1.55 eV), le nombre  $K$  de photons nécessaires pour atteindre le seuil d'ionisation est en théorie de 9. Dans ce cas, la probabilité d'ionisation suit une loi en  $I^K$ , où  $I$  est l'éclairement du champ électrique. Un outil d'ajustement appliqué à la courbe de la figure 1.29, représentant la probabilité d'ionisation en fonction de l'éclairement, entre  $I = 10 \text{ TW.cm}^{-2}$  et  $I = 22 \text{ TW.cm}^{-2}$  nous donne une pente d'environ 7.5, contre une valeur attendue de 9. Cela signifie en fait que l'on n'est déjà plus en régime de champ faible à de tels éclairements. Le processus ne met plus seulement en jeu l'ionisation multiphotonique, mais également l'ionisation par effet tunnel. Une pente effective plus faible que 9 traduit le fait qu'il est plus difficile d'ioniser le système lorsque celui-ci est éclairé par un champ intense.

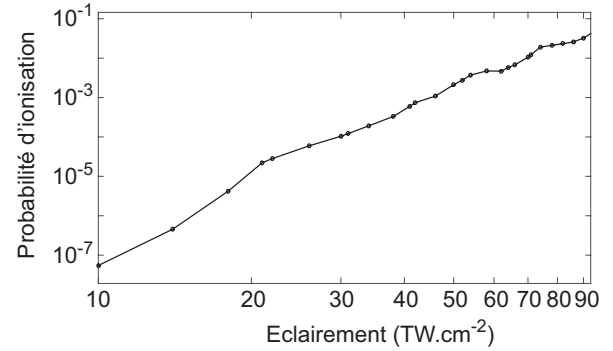


FIGURE 1.29: Probabilité d'ionisation en fonction de l'éclairement, pour un champ gaussien d'une durée FWHM de 31 fs interagissant avec de l'hydrogène.

#### ➤ la polarisation :

la polarisation macroscopique projetée le long de la direction de l'axe du champ, à la pulsation  $\omega_0$ , est définie par la relation suivante :

$$P = \rho_{\text{at}} \times e \times r \times \cos\theta \quad (1.134)$$

où la charge de l'électron  $e$  est posée égale à 1 dans le système des unités atomiques. On en déduit la susceptibilité électrique (complexe)  $\chi(\omega_0) = \chi'(\omega_0) + i\chi''(\omega_0)$ , calculée à la pulsation  $\omega_0$  :

$$\chi(\omega_0) = \frac{P(\omega_0)}{\epsilon_0 E(\omega_0)} \quad (1.135)$$

De plus, comme nous nous intéressons également au rayonnement électromagnétique émis par le dipôle (électron-noyau), nous serons en mesure d'obtenir le spectre d'harmoniques ré-émis par l'atome, en faisant la Transformée de Fourier de la polarisation.

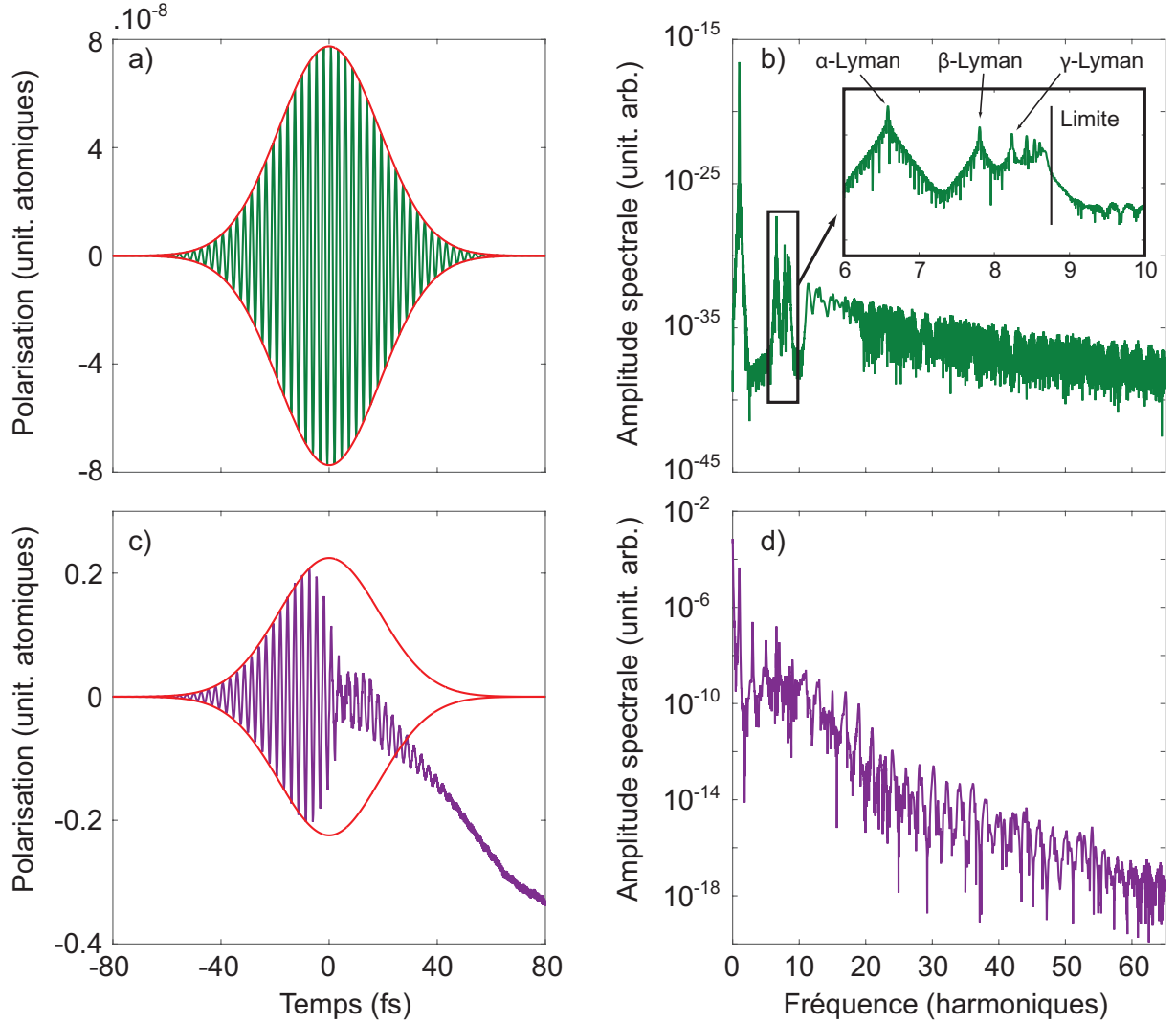


FIGURE 1.30: Première ligne : champ faible ( $0.1 \text{ MW.cm}^{-2}$ ). Deuxième ligne : champ fort ( $74 \text{ TW.cm}^{-2}$ ). Colonne de gauche : polarisation en fonction du temps, l'enveloppe du champ étant représentée en rouge. Colonne de droite : spectre d'harmoniques.

La figure 1.30 représente la polarisation en fonction du temps (colonne de gauche, l'enveloppe du champ étant représentée en rouge), ainsi que le spectre d'harmoniques (colonne de droite), permettant de comparer le cas champ faible (première ligne, champ à  $0.1 \text{ MW.cm}^{-2}$ ) avec le cas champ fort (deuxième ligne, champ à  $74 \text{ TW.cm}^{-2}$ ). Notons que la valeur d'éclairement de  $0.1 \text{ MW.cm}^{-2}$  est, dans ce manuscrit, la valeur qui est systématiquement utilisée pour déterminer l'indice de réfraction linéaire  $n_0$ . On constate que pour un faible éclairement du champ, la polarisation [figure 1.30(a)] ne fait que suivre les oscillations du champ électrique : on est en régime linéaire. Cette dépendance linéaire se traduit également sur l'allure du spectre

rayonné par le dipôle [figure 1.30(b)] : celui-ci ne rayonne qu'aux fréquences présentes dans le champ, en l'occurrence à la seule fréquence fondamentale. On peut cependant noter la présence de raies d'émission (faibles), ne correspondant à aucune harmonique du champ. Ces raies correspondent en fait à la série de Lyman, dont les premières valeurs ainsi que la valeur limite sont recensées dans le tableau 1.3. Cette série de raies correspond à des transitions entre les niveaux de nombre quantique  $n$  supérieur ou égal à 2 vers le niveau fondamental (i.e., à  $n = 1$ ).

| Notation        | Transition           | $\lambda$ (nm) | Ordre |
|-----------------|----------------------|----------------|-------|
| $\alpha$ -Lyman | $n = 2$ vers $n = 1$ | 121.5 nm       | 6.58  |
| $\beta$ -Lyman  | $n = 3$ vers $n = 1$ | 102.5 nm       | 7.80  |
| $\gamma$ -Lyman | $n = 4$ vers $n = 1$ | 97.2 nm        | 8.23  |
| Limite          | —                    | 91.2 nm        | 8.78  |

TABLE 1.3: Série de Lyman. L'ordre est défini comme le rapport entre la longueur d'onde fondamentale et la longueur d'onde associée à chaque transition.

La mise en évidence des raies de la série de Lyman implique que, bien qu'en régime de champ faible, un peu de population a été transférée dans des états excités. A la fin de l'interaction, les cohérences induites entre chacun de ces états excités et l'état fondamental produisent les oscillations observées sur la figure 1.30(c), représentant la polarisation de l'électron en régime de champ fort. Dans ce cas, cette dernière ne suit plus linéairement le champ électrique. En particulier, à la fin de l'interaction, l'électron est suffisamment séparé du noyau pour ne plus être attiré par lui : le milieu est

alors partiellement ionisé. Dans ce régime, le dipôle va rayonner des fréquences qui ne sont pas présentes initialement dans le spectre du champ, mais qui correspondent à des harmoniques de celui-ci [figure 1.30(d)]. L'hydrogène étant centro-symétrique, tout comme le sont l'argon et le krypton, le spectre d'harmoniques ne peut alors mettre en jeu que des harmoniques d'ordres impairs. Pour un éclairement pic de  $74 \text{ TW} \cdot \text{cm}^{-2}$ , le dipôle rayonne des harmoniques dont l'ordre peut aller jusqu'à 130. Pour cette gamme d'éclairements, il est alors clair qu'il n'est pas opportun de développer la réponse optique de l'atome en série de Taylor, comme il est habituellement fait en théorie des perturbations. Notamment, se pose la question de l'influence des harmoniques du champ électrique sur le processus de filamentation, à laquelle nous apporterons une réponse dans les prochains Chapitres de cette thèse.

➤ l'indice de réfraction  $n$  :

il dépend de l'éclairement  $I$  et est calculé à la pulsation  $\omega_0$  via la relation :

$$n(I, \omega_0) = \sqrt{1 + \chi'(\omega_0)} \quad (1.136)$$

où  $\chi'(\omega_0) = \Re[\chi(\omega_0)]$ . On s'intéressera en fait plus particulièrement à la variation  $\Delta n$  de l'indice de réfraction :

$$\Delta n = n - n_0 \quad (1.137)$$

La figure 1.31 représente la variation  $\Delta n = n - n_0$  de l'indice de réfraction en fonction de l'éclairement pic du champ. On peut voir sur celle-ci que, en régime de champ faible, l'indice de réfraction augmente linéairement avec l'éclairement pic du champ : il suit en fait la loi en  $n_2 I$  de l'effet Kerr. Pour de plus hautes valeurs de l'éclairement, cette loi n'est plus vérifiée : la variation de l'indice sature à environ  $I = 31 \text{ TW.cm}^{-2}$ , puis devient négatif pour un éclairement pic d'une valeur d'environ  $42 \text{ TW.cm}^{-2}$ . Cette observable est d'un intérêt particulier puisque la stabilisation du processus d'auto-guidage va avoir lieu lorsque celle-ci s'annulera, traduisant le fait que les effets focalisants ( $\Delta n > 0$ ) et défocalisants ( $\Delta n < 0$ ) se compensent. On peut donc en conclure qu'un filament produit par notre impulsion dans l'hydrogène va se stabiliser à un éclairement pic avoisinant  $42 \text{ TW.cm}^{-2}$ .

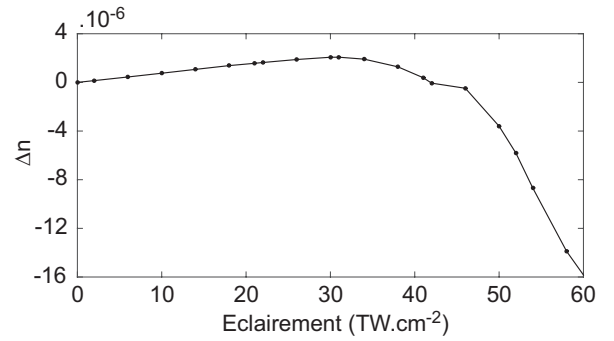


FIGURE 1.31: Variation de l'indice de réfraction en fonction de l'éclairement, pour un champ gaussien d'une durée FWHM de 31 fs interagissant avec de l'hydrogène.

#### 4.4.6 Boîte numérique et convergence des résultats

De la même manière que pour la simulation d'une propagation d'un faisceau laser, exposée dans la partie 2, nous devons ici aussi nous assurer de la convergence de la résolution de l'E.S.D.T.. Cette vérification est effectuée en modifiant la valeur des paramètres de la simulation influençant les discrétisations spatiale et temporelle du système. Dès lors, une quantité physique dont la valeur n'aura pas (ou très peu) changé à la suite de cette modification sera dite convergée. Notons qu'il est tout à fait possible qu'une boîte numérique construite avec certaines valeurs de paramètres assure la convergence d'une certaine quantité physique, et échoue à le faire pour une autre. Ces paramètres, quant auxquels il faut alors demeurer vigilant, sont les suivants :

- 
- *la taille de la boîte numérique* : confinant le système atomique dans une boîte numérique, en l'occurrence une sphère de rayon  $r_{\max}$ , nous devons veiller à fixer une taille de boîte qui, de manière semblable à ce qui a été défini pour les simulations de propagation, contienne efficacement le problème. En effet, au cours de l'interaction avec le champ électrique extérieur, des électrons sont susceptibles d'être libérés (ionisation du milieu), et ainsi de s'éloigner du noyau avec une vitesse dont la valeur est reliée à leur énergie. Cet éloignement doit pouvoir suivre son cours pendant le temps que dure l'interaction. Or, la barrière de potentiel infini en  $r_{\max}$  génère une réflexion totale de tout électron qui l'atteindrait, et qui reviendrait ensuite interférer artificiellement au centre de la boîte numérique. De plus, comme nous l'avons vu précédemment,  $r_{\max}$  définit également la densité d'états du continu. Notons que la valeur de ce paramètre  $r_{\max}$  n'a aucune influence sur le temps de calcul de la simulation.
  - *le nombre de splines* : plus ce nombre est grand, plus le temps de calcul le sera également. Dans notre cas, i.e. en fixant la multiplicité des points extrêmes à  $k - 1$  et celle de tous les autres à 1, le nombre de splines est défini comme suit :

$$N = y + k - 4 \quad (1.138)$$

où on rappelle que  $y$  définit le nombre de points-supports discrétisant l'espace.

- *le nombre total de moments angulaires* : ce paramètre est capital, puisqu'il participe grandement à une description convenable des états mis en jeu lors des processus étudiés : pour chaque augmentation d'une unité de ce paramètre, le nombre d'états décrits augmente d'une valeur égale au nombre de splines  $N$ . Nous définissons le paramètre  $l_{\max}$ , qui correspond à la valeur du nombre quantique  $l$  des états liés de  $l$  le plus élevé renvoyés par la méthode des splines. Le nombre total de moments angulaires vaut alors  $l_{\max} + 1$  (pour comptabiliser le nombre quantique  $l = 0$ ). De plus, il a été montré que la valeur de ce paramètre dépend de la jauge utilisée [52] : elle doit en effet être plus importante quand le calcul est fait dans la jauge des longueurs (i.e. avec le terme d'interaction  $\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}$ ) que quand il est fait dans la jauge des vitesses (i.e. avec le terme d'interaction  $-\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}$ ), ceci afin de faire converger la simulation.
- *la discrétisation temporelle* : lors de la propagation temporelle de l'E.S.D.T., l'erreur sur l'évolution de la fonction d'onde dépend du pas d'intégration  $\delta t$ . Un compromis doit être trouvé sur la valeur à utiliser, qui doit être assez élevée pour permettre une évaluation correcte de cette évolution, mais pas trop non plus pour éviter un temps de calcul trop long. Nous définissons ainsi le paramètre de nombre de points par cycle optique du champ électrique fondamental :  $x$ . Au moment de traiter de l'influence des harmoniques sur le processus d'ionisation, il faudra également faire attention à ce que ce paramètre décrive

---

correctement le(s) champ(s) harmonique(s).

Les deux premiers paramètres,  $r_{\max}$  et  $N$ , chacun à leur façon, sont ainsi importants pour la bonne description du système étudié. Mais ils fixent également, ensemble et de manière indirecte, le paramètre de discrétisation spatiale  $\Delta r$ . Cet espacement (moyen, si la séquence de points n'est pas linéaire) est en effet défini comme :

$$\Delta r = \frac{r_{\max}}{N} \quad (1.139)$$

Remarquons que cela implique qu'augmenter conjointement la valeur de ces deux paramètres (et seulement ces deux-là) ne veut pas forcément dire que la simulation sera convergée plus efficacement. En effet, on peut très bien imaginer des cas de figure pour lesquels augmenter la valeur de  $r_{\max}$  et  $N$  aboutirait à une diminution de celle de  $\Delta r$ . Ceci aurait pour conséquence une moins bonne description des états localisés proche du noyau et, selon l'étude menée, à des résultats moins convergés. De manière inverse, il est possible de "trop" augmenter la valeur de  $N$ , ce qui aura pour conséquence que des états très énergétiques du continuum (et donc oscillants très rapidement) seront renvoyés par la diagonalisation du Hamiltonien. Par suite, si le pas  $\delta t$  n'est pas assez petit pour assumer de telles oscillations, la simulation aboutira finalement à des résultats moins probants qu'ils l'auraient été avec une valeur de  $N$  moindre.

Ces remarques peuvent paraître contre-intuitives puisque, lors d'une étude de convergence, l'on pourrait avoir tendance à penser qu'en augmentant la valeur de nos paramètres (et donc également, la plupart du temps, l'effort de calcul), on parviendrait à des résultats forcément plus corrects, mais il n'en est rien. En effet, ces paramètres sont liés les uns aux autres, et leur choix doit donc prendre en compte les implications qu'ils ont les uns sur les autres.

#### 4.4.7 Gain apporté par l'utilisation des B-splines

Nous allons dans ce paragraphe aborder le gain à utiliser la base des splines, plutôt que la base des états propres du système. Pour cela, nous allons nous intéresser à la matrice  $\mathbf{p}_z$ , qui exprime le couplage entre l'atome et le champ électromagnétique. Elle sera définie, dans cet exemple, dans une boîte numérique composée de 50 splines d'ordre  $k = 7$  et de 5 moments angulaires. L'allure générale de cette matrice est représentée dans les deux bases sur la figure 1.32.

Ainsi, alors que dans la base des splines, la matrice ne possède que 4.33 % d'éléments non-nuls, ce pourcentage monte à 32 % dans le cas de la base propre. Elle sera donc 7.4 fois plus remplie, ce qui aura une incidence non-négligeable sur le temps de calcul. De plus, la boîte numérique utilisée pour ce bref exemple était volontairement "petite", afin que ce-dernier soit simple. Néanmoins, avec les paramètres que nous recensons dans le tableau 1.4 et qui seront, sauf contre-indication, ceux utilisés dans toutes les simulations d'E.S.D.T. présentées dans la

suite de ce manuscrit, le taux de remplissage d'éléments non-nuls chute à 0.077 % dans le cas de la base des splines, contre 7.4 % pour la base propre, soit environ 100 fois plus : plus les paramètres de la boîte numérique sont élevés, plus l'intérêt à utiliser la base des splines plutôt que la base propre est grand lui-aussi.

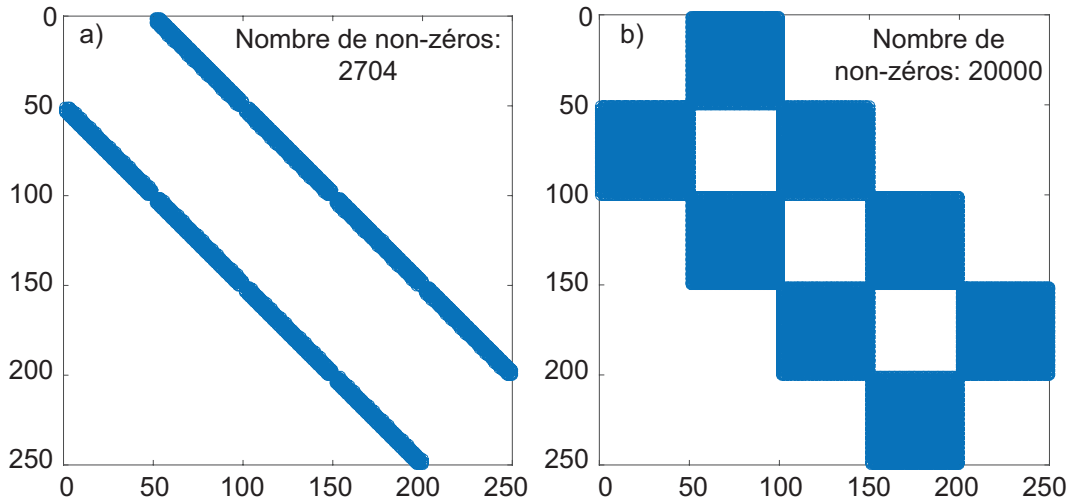


FIGURE 1.32: Comparaison du taux de remplissage de la matrice  $\mathbf{p}_z$  dans la base des fonctions splines (a) et dans la base des états propres de l'hydrogène (b). Les valeurs des « axes » proviennent des cinquante splines pour chacun des cinq états  $l$  définis, donnant une matrice carrée de dimensions 250\*250.

Effectuée dans la base des états propres, la simulation serait alors tout simplement invivable et le rapide calcul à suivre le démontre. Dans la base des splines et en utilisant la boîte numérique définie par les paramètres du tableau 1.4, un calcul typique pour une impulsion de 20 cycles optiques dure environ 6 heures (modulo la puissance de l'ordinateur utilisé, ainsi que l'effort de convergence intrinsèque à la simulation elle-même). Or, le nombre d'éléments non-nuls présents dans la matrice dépend de l'ordre  $k$  des splines. Compte tenu de la façon dont la matrice est remplie dans la base des états propres, i.e. par carrés de côté le nombre de splines, « l'ordre équivalent » dans cette base vaut  $k = 626/7 \approx 90$ . En supposant que le temps de calcul associé à la simulation dépend linéairement de l'ordre  $k$  (ce qui, en fait, le sous-estime) cette même simulation durerait alors plus de 3 semaines !

---

| Paramètre                                                   | Valeur |
|-------------------------------------------------------------|--------|
| Nombre $N$ de splines                                       | 1253   |
| Ordre $k$ des splines                                       | 7      |
| Taille de la boîte $r_{\max}$ (en u.a.)                     | 1100   |
| Nombre total de moments angulaires (valant $l_{\max} + 1$ ) | 26     |
| Nombre $x$ de points par cycle du champ électrique          | 1024   |

TABLE 1.4: Paramètres utilisés pour les simulations d'E.S.D.T..

## 5 Conclusion du Chapitre

Au cours de ce premier Chapitre, nous avons rappelé comment le processus de filamentation est traditionnellement décrit, chose importante pour comprendre dans quel contexte se place notre étude. A la suite de cela, nous avons développé un bon nombre de calculs, aboutissant à l'équation U.P.P.E.. La résolution de cette-dernière nous permet de simuler numériquement la propagation d'un faisceau laser ultra-court et ultra-intense. Grâce au code de propagation alors établi, nous avons pu mettre en images le phénomène d'auto-guidage, ainsi que quelques-uns des processus qui lui sont reliés. L'une d'elles confirme que les éclaircissements typiques atteints lors de la filamentation sont de l'ordre de quelques dizaines de  $\text{TW.cm}^{-2}$ . Dans ces conditions, l'approximation de champ faible permettant d'écrire la polarisation en termes de puissances du champ électrique peut être remise en cause : le modèle établi atteint ici ses limites.

La méthode alors employée pour parer à ce problème est d'utiliser un code en champ fort, en l'occurrence la résolution de l'E.S.D.T., permettant une meilleure évaluation de la réponse optique du milieu dans ces conditions d'éclaircissements. Elle est présentée en dernière partie de ce Chapitre, et repose sur l'utilisation des fonctions B-splines, dont nous détaillons le principe de construction ainsi que les propriétés avantageuses dans le contexte de la résolution de l'E.S.D.T..

---

## 6 Bibliographie

- [1] M. Kolesik, J.V. Moloney, and M. Mlejnek,  
*Phys. Rev. Lett.* **89**, 283902 (2002), *Unidirectional Optical Pulse Propagation Equation*. Cité p.[22](#).
- [2] M. Kolesik, and J.V. Moloney,  
*Phys. Rev. E* **70**, 036604 (2004), *Nonlinear optical pulse propagation simulation : From Maxwell's to unidirectional equations*. Cité p.[22](#).
- [3] A. Couairon, E. Brambilla, T. Corti, D. Majus, O.J. Ramirez-Gongora and M. Kolesik,  
*Eur. Phys. J. Special Topics* **199**, 5 (2011), *Practitioner's guide to laser pulse propagation models and simulation*. Cité p.[22](#).
- [4] J.H. Marburger,  
*Prog. Quant. Electr.* **4**, 35 (1975), *SELF-FOCUSING : THEORY*. Cité p.[24](#).
- [5] F. Vidal, and T.W. Johnston,  
*Phys. Rev. Lett.* **77**, 1282 (1996), *Electromagnetic Beam Breakup : Multiple Filaments, Single Beam Equilibria, and Radiation*. Cité p.[24](#).
- [6] E.L. Dawes, and J.H. Marburger,  
*Phys. Rev.* **179**, 862 (1969), *Computer Studies in Self-Focusing*. Cité p.[24](#).
- [7] P. Drude,  
*Ann. Phys.* **306**, 566 (1900), *Zur elektronentheorie der metalle*. Cité p.[25](#).
- [8] P. Drude,  
*Ann. Phys.* **308**, 369 (1900), *Zur elektronentheorie der metalle ; II. Teil. galvanomagnetische und thermomagnetische effecte*. Cité p.[25](#).
- [9] V. Lorient, E. Hertz, O. Faucher, and B. Lavorel,  
*Opt. Express* **17**, 13429 (2009), *Measurement of high order Kerr refractive index of major air components*. Cité p.[179](#).
- [10] P. B  jot, J. Kasparian, S. Henin, V. Lorient, T. Vieillard, E. Hertz, O. Faucher, B. Lavorel, and J.-P. Wolf,  
*Phys. Rev. Lett.* **104**, 103903 (2010), *Higher-Order Kerr Terms Allow Ionization-Free Filamentation in Gases*. Cité p.[25](#).
- [11] G. Fibich, and G.C. Papanicolaou,  
*Opt. Lett.* **22**, 1379 (1997), *Self-focusing in the presence of small time dispersion and nonparaxiality*. Cité p.[25](#).

- 
- [12] J. Durnin, J.J. Miceli Jr, and J.H. Eberly,  
*Phys. Rev. Lett.* **58**, 1499 (1987), *Diffraction-Free Beams*. Cité p.29.
- [13] J. Durnin, J.J. Miceli Jr, and J.H. Eberly,  
*Opt. Lett.* **13**, 79 (1988), *Comparison of Bessel and Gaussian beams*. Cité p.29.
- [14] P.N. Butcher and D. Cotter,  
*Cambridge University Press* (1990), *The Elements of Nonlinear Optics*. Cité p.31.
- [15] C. Köhler, L. Bergé, and S. Skupin,  
*Physica D* **240**, 963 (2011), *Effect of nonlinear dispersion on pulse self-compression in a defocusing noble gas*. Cité p.32.
- [16] J.H. Eberly, J. Javanainen, and K. Rzazewski,  
*Phys. Rep.* **204**, 331 (1991), *ABOVE-THRESHOLD IONIZATION*. Cité p.34 et p.59.
- [17] L.V. Keldysh,  
*JETP* **20**, 1307 (1965), *IONIZATION IN THE FIELD OF A STRONG ELECTROMAGNETIC WAVE*.  
Cité p.193.
- [18] A.M. Perelomov, V.S. Popov, and M.V. Terent'ev,  
*JETP* **50**, 1393 (1966), *IONIZATION OF ATOMS IN AN ALTERNATING ELECTRIC FIELD*. Cité p.193.
- [19] A.M. Perelomov, V.S. Popov, and M.V. Terent'ev,  
*JETP* **51**, 309 (1967), *IONIZATION OF ATOMS IN AN ALTERNATING ELECTRIC FIELD : II*. Cité p.193.
- [20] M.V. Ammosov, N.B. Delone, and V.P. Krainov,  
*JETP* **64**, 1191 (1986), *Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field*. Cité p.36.
- [21] A.M. Perelomov, and V.S. Popov,  
*JETP* **52**, 514 (1967), *IONIZATION OF ATOMS IN AN ALTERNATING ELECTRICAL FIELD. III*. Cité p.96.
- [22] E. Yablonovitch, and N. Bloembergen,  
*Phys. Rev. Lett.* **29**, 907 (1972), *Avalanche Ionization and the Limiting Diameter of Filaments Induced by Light Pulses in Transparent Media*. Cité p.36.
- [23] P. Sprangle, E. Esarey, and J. Krall,  
*Phys. Rev. E* **54**, 4211 (1996), *Self-guiding and stability of intense optical beams in gases undergoing ionization*. Cité p.37.
- [24] E. Esarey, P. Sprangle, J. Krall, and A. Ting,  
*IEEE J. Quant. Electron.* **33**, 1879 (1997), *Self-Focusing and Guiding of Short Laser Pulses in Ionizing Gases and Plasmas*. Cité p.37.
-

- 
- [25] M.D. Feit, and J.A. Fleck,  
*J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 633 (1988), *Beam nonparaxiality, filament formation, and beam breakup in the self-focusing of optical beams*. Cité p.[39](#).
  - [26] J. Kasparian, R. Sauerbrey, and S.L. Chin,  
*Appl. Phys. B* **71**, 877 (2000), *The critical laser intensity of self-guided light filaments in air*. Cité p.[48](#).
  - [27] R.R. Alfano, and S.L. Shapiro,  
*Phys. Rev. Lett.* **24**, 592 (1970), *OBSERVATION OF SELF-PHASE MODULATION AND SMALL-SCALE FILAMENTS IN CRYSTALS AND GLASSES*. Cité p.[51](#).
  - [28] P. Rairoux, H. Schillinger, S. Niedermeier, M. Rodriguez, F. Ronneberger, R. Sauerbrey, B. Stein, D. Waite, C. Wadekind, H. Wille, L. Wöste, and C. Ziener,  
*Appl. Phys. B* **71**, 573 (2000), *Remote sensing of the atmosphere using ultrashort laser pulses*. Cité p.[51](#).
  - [29] J. Kasparian, M. Rodriguez, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, H. Wille, R. Bourayou, S. Frey, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.-P. Wolf, and L. Wöste,  
*Science* **301**, 61 (2003), *White-Light Filaments for Atmospheric Analysis*. Cité p.[51](#).
  - [30] E. Frejafon, J. Kasparian, P. Rambaldi, B. Vezin, V. Boutou, J. Yu, M. Ulbricht, D. Weidauer, B. Ottonbrini, E. de Saeger, B. Krämer, T. Leisner, P. Rairoux, L. Wöste, and J.-P. Wolf,  
*Eur. Phys. J. D* **4**, 231 (1998), *Laser applications for atmospheric pollution monitoring*. Cité p.[51](#).
  - [31] G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, and J.-P. Wolf,  
*Appl. Phys. B* **78**, 535 (2004), *Remote detection and identification of biological aerosols using a femtosecond terawatt lidar system*. Cité p.[51](#).
  - [32] F. De Martini, C.H. Townes, T.K. Gustafson, and P.L. Kelley,  
*Phys. Rev.* **164**, 312 (1967), *Self-Steepening of Light Pulses*. Cité p.[54](#).
  - [33] E. Yablonovitch,  
*Phys. Rev. A* **10**, 1888 (1974), *Self-phase modulation and short-pulse generation from laser-breakdown plasmas*. Cité p.[54](#).
  - [34] S.C. Wilks, J.M. Dawson, and W.B. Mori,  
*Phys. Rev. Lett.* **61**, 337 (1988), *Frequency Up-Conversion of Electromagnetic Radiation with Use of an Overdense Plasma*. Cité p.[54](#).
  - [35] J.K. Ranka, and A.L. Gaeta,  
*Opt. Lett.* **23**, 534 (1998), *Breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of ultrashort pulses*. Cité p.[55](#).
  - [36] T. Brabec, and F. Krausz,  
*Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000), *Intense few-cycle laser fields : Frontiers of nonlinear optics*. Cité p.[57](#).
-

- 
- [37] E.T.J. Nibbering, P.F. Curley, G. Grillon, B.S. Prade, M.A. Franco, F. Salin, and A. Mysyrowicz, *Opt. Lett.* **21**, 62 (1996), *Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air*. Cité p.57 et p.58.
- [38] P. B  jot, B. Kibler, E. Hertz, B. Lavorel, and O. Faucher, *Phys. Rev. A* **83**, 013830 (2011), *General approach to spatiotemporal modulational instability processes*. Cité p.57.
- [39] F. Th  berge, M. Ch  teauneuf, V. Ross, P. Mathieu, and J. Dubois, *Opt. Lett.* **33**, 2515 (2008), *Ultrabroadband conical emission generated from the ultraviolet up to the far-infrared during the optical filamentation in air*. Cité p.57 et p.58.
- [40] P. B  jot, and J. Kasparian, *Opt. Lett.* **36**, 4812 (2011), *Conical emission from laser filaments and higher-order Kerr effect in air*. Cité p.58.
- [41] P. Maioli, R. Salam  , N. Lascoux, E. Salmon, P. B  jot, J. Kasparian, and J.-P. Wolf, *Opt. Express* **17**, 4726 (2009), *Ultraviolet-visible conical emission by multiple laser filaments*. Cité p.58.
- [42] M. Ferray, A. L'Huillier, X.F. Li, L.A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, *J. Phys. B* **21**, L31 (1988), *Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases*. Cité p.59.
- [43] E. Cormier, *These* (1994), *Etude th  orique de l'interaction entre un syst  me    1 ou 2   lectrons actifs et un champ laser intense*. Cité p.60.
- [44] H. Bachau, E. Cormier, P. Decleva, J.E. Hansen, and F. Martin, *Rep. Progress Phys.* **64**, 1815 (2001), *Applications of B-splines in atomic and molecular physics*. Cité p.60.
- [45] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu and F. Lalo  , *M  canique Quantique I*, p.688 (1973). Cité p.60.
- [46] W. Gordon, *Ann. Phys.* **2**, 1031-1056 (1929), *Calculation of matrices of hydrogen atom*. Cité p.70.
- [47] K.C. Kulander, *Phys. Rev. A* **38**, 778 (1988), *Time-dependent theory of multiphoton ionization of xenon*. Cité p.73.
- [48] H.G. Muller, *Phys. Rev. A* **60**, 1341 (1999), *Numerical simulation of high-order above-threshold-ionization enhancement in argon*. Cité p.74.
- [49] A. Kramida, Y. Ralchenko, and J. Reader, and NIST ASD Team, NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.3) (National Institute of Standards and Technology, 2015), <http://physics.nist.gov/asd>. Cité p.142.
-

- 
- [50] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu and F. Laloë,  
*Mécanique Quantique I*, p.314-327 (1973). Cité p.[78](#).
- [51] P. Béjot, E. Cormier, E. Hertz, B. Lavorel, J. Kasparian, J.-P. Wolf, and O. Faucher,  
*Phys. Rev. Lett.* **110**, 043902 (2013), *High-Field Quantum Calculation Reveals Time-Dependent Negative-Kerr Contribution*. Cité p.[79](#).
- [52] E. Cormier, and P. Lambropoulos,  
*J. Phys. B* **29**, 1667 (1996), *Optimal gauge and gauge invariance in non-perturbative time-dependent calculation of above-threshold ionization*. Cité p.[85](#).
-



## INFLUENCE DES HARMONIQUES SUR LA FILAMENTATION : APPROCHE MICROSCOPIQUE

*S'il n'y a pas de solution, c'est qu'il n'y a pas  
de problème.*

---

— Devise Shadok

---

**R**APPELONS pour commencer que le processus d'ionisation, associé à la propagation d'un champ électrique ultra-intense dans un milieu, est une observable clé du phénomène de filamentation. Ainsi, au moment de modéliser ce dernier, il est nécessaire de pouvoir évaluer correctement la valeur que prend l'ionisation. Pour ce faire, une formule a été établie [1, 2] dans le cas de champs électriques monocouleur, dont il a été montré qu'elle reproduisait fidèlement les mesures expérimentales. De ce fait, lorsque des études impliquent des champs électriques secondaires se propageant avec le champ principal, et ce même s'il existe un travail pionnier s'étant penché sur la question [3], la méthode habituellement utilisée consiste à faire la somme des contributions à l'ionisation de chaque champ séparé [4, 5, 6, 7, 8]. Comme les champs secondaires sont souvent peu intenses, il en résulte que leur contribution à l'ionisation demeure très faible, et qu'en conséquence ils ne sont considérés que comme étant des sous-produits, incapables d'influencer la suite de la propagation. Toutefois, cette hypothèse fut confrontée à des résultats provenant de la résolution de l'E.S.D.T., en présence d'un champ électrique fondamental accompagné d'un faible pourcentage de sa troisième harmonique (TH) [10], et un important désaccord fut mis en lumière concernant le processus d'ionisation, révélant que l'influence de la TH n'était pas si inexistante qu'on le pensait. En effet, celle-ci pouvait, selon les cas, être fortement diminuée (ou renforcée). Au cœur de ce Chapitre seront donc discutées deux façons de calculer la valeur de l'ionisation.

Lors de la première partie de ce Chapitre, nous donnerons plus de détails quant aux résultats évoqués ci-avant, tout en mettant en avant les paramètres ayant une influence sur l'effet observé. Nous présenterons également des résultats expérimentaux confirmant la pertinence des résultats obtenus par résolution de l'E.S.D.T..

Ensuite, nous chercherons à traduire cet effet en une formule empirique permettant son évaluation numérique de manière plus simple et plus rapide que par l'E.S.D.T., et destinée à être implémentée dans un code de propagation. Nous discuterons également à ce moment de l'influence de différents paramètres, tels la longueur d'onde centrale du champ fondamental ou encore la durée des impulsions, sur cet effet.

---

# 1 Résolution de l'E.S.D.T. en présence de troisième harmonique

Ce Chapitre s'intéressant à l'effet de la TH à l'échelle microscopique, nous allons donc comparer les résultats obtenus en résolvant l'E.S.D.T. selon si de la TH est présente, même en faible proportion, ou non. Le modèle d'évaluation de l'ionisation classiquement utilisé en filamentation prétend que nous ne devons attendre aucune différence notable entre les deux cas. Commençons par définir le champ électrique que nous allons utiliser.

## 1.1 Définition du champ électrique

Le champ électrique dépendant du temps  $E(t)$  que nous allons utiliser est composé de la somme d'un champ fondamental de fréquence  $\omega_0$  et d'un champ de fréquence  $3\omega_0$  :

$$E(t) = E_0 f(t) \Re \left\{ \exp [i(\omega_0 t + \varphi_0)] + \sqrt{R_3} \exp [i(3\omega_0 t + \varphi_3)] \right\} \quad (2.1)$$

Plusieurs notations ont été introduites ici :  $E_0 = \sqrt{I_0}$  définit l'amplitude du champ et correspond à la racine carrée de l'éclairement pic  $I_0$  de ce dernier ;  $R_3$  est le ratio en éclairement entre le champ de TH et son fondamental ;  $\varphi_0$  (respectivement  $\varphi_3$ ) est la phase du champ fondamental (respectivement, de la troisième harmonique).

Par la suite, nous préférerons parler en terme de phase relative entre champs fondamental et harmonique, notée  $\Delta\varphi_3$  et donnant le déphasage existant entre les deux champs. La phase relative permet notamment d'exprimer de manière générale les notions de phase constructive [figure 2.1(a),  $\Delta\varphi_3$  valant alors 0] et de phase destructive [figure 2.1(b),  $\Delta\varphi_3$  valant alors  $\pi$ ]. Ces deux valeurs constituent des phases « extrêmes », dans le sens où aucune autre phase ne peut avoir davantage d'effet sur l'ionisation (i.e., l'entraver ou la renforcer) que ces dernières.

Les champs totaux sont représentés sur la figure 2.1(c) lorsqu'ils sont en phase, et sur la figure 2.1(d) lorsqu'ils sont en opposition de phase. On peut ainsi constater que dans le premier cas, le champ se rapproche d'une forme triangulaire, dont le pic est plus élevé que dans le deuxième cas, où le champ se rapproche d'une forme rectangulaire.. Nous serons amenés à observer que ceci ne sera pas sans conséquences sur l'effet observé. L'ajout des harmoniques d'ordres supérieurs avec les phases adéquates achèverait de dessiner ces formes de champ.

De plus, de manière générale, on peut définir la phase relative  $\Delta\varphi_n$  entre le champ fondamental et sa  $n$ -ème harmonique par la relation suivante :

$$\Delta\varphi_n = \varphi_n - n\varphi_0 \quad (2.2)$$

Nous considérons ici que la porteuse est un sinus et que les deux champs partagent la même enveloppe  $f(t)$ , assurant que le ratio  $R_3$  demeure constant tout au long de l'interaction.

De plus, l'enveloppe ne sera pas gaussienne, mais plus proche d'une porte : elle sera composée d'un cycle optique de « montée », d'un cycle optique de « descente », et sera constante entre les deux. Nous aurons l'occasion de revenir sur ce choix particulier par la suite. La durée de l'impulsion est, quant à elle, définie égale à un nombre de cycles optiques du fondamental  $N_c = 20$  (à 800 nm, un cycle optique vaut 2.67 fs : notre champ est donc « allumé » sur un peu plus de 50 fs).

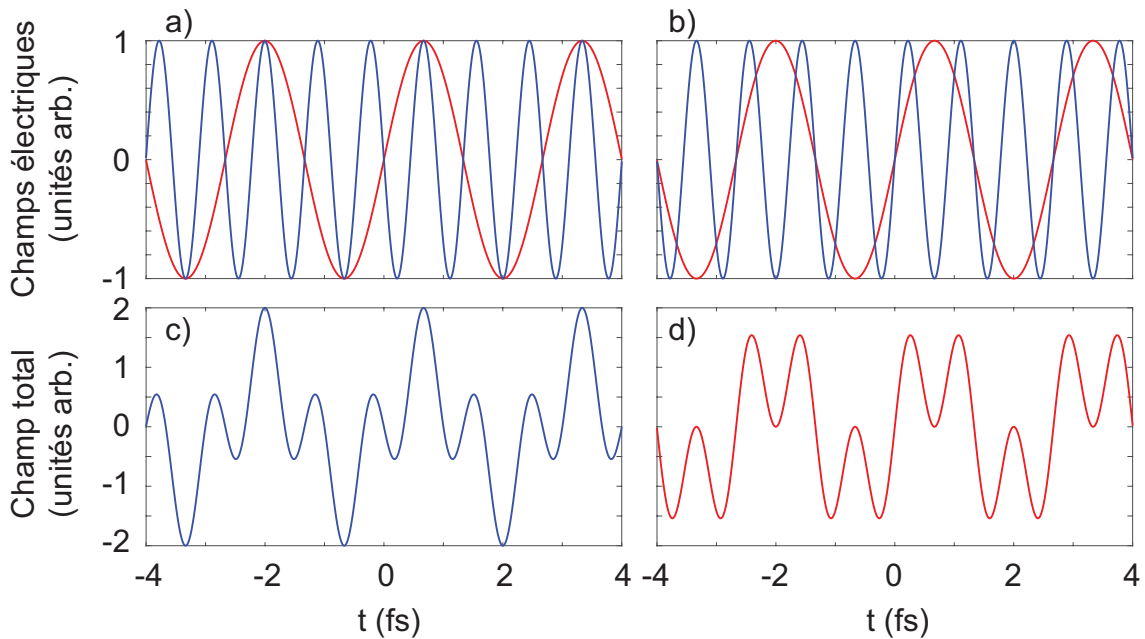


FIGURE 2.1: Champs électriques fondamental (en rouge) et de troisième harmonique (en bleu) : les champs sont (a) en phase ou (b) en opposition de phase. Somme des deux champs : (c) en phase et (d) en opposition de phase.

## 1.2 Impact de la troisième harmonique sur l'ionisation

Dans un premier temps, nous utilisons deux champs électriques différents, à savoir fondamental seul et TH seule avec une valeur de ratio  $R_3 = 1\%$ , dans le cadre du modèle usuel de la filamentation, c'est-à-dire en calculant indépendamment les contributions des champs de fondamental et de TH. On notera également qu'injecter les champs représentés sur les figures 2.1(c) et 2.1(d) dans le modèle PPT (cf Chapitre 1, section 2.2) n'aurait pas de sens, ce dernier étant conçu pour des champs monochromatiques. Nous faisons interagir ces deux champs avec de l'argon, et nous obtenons alors les résultats représentés sur la figure 2.2.

On peut alors observer qu'à partir d'un éclairement d'environ  $10 \text{ TW.cm}^{-2}$ , la contribution due à la TH seule devient négligeable par rapport à celle du fondamental seul.

Par conséquent, lorsque l'on somme les deux contributions, le total obtenu n'est pas significativement différent de la contribution du champ fondamental seul. La conclusion est alors, dans ce cas, que la présence de TH n'a aucun effet sur l'ionisation.

Si, à présent, nous injectons les trois champs électriques (fondamental seul, fondamental+TH en opposition de phase et fondamental+TH en phase) dans une simulation numérique de résolution de l'E.S.D.T., nous obtenons la probabilité d'ionisation pour chacun d'eux en fonction de l'éclairement pic du champ sur la figure 2.3(a). Le pourcentage de TH est ici aussi fixé à 1 % en éclairement.

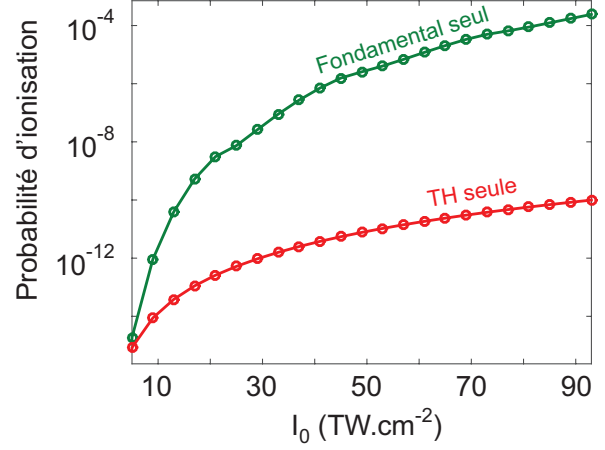


FIGURE 2.2: Probabilité d'ionisation en fonction de l'éclairement pour les cas : fondamental seul (en vert) et TH seule (en rouge), dans le cas où le modèle PPT est utilisé.

### 1.2.1 Influence de la phase relative

On observe ainsi que pour un éclairement de fondamental de  $69 \text{ TW.cm}^{-2}$  par exemple, et par rapport au cas où le fondamental est seul, l'ionisation est environ six fois plus importante lorsque la TH est présente en phase avec son fondamental, tandis que si ces derniers sont en opposition de phase l'ionisation est alors réduite de moitié pour cette même valeur d'éclairement. Nos résultats sont donc en claire opposition avec le modèle établi (figure 2.2), puisque ceux-ci exhibent une dépendance de la valeur de l'ionisation vis-à-vis de celle de la phase relative entre champs fondamental et de TH.

### 1.2.2 Influence de l'éclairement

Un autre moyen de représenter cet effet de la TH sur l'ionisation – et celui qui sera utilisé dorénavant – est d'exprimer un gain  $G$ . Celui-ci est calculé en faisant le rapport entre la probabilité d'ionisation  $W_{\text{TH}}$  pour un champ fondamental accompagné de sa troisième harmonique, définie par ses paramètres  $R_3$  et  $\Delta\varphi_3$ , et la probabilité d'ionisation  $W_{\text{F}}$  pour le même champ fondamental seul :

$$G = \frac{W_{\text{TH}}}{W_{\text{F}}} \quad (2.3)$$

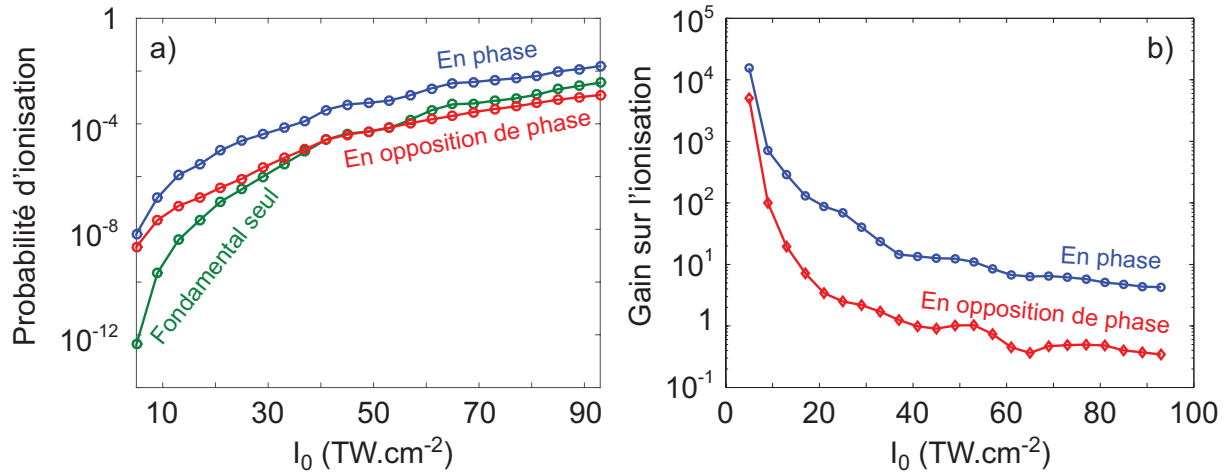


FIGURE 2.3: (a) Probabilité d'ionisation, obtenue en résolvant l'E.S.D.T., en fonction de l'éclairement pour les cas : sans TH (en vert), avec TH en phase (en bleu) et avec TH en opposition de phase (en rouge). (b) Gain sur l'ionisation en fonction de l'éclairement lorsque de la TH est présente en phase avec son fondamental (en bleu), et en opposition de phase (en rouge). La TH est présente à hauteur de 1 % en éclairement.

C'est cette notation qui est employée sur la figure 2.3(b), représentant le gain  $G$  en fonction de l'éclairement pic du champ fondamental  $I_0$ , pour les deux phases extrêmes. Une tendance peut ainsi être dégagée : globalement, à mesure que l'éclairement augmente, la valeur du gain sur l'ionisation décroît. On peut également remarquer que si l'éclairement est inférieur à environ  $40 \text{ TW}\cdot\text{cm}^{-2}$ , aucune phase ne permet de diminuer la valeur de l'ionisation, du moins pas pour cette valeur du ratio  $R_3$ ...

### 1.2.3 Influence du ratio $R$ (et du gaz)

Le ratio  $R_3$  influence également la valeur que prend  $G$ . Pour représenter la dépendance de celle-ci vis-à-vis de celles de  $R_3$ ,  $\Delta\varphi_3$  et  $I_0$ , nous traçons des surfaces de gain, comme sur la figure 2.4, pour lesquelles nous fixons la valeur de  $I_0$ . Il est ici nécessaire de formuler plusieurs remarques. Tout d'abord, précisons les notations que nous allons employer. Ici, nous ne représentons pas directement le gain  $G$ , mais son logarithme népérien. En effet, comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, le gain pouvant prendre des valeurs très grandes à faibles éclaircements et plus modestes à hauts éclaircements, cette représentation permet d'avoir des valeurs relativement proches pour tous les éclaircements utilisés. Ceci facilitera le travail pour effectuer les futurs ajustements.

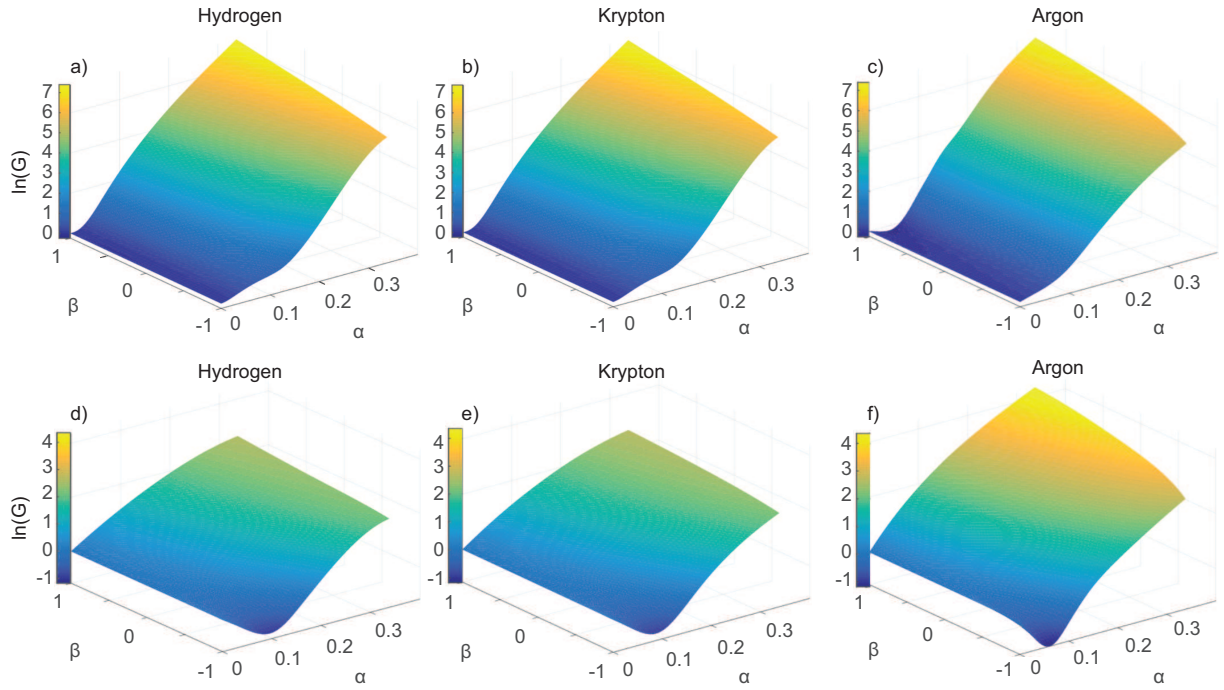


FIGURE 2.4: Surfaces de gain sur l'ionisation dû à la présence de TH, en fonction des paramètres  $\alpha$  et  $\beta$ , définis par les équations (2.5) et (2.6) respectivement. Première ligne : en régime de champ faible ( $5 \text{ TW.cm}^{-2}$ ). Deuxième ligne : en régime de champ fort ( $71 \text{ TW.cm}^{-2}$ ). De gauche à droite : dans l'hydrogène, dans le krypton et dans l'argon.

De plus, on définira le champ électrique comme suit [3] :

$$E(t) = E_0 \left[ (1 - \alpha) \cos(\omega_0 t) + \alpha \cos(3\omega_0 t + \Delta\varphi_3) \right] \quad (2.4)$$

L'équivalence avec notre définition précédente est donnée par la formule suivante :

$$\alpha = \frac{\sqrt{R_3}}{1 + \sqrt{R_3}} \quad (2.5)$$

Il s'avère que cette notation facilite également le travail concernant les ajustements que nous aurons à faire dans la suite de ce Chapitre. La dépendance vis-à-vis de  $\Delta\varphi_3$  étant traduite par une fonction cosinus, on posera [3]

$$\beta = \cos(\Delta\varphi_3) \quad (2.6)$$

Remarquons que les valeurs de gain sont très similaires pour l'hydrogène et le krypton [figure 2.4(a)-(b) et (d)-(e)], tandis qu'elles sont plus élevées dans le cas de l'argon [figure 2.4(c) et (f)]. Sachant que les potentiels d'ionisation des deux premiers gaz sont également très proches (13.6 eV pour l'hydrogène, et 13.99 eV pour le krypton), alors que celui de l'argon est plus élevé

(15.76 eV), cela dénote que le potentiel d'ionisation est le paramètre-clé pour le mécanisme d'ionisation mis en jeu, et que la structure atomique ne joue en fait pas de rôle majeur.

Evidemment, la coupe de chaque surface à  $\alpha = 0$  (i.e., pour le cas sans TH) vaut zéro (i.e.  $G = 1$ ) quelque soit la valeur de  $\beta$ .

Observons qu'en régime de champ faible [figure 2.4(a)-(c)], l'ionisation est renforcée quelques soient les valeurs de ratio et de phase relative. Au contraire, en régime de champ fort [figure 2.4(d)-(f)], l'ionisation peut être soit renforcée soit diminuée, selon les valeurs que prennent ces deux paramètres.

Dans ce cas, on peut distinguer deux sortes de comportement : pour les phases constructives [i.e.  $\cos(\Delta\varphi_3) \geq 0$ ], le gain est toujours positif et strictement croissant vis-à-vis de  $\alpha$  (et donc du ratio  $R_3$  de TH). Au contraire, pour les phases destructives [i.e.  $\cos(\Delta\varphi_3) < 0$ ], certaines valeurs de ratios appartenant à un intervalle  $[0, R_0]$  permettent d'obtenir une ionisation moindre par rapport au cas où le fondamental est le seul pris en compte. Par ailleurs, on observe également que cette valeur de  $R_0$  augmente, globalement, avec celle de  $I_0$  (cf figure 2.5).

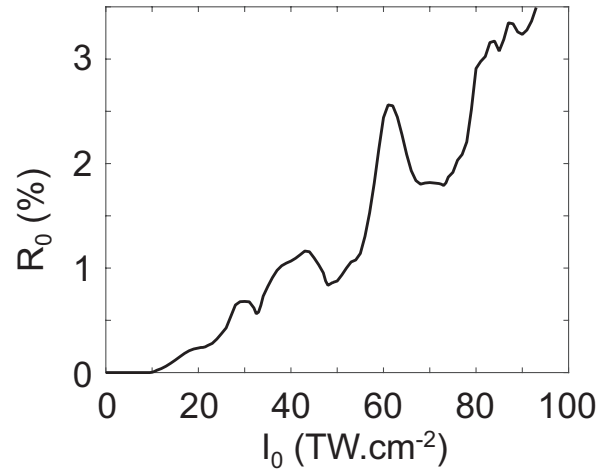


FIGURE 2.5: Evolution de la valeur de  $R_0$  vis-à-vis de l'éclairement de fondamental  $I_0$ , pour  $\Delta\varphi_3 = \pi$ .

### 1.3 Interprétation de l'impact de la TH

Pour remonter à l'origine physique de l'impact de la TH sur le processus d'ionisation démontré ci-avant, plusieurs descriptions peuvent être utilisées.

#### 1.3.1 Interférences de chemins quantiques d'ionisation

Dans le cas des chemins quantiques, on peut identifier trois voies possibles (cf. figure 2.6) pour ioniser l'atome : une première impliquant uniquement des photons de fondamental (terme  $\rho_F$ ), une deuxième impliquant uniquement des photons de TH (terme  $\rho_{TH}$ ), et une troisième mixant photon(s) de l'un et photon(s) de l'autre (terme  $\rho_{Mix}$ ). Cette dernière produit des interférences constructives ou destructives (et donc intensifie ou entrave l'ionisation) selon la valeur de  $\Delta\varphi_3$ . On notera que les interférences ne peuvent avoir lieu qu'entre les deux mêmes états de départ et d'arrivée.

On peut alors calculer la contribution de chaque voie d'ionisation. Trois champs différents sont alors utilisés dans les simulations : un champ fondamental seul, un champ de troisième harmonique seul et un champ égal à la somme des deux précédents. Le premier nous donne accès à  $\rho_F$ , le deuxième à  $\rho_{TH}$ , et le troisième à  $\rho_{Tot} = \rho_F + \rho_{TH} + \rho_{Mix}$ . Toutes les contributions sont rapportées à cette valeur de  $\rho_{Tot}$ , et l'on peut alors tracer la valeur de chacune d'entre elles en fonction de  $R_3$  [figure 2.7(a),(b) et (c), correspondant à trois valeurs d'éclairements  $I_0$  différentes]. Ici, la phase est constructive. On peut alors constater que, contrairement à ce qui était supposé pour effectuer des simulations numériques impliquant champs fondamental et harmonique, la contribution du chemin à deux couleurs n'est absolument pas négligeable [9]. De manière intuitive, on pourrait expliquer ceci par le fait que ce dernier implique deux photons de moins que le chemin « fondamental seul », et serait donc plus efficace à partir d'un certain éclairement de troisième harmonique. Ainsi, il suffit de 0.07% en éclairement de TH à  $I_0 = 10 \text{ TW.cm}^{-2}$  pour que cette contribution à l'ionisation soit majoritaire (0.02% à  $I_0 = 31 \text{ TW.cm}^{-2}$ , et 0.11% de TH à  $I_0 = 71 \text{ TW.cm}^{-2}$ ). La contribution du chemin n'impliquant que des photons UV demeure, quant à elle, négligeable sur la plage de ratios présentés.

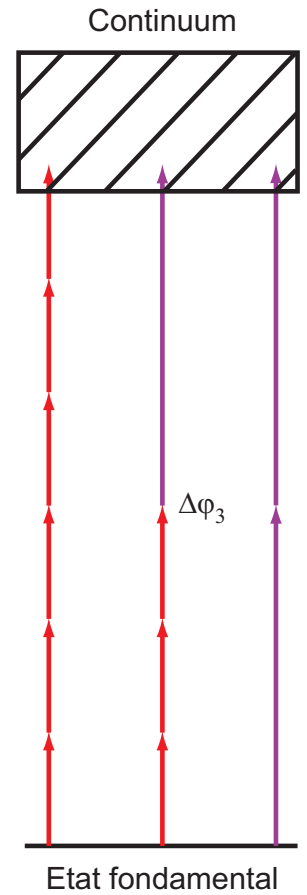


FIGURE 2.6: Différentes voies d'ionisation par un champ fondamental+TH.

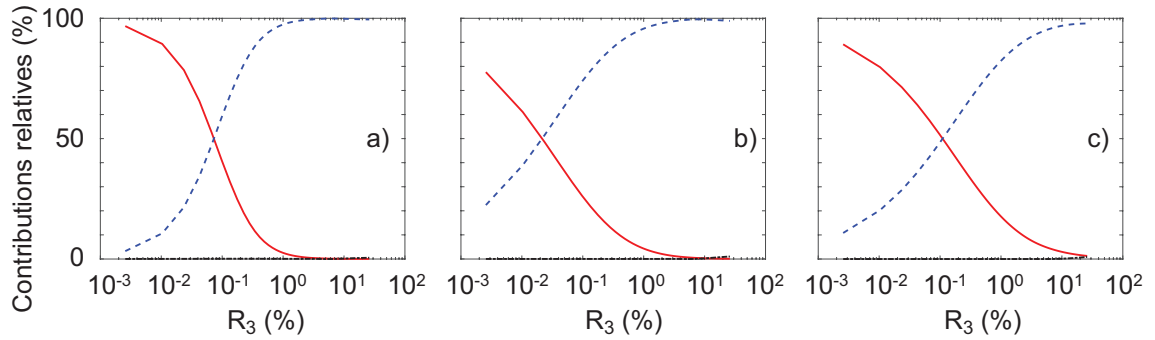


FIGURE 2.7: Contributions relatives des chemins d'ionisation : fondamental seul (en rouge), fondamental+TH (en bleu) et TH seul (en noir). Les deux champs sont en phase : (a) à  $10 \text{ TW.cm}^{-2}$ , (b) à  $31 \text{ TW.cm}^{-2}$  et (c) à  $71 \text{ TW.cm}^{-2}$ .

De plus, observons [cf figure 2.8(a)] que l'effet sur l'ionisation dû à la TH est maximal lorsque les champs fondamental et de TH se recouvrent temporellement. S'ils sont séparés, le gain vaut alors l'unité. Ces résultats sont directement tirés de [10], tout comme ceux représentés sur la figure 2.8(b), correspondant à l'influence de la longueur d'onde centrale du champ UV sur la valeur du gain sur l'ionisation. On peut alors constater que, si un impact sur l'ionisation est visible quelque soit la valeur de la longueur d'onde centrale, la valeur de la phase relative n'a plus aucune influence dès lors que le spectre du champ UV n'est plus contenu dans la bande spectrale de la troisième harmonique. Dans ce cas, la phase relative entre les deux champs varie au cours de l'impulsion, ce qui a pour conséquence que le gain sur l'ionisation prend une valeur moyenne, indépendante de celle de la phase relative.

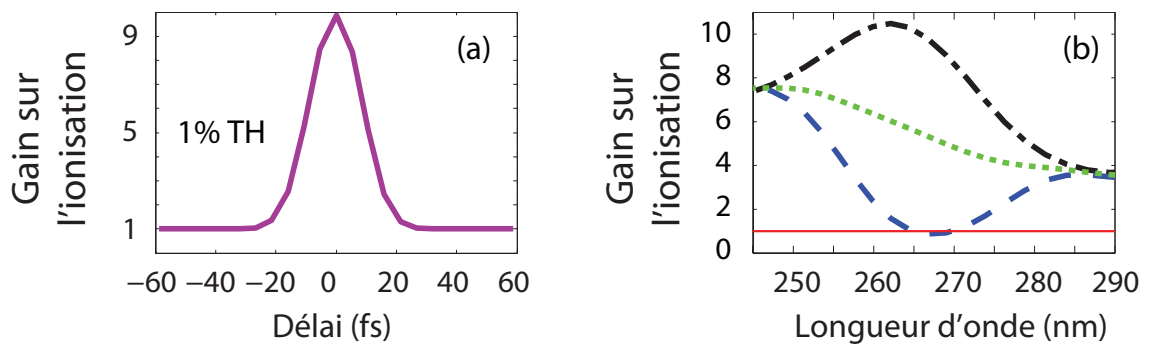


FIGURE 2.8: (a) Gain sur l'ionisation en fonction du délai entre les impulsions de fondamental et de TH; (b) gain sur l'ionisation en fonction de la longueur d'onde centrale du champ UV pour  $\Delta\varphi_3 = 0$  (courbe noire) et  $\Delta\varphi_3 = \pi$  (courbe bleue), la ligne rouge étant obtenue pour le cas fondamental seul. Dans les deux cas,  $R_3 = 1\%$ . Ces résultats sont tirés de [10].

---

### 1.3.2 Maximum du champ électrique total

De manière alternative, l'impact de la TH peut être expliqué en regardant simplement le champ électrique total appliqué au système. Dans ce cas, le renforcement de l'ionisation a lieu lorsque la phase relative entre les deux champs électriques maximise le pic du champ total. Ceci est accompli quand les pics positifs (respectivement, négatifs) du champ fondamental coïncident avec un pic positif (respectivement, négatif) du champ de troisième harmonique [cf figure 2.1(c)].

Sur la figure 2.9, on trace la valeur maximale que prend le champ électrique en fonction de  $\alpha$  et de  $\beta$ . On constate alors

que la carte ainsi calculée possède une allure très proche de celle des cartes de gain, obtenues dans le cas du régime de champ fort [figures 2.4(d),(e),(f)]. Ceci s'explique en sachant qu'au niveau de ce dernier, le régime d'ionisation par effet tunnel est prédominant. Celui-ci étant d'autant plus efficace que le pic du champ prend une valeur élevée, il n'est donc pas surprenant d'observer une telle corrélation à propos des allures de ces différentes cartes.

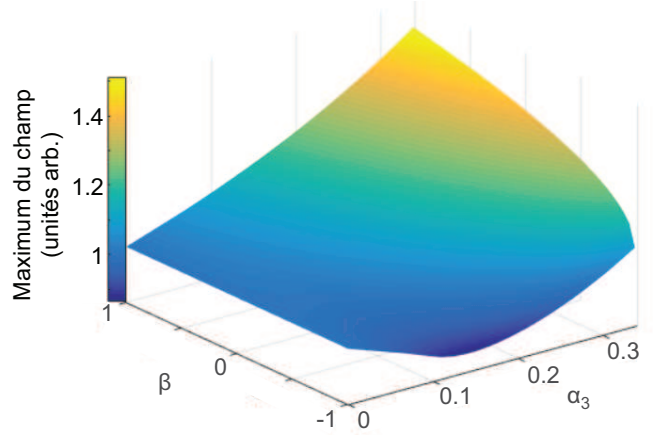


FIGURE 2.9: Valeur maximale du champ électrique en fonction de  $\alpha$  et  $\beta$ .

Les deux interprétations que nous venons d'expliciter peuvent également être utilisées dans le cas de champs dont les fréquences n'ont aucune relation particulière, c'est-à-dire quand la fréquence du deuxième champ ne correspond plus à la TH du champ fondamental. Nous l'avons vu ci-avant, dans ce cas, la valeur de l'ionisation ne dépend pas de la phase relative entre les champs, quand bien même il existe un chemin d'ionisation mélangeant photon(s) de l'un et photon(s) de l'autre. Dans ce cas, du point de vue des interférences de chemins quantiques, les voies d'ionisation mono-couleur et à deux couleurs n'atteignent pas le même état final, ne peuvent donc interférer et l'ionisation est par conséquent indépendante de la valeur de la phase relative. Du point de vue du maximum du champ électrique total cette fois-ci, les pics du champ fondamental ne sont pas synchronisés avec ceux du deuxième champ, quelque soit la valeur de  $\Delta\varphi_3$ .

Il existe cependant des situations pour lesquelles le point de vue du maximum du champ échoue dans la description de l'ionisation. Par exemple, en régime purement multiphotonique, il a été démontré [11] que l'ionisation maximale ne correspond pas à un champ pic maximal [repérable dans notre cas sur la figure 2.4(c) par exemple, pour  $\alpha < 0.1$ ].



---

## 2.1 Mise en forme du champ et gestion de la phase relative

La mise en forme du champ électrique, au niveau de sa porteuse, est réalisé en superposant spatialement et temporellement un faible champ de TH à un champ intense de son fondamental, centré à  $\lambda_0 = 800\text{ nm}$ . La troisième harmonique est fabriquée au moyen d'un module commercial : on génère tout d'abord de la seconde harmonique (SHG) dans un cristal de BBO, que l'on somme ensuite avec le fondamental dans un deuxième cristal de BBO, ce qui donne de la TH [ $1/(1/800+1/400)=266\text{ nm}$ ].

Comme le montre la figure 2.10, et plus en détail la figure 2.11, la phase relative entre les champs fondamental et de TH est contrôlée en insérant deux lames de verre identiques, tournant symétriquement par rapport à un plan perpendiculaire à la direction de propagation, dans le chemin optique du champ fondamental. Faire tourner ces deux lames modifie ainsi légèrement la longueur de ce dernier, et par la même, la valeur de la phase relative  $\Delta\varphi_3$  entre les deux champs, tout en laissant la direction de propagation strictement inchangée.

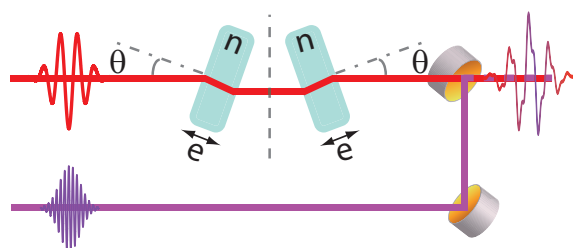


FIGURE 2.11: Contrôle de la phase relative entre champs fondamental et de TH, grâce à deux lames de verre.

Pour calibrer expérimentalement le déphasage induit en tournant les lames, ces dernières ont été placées au sein d'un interféromètre de Michelson. La figure d'interférences était ensuite analysée en fonction de l'angle de rotation des lames, ce qui nous donnait accès à la calibration du système de contrôle de la phase relative. Egalement, l'échantillonnage temporel était limité par le pas minimum du moteur utilisé pour faire tourner les lames, et qui était de 30 points par cycle optique de TH, ce qui correspond à une résolution de 30 attosecondes pour le délai entre les impulsions fondamentale et de TH.

## 2.2 Technique de mesure pour l'ionisation

La technique employée pour la mesure de l'ionisation est nommée technique de défocalisation croisée (cross-defocusing, en anglais) [12, 13]. Elle fait partie des techniques dites pompe-sonde : un faisceau pompe, énergétique et pouvant conduire à des effets non-linéaires, induit une modification des caractéristiques optiques du milieu dans lequel il se propage. Il est croisé avec un faisceau sonde, qui ressentira l'effet induit par la pompe sur le milieu et qui est, quant à lui, peu énergétique (il ne doit pas induire lui-même de modification significative).

Ici, le champ électrique mis en forme au paragraphe précédent constitue le champ pompe. Le champ sonde, quant à lui, correspond à une faible portion prélevée sur le faisceau, en sortie de la source laser<sup>1</sup>. Les deux impulsions sont focalisées par un même miroir parabolique hors-axe en aluminium de focale  $f = 15$  cm, dans une cellule contenant 0.5 bar d'argon, dans laquelle ils intersectent dans le plan horizontal avec un angle d'environ  $4^\circ$ . En jouant sur le décalage temporel entre les deux impulsions, au moyen d'une ligne à délai, on peut alors balayer la dynamique temporelle des effets mis en jeu.

Une fois la zone de focalisation passée, on récupère le faisceau sonde. On place un coronographe sur son trajet, en l'occurrence un disque opaque de la taille qui est celle du faisceau lorsque la pompe est absente, bloquant alors le chemin de la sonde [cf figure 2.12(a)], apposé sur un morceau de verre. Lorsque l'impulsion pompe est présente, elle peut induire une variation  $\Delta n$  de l'indice de réfraction du milieu : quelque soit le signe de cette variation, elle peut être interprétée « comme si » une lentille (convergente si  $\Delta n > 0$ , pour l'effet Kerr par exemple ; divergente si  $\Delta n < 0$ , pour l'ionisation par exemple) était présente au niveau du croisement entre les deux faisceaux. Cette lentille virtuelle, qu'elle soit convergente ou divergente, a pour conséquence de modifier la taille du faisceau sonde en champ lointain [cf figure 2.12(b)], par rapport au cas où la sonde ne ressent pas la présence de la pompe (i.e. lorsque cette dernière arrive après la sonde, ou est tout simplement bloquée). Ici, en plaçant la sonde à un délai de 1 ps après l'impulsion pompe, on s'assure que  $\Delta n$  n'est sensible qu'à l'influence du plasma, soit  $\Delta n = -\rho/2\rho_c$ . En récoltant ce qui dépasse du coronographe avec un photomultiplicateur (ce qu'on appelle alors le « signal ») et en l'analysant, on peut alors quantifier les différents effets observés. Notamment, on peut montrer que le signal est proportionnel à  $\Delta n^2$  : par suite, ce dernier est donc proportionnel au carré de la quantité d'électrons libres produite par la pompe. C'est ainsi que la mesure expérimentale de l'ionisation peut se faire de manière directe. Egalement, plusieurs associations de polariseur+lame  $\lambda/2$  nous permettent de jouer, par exemple, sur l'énergie de l'impulsion sonde ou encore sur le ratio en énergie entre champs fondamental et de TH, le tout en ne changeant pas la polarisation des champs (si on n'est pas trop proche de l'extinction).

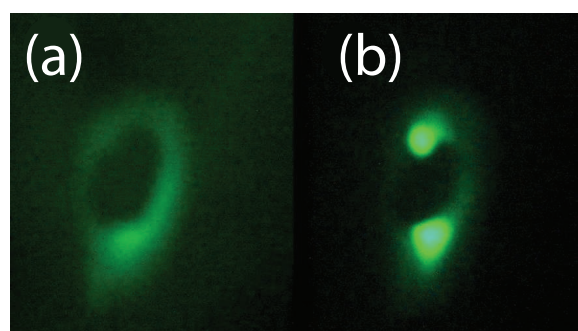


FIGURE 2.12: Photos expérimentales du faisceau sonde : (a) en l'absence de pompe, (b) en présence de pompe.

1. Pour plus d'informations quant à la source laser utilisée, consulter l'annexe  $\mathcal{H}$ .

## 2.3 Présentation des résultats

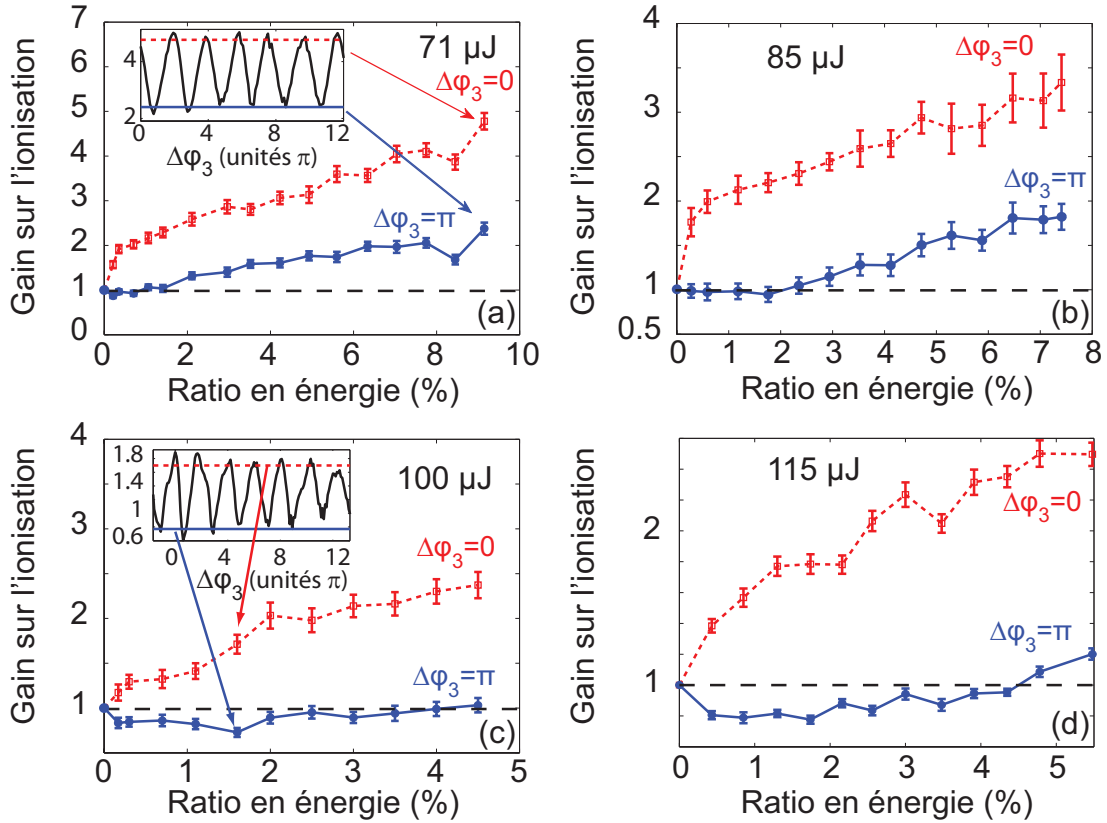


FIGURE 2.13: Résultats expérimentaux du gain sur l'ionisation en fonction du ratio en énergie de TH. Les courbes rouges correspondent à la phase relative constructive, les bleues à la phase relative destructive. Plusieurs énergies (et donc plusieurs éclaircements) ont été étudiées : (a) 71 mJ, (b) 85 mJ, (c) 100 mJ et (d) 115 mJ.

Les mesures sont effectuées pour plusieurs valeurs d'énergie fondamentale. Les résultats sont recensés sur les figures 2.13(a),(b),(c) et (d) représentent le gain sur l'ionisation en fonction du ratio en énergie de TH, exprimé en pourcentages de l'énergie du fondamental, dans le cas des phases relatives extrêmes. De plus, la valeur des éclaircements pics (exprimée en  $\text{TW}\cdot\text{cm}^{-2}$ ) peut être approximée comme valant la moitié de celle de l'énergie (exprimée en microjoules). Les barres d'erreur correspondent à une déviation standard du gain sur l'ionisation mesuré à une phase relative donnée.

Dans les encarts des figures 2.13(a) et (c) est représenté le gain en fonction de la phase relative, dont la valeur est obtenue en faisant tourner les lames de verre, et qui nous permet d'identifier les phases extrêmes.

---

On constate alors que la présence de TH a effectivement une très forte influence sur le mécanisme d'ionisation, un facteur non-négligeable devant multiplier la valeur d'ionisation sans TH pour retrouver celle de l'ionisation en présence de TH. La confirmation expérimentale de l'effet observé grâce aux simulations numériques est donc bien au rendez-vous.

De plus, on peut remarquer que les tendances observées numériquement en fonction de l'éclairement  $I_0$  sont bien reproduites expérimentalement : à mesure que l'énergie (et donc l'éclairement) augmente, la valeur du gain sur l'ionisation diminue d'une part [cf figure 2.3(b)] ; et d'autre part, dans le cas de la phase destructive, la borne supérieure  $R_0$  de l'intervalle pour lequel la TH entrave l'ionisation voit sa valeur augmenter.

---

### 3 Formule empirique pour l'ionisation en présence de TH

Une fois l'importance de l'effet de la TH sur le processus d'ionisation identifiée et confirmée, s'est posée la question de savoir comment en rendre compte dans un algorithme de propagation. En effet, l'ionisation est une observable-clé pour l'étude de la filamentation, et sa bonne évaluation est donc cruciale. De plus, coupler directement l'E.S.D.T. avec un code de propagation est très coûteux en temps de calcul [14]. Ainsi, la solution a été de traduire cet effet en une formule empirique, qui saura à la fois rendre compte de l'effet observé tout en assurant la rapidité de l'évaluation numérique.

Dans la partie précédente, nous avons mis en évidence le fait que trois facteurs avaient une influence sur la valeur du gain  $G$  : l'éclairement pic du champ fondamental  $I_0$ , la phase relative  $\Delta\varphi_3$  entre le champ fondamental et la TH, et le ratio  $R_3$  en éclairement entre ces derniers. La formule a donc été établie en faisant varier ces trois paramètres, de la façon qui sera décrite plus loin dans cette partie, aboutissant finalement à des cartes de gain représentables en fonction de ceux-ci.

#### 3.1 Précisions à propos du champ électrique :

L'ambition de la formule empirique du gain  $G$ , que l'on cherche à établir au cours de cette partie, est de pouvoir être appliquée à n'importe quelle forme d'impulsion. Or, ceci implique que les trois paramètres dont dépend le gain ne demeurent pas nécessairement constants au cours de l'impulsion alors considérée, comme c'est notamment le cas pour nos simulations de propagations pour lesquelles une impulsion de forme gaussienne est employée et filamente. La raison des choix particuliers de définition du champ électrique  $E(t)$ , décrits au début de ce Chapitre, est qu'ils nous permettent de faire une hypothèse simplificatrice à ce propos. En effet, tant que l'ionisation n'est pas trop importante, c'est-à-dire tant qu'elle n'est pas trop sensible à l'historique de l'impulsion, on fait l'approximation que le gain  $G$  peut être confondu avec le taux de gain sur l'ionisation, que l'on note  $\mathcal{G}$  et qui intervient au niveau de l'équation d'évolution de la densité de plasma  $\rho$  :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \rho_{\text{at}} \mathcal{G} W(I) \quad (2.7)$$

Ici, on a négligé les termes de recombinaison et d'ionisation par avalanche.

On rappelle que les paramètres de la boîte numérique utilisée, assurant la convergence des résultats, sont recensés dans le tableau 1.4. Plusieurs gaz sont étudiés, et on rappelle que les potentiels utilisés pour chacun d'eux peuvent être trouvés en [annexe  \$\mathcal{G}\$](#) .

---

Pour calculer les cartes de gain, nous avons fait varier les paramètres de la façon suivante<sup>2</sup> :

- ❑ l'éclairement pic du champ fondamental  $I_0$  prendra 95 valeurs différentes (sans compter la simulation en champ faible, à  $I_0=0.1 \text{ MW.cm}^{-2}$ ), entre  $5 \text{ TW.cm}^{-2}$  et  $93 \text{ TW.cm}^{-2}$ ,
- ❑ la phase relative  $\Delta\varphi_3$  prendra cinq valeurs, régulièrement espacées entre 0 et  $\pi$ ,
- ❑ le ratio  $R_3$  prendra douze valeurs différentes (sans compter le ratio nul, comptant pour le cas sans TH), comprises entre 0.001 % et 26 %.

Ainsi, une carte de gain selon ces trois dimensions est composée de 5856 points, provenant d'autant de simulations individuelles, chacune durant environ trois heures. Toutefois, lancées sur un cluster de calcul permettant d'effectuer plusieurs simulations en parallèle, le temps de calcul estimé pour construire une de nos cartes de gain est d'un peu moins de six jours. La figure 2.4, présentée précédemment, illustre quelques-uns de ces résultats.

## 3.2 Evaluation numérique de l'effet dû à la TH sur l'ionisation

Les cartes de gain calculées numériquement rendent bien compte de l'effet de la TH sur l'ionisation mais sont, en l'état, inutilisables dans un algorithme de propagation. Nous allons donc devoir les traduire en une formule, que l'on pourra appliquer au sein d'un tel algorithme. On dit dans ce cas que l'on procède à l'ajustement de ces cartes.

### 3.2.1 Procédure générale d'ajustement

Observons tout d'abord que les surfaces représentées sur la figure 2.4 sont très lisses, ce qui est un avantage certain au moment de procéder à l'ajustement de celles-ci. Le choix de représenter les cartes de gain en fonction des deux paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  n'est d'ailleurs pas anodin : le comportement de  $G$  vis-à-vis de l'éclairement est en effet plus irrégulier.

La stratégie quant à l'ajustement des cartes de gain est celle-ci : le nombre de paramètres en fonction desquels varie le gain  $G$  étant de trois, on ne peut donc pas procéder en moins de deux étapes, correspondant dans ce cas à l'ajustement d'une surface et d'une courbe (peu importe l'ordre à priori).

Nous avons alors mis en œuvre deux méthodes distinctes, que nous allons à présent exposer. Dans les deux cas, on utilise l'outil `cftool` de Matlab.

---

2. La toute première carte de gain fut en fait établie avec beaucoup plus de points, mais on vérifia que les valeurs données ici suffisent.

---

### 3.2.2 Méthode n°1 : l'interpolation

- lors de cette étape, on commence par l'ajustement des courbes dépendantes de  $\beta$ . L'explication de ce choix est donnée un peu plus loin. La formule alors utilisée est celle des séries de Fourier, permettant d'ajuster une courbe par une somme de fonctions cosinus et sinus. Conformément à ce qui a été expliqué au niveau de la figure 2.4, ce n'est pas le gain qui sera ajusté mais son logarithme népérien, plus facile à traiter. Le gain interpolé sera noté  $G_i$  :

$$\ln[G_i((\alpha, \beta, I_0))] = a_0(\alpha, \beta) + \sum_{n=1}^6 a_n \cos[n\beta w(\alpha, \beta)] + b_n \sin[n\beta w(\alpha, \beta)] \quad (2.8)$$

L'opération est répétée pour toutes les valeurs de  $\alpha$  et de  $I_0$ .

- il reste alors quatorze coefficients [notés  $a_0, a_n, b_n$  ( $n = 1, \dots, 6$ ) et  $w$ ], qui sont en fait des surfaces, à traiter en fonction de  $\alpha$  et de  $I_0$ .

On utilise alors la méthode d'interpolation, contenue dans l'outil cftool de Matlab : ce dernier interpole les quatorze surfaces que constituent les coefficients évoqués ci-avant, et crée une variable (pour chaque coefficient) fonctionnant de la même manière qu'une fonction mathématique, dont les arguments sont  $\alpha$  et  $I_0$ . Ceci nous permet finalement d'évaluer la valeur de  $\ln(G_i)$  assez facilement.

La possibilité d'obtenir un ajustement exact grâce à cet outil d'interpolation, utilisé dans un second temps, constitue la raison pour laquelle on se réserve la dépendance en fonction de  $I_0$ , plus délicate à traiter car plus erratique, pour la deuxième étape.

Pour chaque couple  $(Gaz, \lambda_0)$ , la méthode n°1 a été employée. Toutefois, cette méthode d'interpolation ne peut être employée que par nous. Une formule analytique a alors été établie pour qu'elle puisse être utilisable par tous : cette méthode est celle des polynômes, et le gain obtenu par cette méthode sera noté  $G_f$ .

### 3.2.3 Méthode n°2 : les polynômes

- on commence cette fois-ci par l'ajustement des 95 surfaces du type de celles de la figure 2.4, correspondantes à chaque éclaircissement  $I_0$  employé, en fonction des paramètres  $\alpha$  et  $\beta$ . La méthode choisie est, ici, celle des polynômes, aboutissant à la formule suivante de  $\ln(G_f)$  pour le logarithme népérien du gain ajusté, dont certains coefficients (notés  $p_{ij}$ ) varient avec  $I_0$  :

$$\ln[G_f(\alpha, \beta, I_0)] = A(I_0) \times \ln \left[ 1 + \sum_{i=1}^7 \sum_{j=0}^{7-i} p_{ij}(I_0) \alpha^i \beta^j \right] \quad (2.9)$$

La somme sur  $i$  ne commence pas à zéro (en d'autres mots,  $\alpha$  intervient dans chaque terme), traduisant le fait que lorsqu'il n'y a pas de TH, aucune dépendance vis-à-vis de la phase relative n'existe, puisque  $\ln(G)$  est nul dans ce cas.

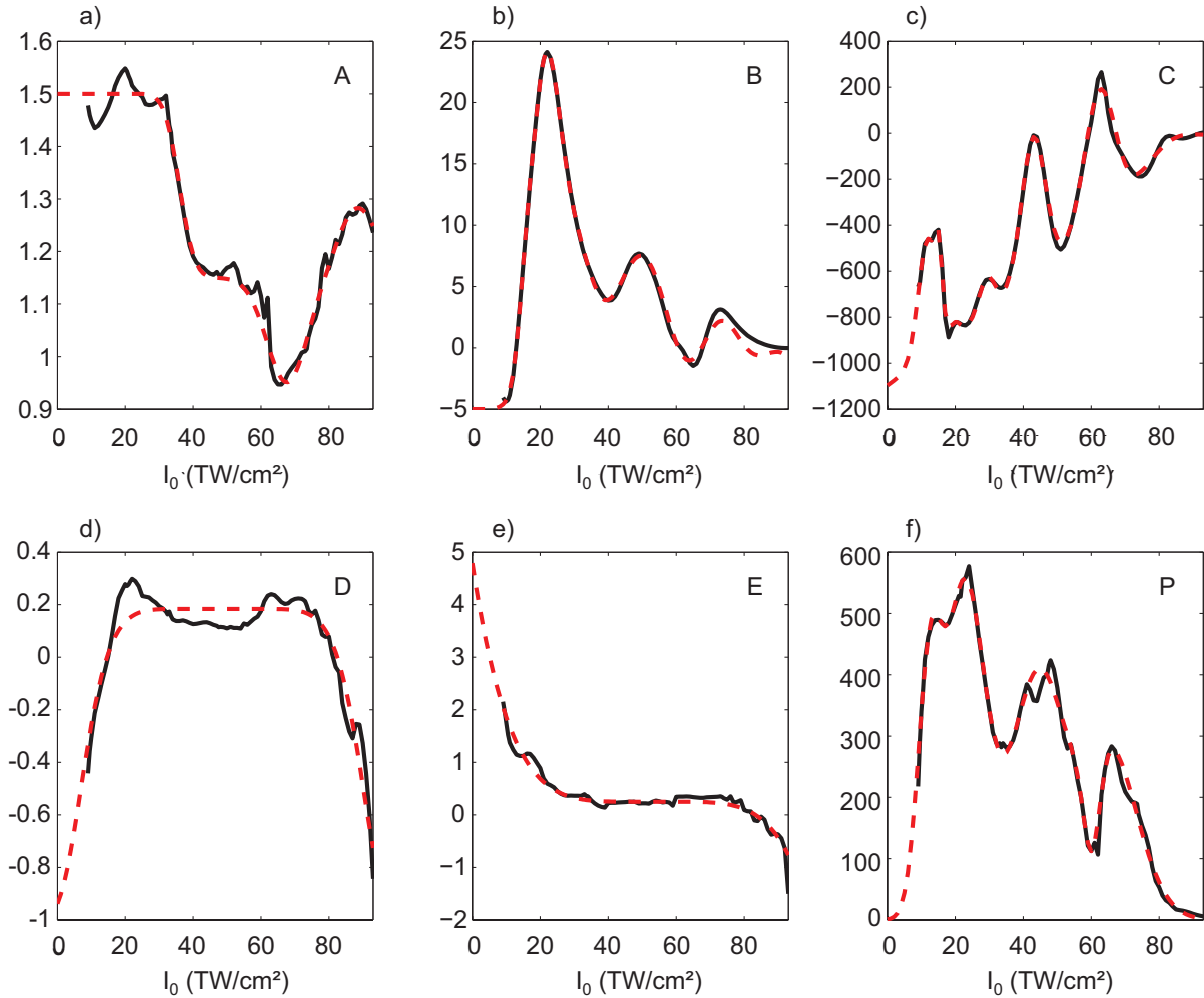


FIGURE 2.14: Coefficients dépendants de  $I_0$  dans la formule (2.10) (en trait plein noir) et leurs ajustements (en traitillés rouges).

Certes peu esthétique puisqu'elle implique pas moins de vingt-neuf coefficients polynomiaux dépendants de  $I_0$ , cette méthode est néanmoins très efficace. De plus, le nombre de coefficients peut être réduit, en remarquant que des corrélations existent entre certains d'entre eux. Lorsqu'on identifie deux coefficients pouvant être reliés, on remplace l'un par son expression en fonction de l'autre : on supprime ainsi un coefficient à chaque fois.

Il apparaît alors des coefficients (nommés  $\mu, \nu, \xi, \sigma$  et  $\tau$ ) dépendants de  $\alpha$  et  $\beta$  mais invariants selon  $I_0$ . En procédant de cette manière, on parvient à réduire les coefficients dépendants de  $I_0$  au nombre de six ! Ils sont désormais nommés de  $A$  à  $F$ , et la formule d'ajustement s'écrit maintenant :

$$\ln[G_f(\alpha, \beta, I_0)] = A \times \ln \{1 + \alpha \times [\mu + B \times \nu + C \times \xi + F \times (D \times \sigma + E \times \tau)]\} \quad (2.10)$$

- enfin, l'ajustement des six coefficients dépendants de  $I_0$  est effectué. Dans le cas des cartes de gain calculées dans l'argon à  $\lambda_0 = 800$  nm, le résultat de cette étape est représenté sur la figure 2.14.

Pour ce cas – le seul que l'on ait traité par cette méthode – la formule de tous ces coefficients est donnée dans un tableau au niveau de l'annexe  $\mathcal{J}$  et a été publiée dans [9].

### 3.3 Influence de la longueur d'onde

Toutes les cartes de gain représentées depuis le début de ce Chapitre correspondent à une longueur d'onde centrale du champ électrique  $\lambda_0 = 800$  nm, mais on peut s'interroger sur la façon dont se comporte le gain en fonction de ce paramètre. Ainsi, plusieurs autres cartes de gain ont été calculées dans l'argon pour des valeurs de  $\lambda_0$  comprises entre 700 nm et 2  $\mu$ m. On représente sur la figure 2.15 la valeur de  $\ln(G)$  en fonction de ces longueurs d'onde et de l'éclairement pic  $I_0$ , dans le cas où de la TH est présente en phase avec son champ fondamental, à hauteur de  $R_3 = 1$  %. On peut alors constater le comportement suivant pour le gain en fonction de  $\lambda_0$  : dans les régions où l'ionisation est de nature multiphotonique, c'est-à-dire pour  $\lambda_0$  faible et/ou  $I_0$  faible, le gain dépend très fortement de la longueur d'onde centrale du champ ; en revanche, dans les régions pour lesquelles l'ionisation par effet tunnel domine, c'est-à-dire pour  $\lambda_0$  élevée et/ou  $I_0$  élevé, le gain demeure relativement constant en fonction de ce paramètre.

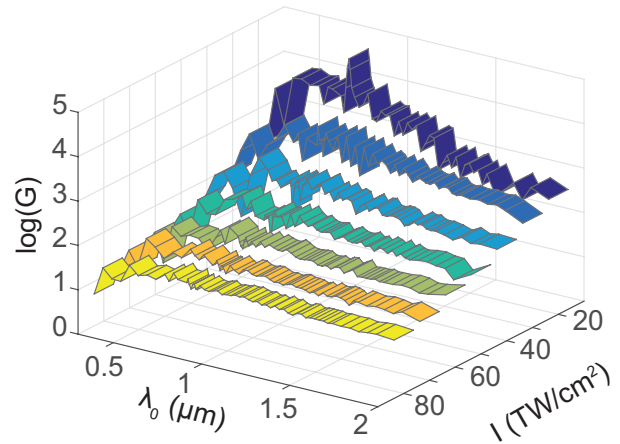


FIGURE 2.15: Gain sur l'ionisation en fonction de l'éclairement  $I_0$  et de la longueur d'onde  $\lambda_0$ , pour  $R_3 = 1$  % et  $\Delta\varphi_3 = 0$ .

### 3.4 Influence de la durée du champ

Un autre paramètre au sujet duquel on peut se demander quel effet il a sur le gain est la durée du champ électrique utilisé. En effet, nous avons décidé arbitrairement de fixer cette dernière à vingt cycles optiques, mais si ce paramètre s'avérait avoir une forte influence sur le gain, le domaine de validité de nos cartes de gain, et de tous les ajustements en provenant, s'en trouverait limité.

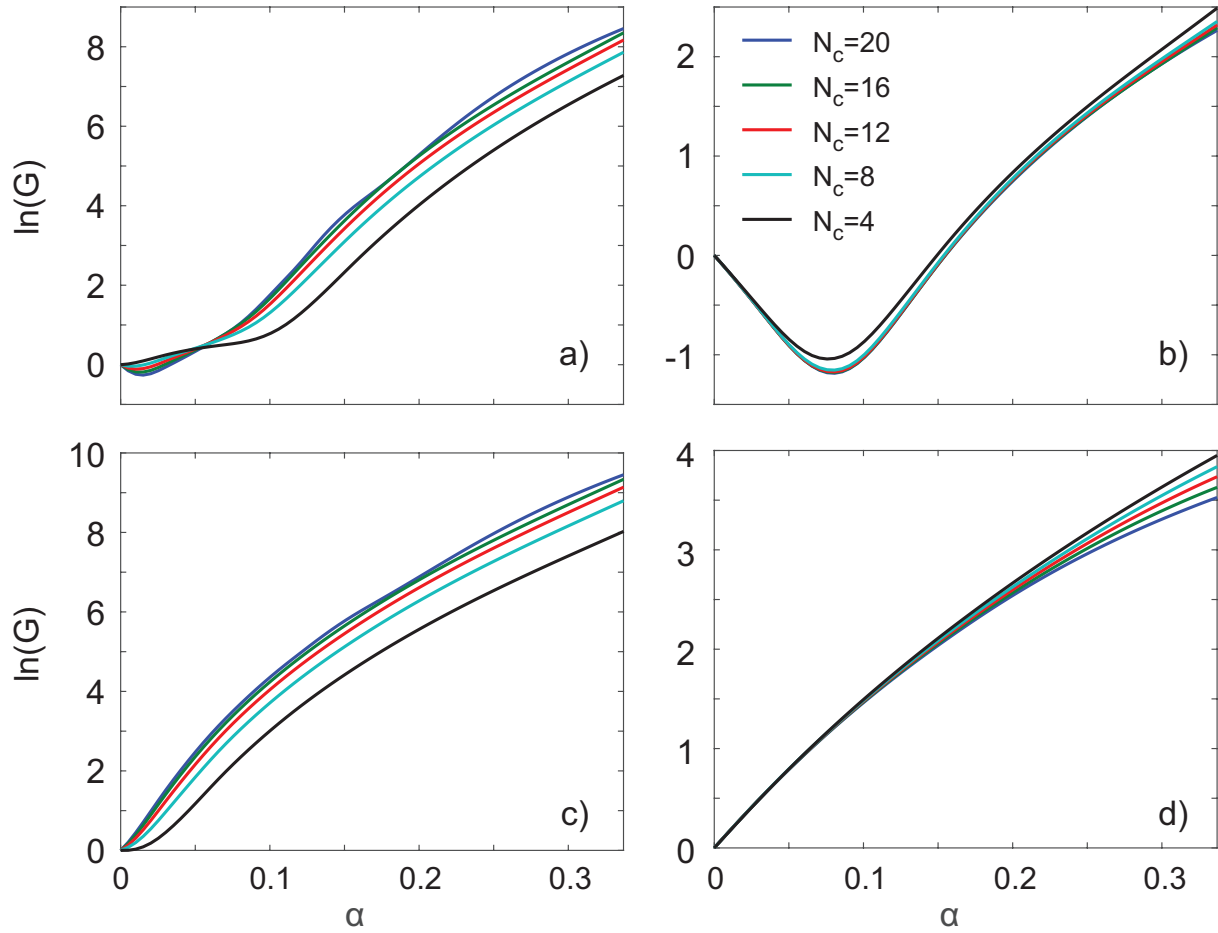


FIGURE 2.16:  $\ln(G)$  en fonction de  $\alpha$  correspondant à des impulsions composées d'un nombre de cycles optiques :  $N_c = 20$  (en bleu),  $N_c = 16$  (en vert),  $N_c = 12$  (en rouge),  $N_c = 8$  (en cyan) et  $N_c = 4$  (en noir). Première ligne : pour  $\Delta\varphi_3 = \pi$ , deuxième ligne : pour  $\Delta\varphi_3 = 0$ . Colonne de gauche : à  $15 \text{ TW.cm}^{-2}$ , colonne de droite : à  $92 \text{ TW.cm}^{-2}$ .

---

Pour vérifier cela, nous calculons de nouvelles cartes de gain en employant des durées de champ électrique correspondantes à 4, 8, 12 et 16 cycles optiques. Nous comparons les valeurs alors obtenues pour  $\ln(G)$  pour ces différents cas, avec celles présentées précédemment pour vingt cycles optiques, en régime de champ faible [figure 2.16(a),(c)] et en régime de champ fort [figure 2.16(b),(d)], pour les phases relatives extrêmes. Un écart conséquent avec notre courbe de référence, correspondante à  $N_c = 20$  cycles optiques, est visible dans tous les cas pour  $N_c = 4$ . En effet, dans ce cas, les deux cycles optiques de montée et de descente prennent une importance vis-à-vis des autres cycles du champ (également au nombre de deux) bien plus grande que lorsque l'impulsion est plus longue. En dehors de ce cas, les écarts les plus forts sont observés en régime de champ faible, même si l'on arrive juste à distinguer les différentes courbes, ce qui indique que la différence est loin d'être critique. Dans le cas du champ fort, peu importe la phase relative, les courbes (hormis celle pour  $N_c = 4$ ) se superposent pratiquement les unes les autres. On remarque cependant qu'à mesure que la valeur de  $\alpha$  augmente, les courbes se séparent. Malgré tout, d'une part l'écart reste faible ; d'autre part ces quantités de TH ne sont, en pratique, pas atteintes. Nous aurons l'occasion d'y revenir par la suite.

Ces différentes considérations nous permettent d'estimer que, tant que la durée de l'impulsion n'est pas trop courte, le domaine de validité des formules, découlant des cartes de gain établies pour vingt cycles optiques, n'est pas restreint à cette unique durée d'impulsion. Ainsi, les appliquer à des impulsions d'une durée de 100 fs (en éclairnement), comme il sera fait dès le prochain Chapitre, est tout à fait acceptable.

## 4 Conclusion du Chapitre

Le Chapitre qui s'achève ici a permis de mettre en lumière l'impact qui est celui de la troisième harmonique au niveau du processus d'ionisation, et ceci même si un faible pourcentage de cette fréquence est présente dans le champ électrique. D'abord déduite de la résolution de l'E.S.D.T., cette observation a ensuite été confirmée expérimentalement, prouvant sans ambiguïté sa justesse. Par la suite, cette forte influence de la TH a été mise en formule. Pour n'importe quelle valeur (présente dans la gamme de valeurs étudiées) des paramètres, l'évaluation numérique de cette influence est accessible rapidement.

De plus, ce fort impact dû à la présence de TH n'est pas sans conséquences sur la variation de l'indice  $\Delta n$ . La figure 2.17 représente cette dernière en fonction de l'éclairement pic  $I_0$ , pour les cas fondamental et fondamental+TH (en phase et en opposition de phase,  $R_3$  étant alors égal à 1 %).

Ainsi, on peut constater que lorsque le champ fondamental est seul,  $\Delta n$  sature autour de  $57 \text{ TW.cm}^{-2}$  et s'annule ensuite à environ  $77 \text{ TW.cm}^{-2}$ . Or, dans le cas où le champ fondamental est accompagné de TH en phase avec lui,  $\Delta n$  sature cette fois-ci autour de  $37 \text{ TW.cm}^{-2}$  et s'annule à environ  $53 \text{ TW.cm}^{-2}$ .

Enfin, lorsque le champ fondamental et la TH sont en opposition de phase,  $\Delta n$  sature à présent autour de  $65 \text{ TW.cm}^{-2}$  et ne s'annule même pas sur la plage

d'éclairements employés. Ainsi, la valeur de l'éclairement pour laquelle s'annule la variation de l'indice de réfraction diffère fortement de la valeur trouvée pour un champ fondamental seul.

Ces résultats montrent sans ambiguïté la nécessité de prendre en compte la troisième harmonique dans le calcul de l'indice, remettant en cause les modèles de filamentation existants. Etablis à l'échelle microscopique, ces résultats seront ainsi pleinement utilisés au prochain Chapitre pour étudier quelle répercussion ils sont susceptibles d'avoir à l'échelle d'une propagation.

D'autres harmoniques ont également été employées. De la cinquième harmonique a alors été ajoutée aux champs fondamental et de TH, sans pour autant que des ajustements des cartes de gain alors obtenues n'aient été réalisés à ce jour, ne permettant donc pas pour le moment de les injecter dans une simulation de propagation. Les résultats ne constituant pas le développement majeur de ce Chapitre, ils ont été consignés au niveau de l'Annexe  $\mathcal{J}$ .

Toujours dans le but d'aller plus loin, il pourrait être envisagé de continuer à inclure plus d'harmoniques. Toutefois, à chaque nouvelle harmonique ajoutée, le temps de calcul des études paramétriques associées augmente très fortement. En effet, ajouter une harmonique revient à multiplier le temps de calcul par autant de points  $(R, \Delta\varphi)$  associé à cette dernière. L'optimisation de la discrétisation utilisée vis-à-vis de chaque paramètre (de phases relatives, de ratios en éclairement et d'éclairement de fondamental) deviendra alors de plus en plus critique.

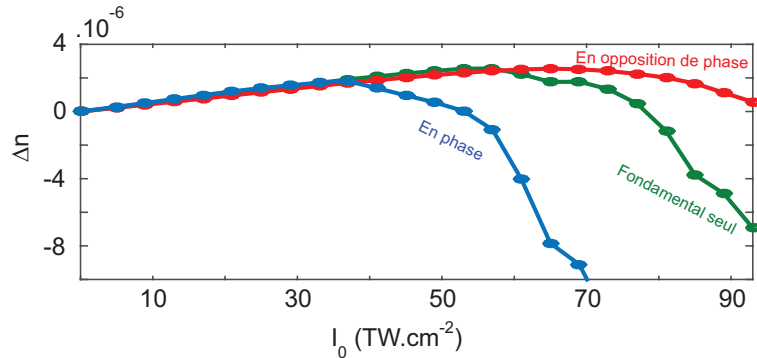


FIGURE 2.17: Variation  $\Delta n$  de l'indice de réfraction en fonction de l'éclairement pour les cas : sans TH (en vert), avec TH en phase (en bleu) et avec TH en opposition de phase (en rouge).

---

## 5 Bibliographie

- [1] A.M. Perelomov, V.S. Popov, and M.V. Terent'ev,  
*JETP* **50**, 1393 (1966), *IONIZATION OF ATOMS IN AN ALTERNATING ELECTRIC FIELD*. Cité p.[193](#).
- [2] A.M. Perelomov, V.S. Popov, and M.V. Terent'ev,  
*JETP* **51**, 309 (1967), *IONIZATION OF ATOMS IN AN ALTERNATING ELECTRIC FIELD : II*. Cité p.[193](#).
- [3] A.M. Perelomov, and V.S. Popov,  
*JETP* **52**, 514 (1967), *IONIZATION OF ATOMS IN AN ALTERNATING ELECTRICAL FIELD. III*. Cité p.[96](#)  
et p.[101](#).
- [4] N. Aközbek, A. Iwasaki, A. Becker, M. Scalora, S.L. Chin, and C.M. Bowden,  
*Phys. Rev. Lett.* **89**, 143901 (2002), *Third-Harmonic Generation and Self-Channeling in Air Using High-Power Femtosecond Laser Pulses*. Cité p.[122](#).
- [5] L. Bergé, S. Skupin, G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, and J.-P. Wolf,  
*Phys. Rev. E* **71**, 016602 (2005), *Supercontinuum emission and enhanced self-guiding of infrared femtosecond filaments sustained by third-harmonic generation in air*. Cité p.[122](#).
- [6] M. Kolesik, E.M. Wright, and J.V. Moloney,  
*Opt. Lett.* **32**, 2816 (2007), *Supercontinuum and third-harmonic generation accompanying optical filamentation as first-order scattering processes*. Cité p.[122](#).
- [7] M.B. Gaarde, and A. Couairon,  
*Phys. Rev. Lett.* **103**, 043901 (2009), *Intensity Spikes in Laser Filamentation : Diagnostics and Application*. Cité p.[123](#).
- [8] Y. Liu, M. Durand, A. Houard, B. Forestier, A. Couairon, and A. Mysyrowicz,  
*Opt. Commun.* **284**, 4706 (2011), *Efficient generation of third harmonic radiation in air filaments : A revisit*. Cité p.[96](#).
- [9] J. Doussot, P. Bédot, G. Karras, F. Billard, and O. Faucher,  
*J. Phys. B* **48**, 184005 (2015), *Phase control of two-color filamentation*. Cité p.[209](#) et p.[115](#).
- [10] P. Bédot, G. Karras, F. Billard, E. Hertz, B. Lavorel, E. Cormier, and O. Faucher,  
*Phys. Rev. Lett.* **112**, 203902 (2014), *Harmonic Generation and Nonlinear Propagation : When Secondary Radiations Have Primary Consequences*. Cité p.[104](#).
- [11] K.J. Schafer, and K.C. Kulander,  
*Phys. Rev. A* **45**, 8026 (1992), *Phase-dependent effects in multiphoton ionization induced by a laser field and its second harmonic*. Cité p.[213](#).

- 
- [12] V. Renard, O. Faucher, and B. Lavorel,  
*Opt. Lett.* **30**, 70 (2005), *Measurement of laser-induced alignment of molecules by cross defocusing*. Cité p.107.
- [13] V. Lorient, E. Hertz, A. Rouzée, B. Sinardet, B. Lavorel, and O. Faucher,  
*Opt. Lett.* **31**, 2897 (2006), *Strong-field molecular ionization : determination of ionization probabilities calibrated with field-free alignment*. Cité p.107.
- [14] N. Berti,  
*Thèse* (2016), *Champ fort et rétro-propagation en filamentation Laser*. Cité p.111.
-

# INFLUENCE DES HARMONIQUES SUR LA FILAMENTATION : APPROCHE MACROSCOPIQUE

*Vous vous rendez compte ? Que le temps que  
la lumière met à atteindre notre œil, on voit  
que des choses passées...*

---

— Perceval, *Kaamelott*, Livre II, Tome 2,  
Episode 18 « *Stargate* ».

---

**L**ORS de la propagation d'un faisceau laser dans un milieu atomique, le champ électrique qui lui est associé crée un dipôle (nuage électronique-noyau), oscillant sous son action. Il rayonne alors un champ électromagnétique, lequel s'ajoute au champ initial. Comme nous l'avons expliqué lors du premier Chapitre, dans le cas de systèmes centrosymétriques, il y a notamment génération d'harmoniques d'ordres impairs du champ électrique. En particulier, il a été démontré que de la troisième harmonique (TH) était générée : il s'agit d'un processus non-linéaire fabriquant une onde électromagnétique oscillant à trois fois la fréquence fondamentale, et dont le facteur de conversion en énergie est estimé à une valeur de l'ordre du pourcent [1, 2]. Cependant, il était observé que cette production de nouvelles fréquences avait une action négligeable sur la suite de la propagation [3]. Or, nous avons démontré lors du Chapitre précédent que les champs secondaires – en particulier s'ils sont des harmoniques du champ fondamental – peuvent avoir de forts impacts sur la réponse optique du milieu, notamment à travers le processus d'ionisation.

Il est alors légitime de se demander quelles conséquences peut avoir cet effet d'origine microscopique à l'échelle de la propagation de l'impulsion. Le présent Chapitre cherchera à répondre à cette question. On se restreindra ici à l'utilisation d'une seule harmonique du champ fondamental : la troisième.

Deux situations différentes seront ainsi envisagées : la première, à travers une étude purement numérique, examinera l'influence de la TH auto-induite, c'est-à-dire créée au cours de la propagation du champ fondamental lui-même ; la deuxième, alliant simulations numériques et surtout expériences, s'intéressera à la manipulation des différentes propriétés du filament par ensemencement de TH qui sera, à ce moment, fabriquée de manière externe. L'idée sous-jacente repose sur une technique d'ingénierie au niveau du cycle optique, utilisée en spectroscopie sub-femtoseconde [4] et pour la génération de hautes harmoniques [5]. Dans un premier temps, nous utiliserons cette technique pour contrôler la longueur du filament ainsi que le supercontinuum alors généré. Dans un second temps, nous parviendrons à moduler le canal plasma grâce à cet ensemencement de TH, contrôlée en phase, au niveau du filament.

Des limitations dans la description du processus de filamentation, notamment au niveau des taux d'ionisation utilisés, seront soulignées ici. Ainsi, dans chaque cas, deux façons d'évaluer la valeur de l'ionisation seront utilisées, selon si un gain sera pris en compte ou pas.

---

# 1 Impact de la TH auto-induite sur la propagation

## 1.1 Présentation de l'étude

Commençons par préciser les contours de notre étude.

### 1.1.1 Conditions « expérimentales »

Ce travail met en jeu un champ électrique, de longueur d'onde centrale  $\lambda_0 = 800$  nm, se propageant dans de l'argon. Il consiste en une large étude paramétrique, menée en fonction des paramètres de pression  $p$  et de focale  $f$  :

- la pression  $p$  prendra les valeurs de 0.5, 1, 2, 3 et 4 bars,
- la focale  $f$  de la lentille prendra 8 valeurs comprises entre 37.5 cm et 1.5 m.

Un grand nombre de simulations numériques est ainsi impliqué. En effet, ces deux paramètres ont une influence sur la génération de troisième harmonique, à travers l'accord de phase. De plus, l'indice de réfraction non-linéaire dépend de la pression.

De plus, afin de ne faire varier qu'un degré de liberté du problème (en l'occurrence : si l'on évalue l'ionisation en tenant compte d'un gain ou non) pour chaque couple de valeurs  $(p, f)$ , nous fixons le paramètre de puissance initiale à 4.5 fois la puissance critique  $P_{cr}$  : en d'autres termes, l'énergie de l'impulsion variera en fonction des différentes valeurs de pression du gaz. On rappelle également que notre champ gaussien (non-chirpé) possède les caractéristiques suivantes :  $\Delta t = 100$  fs et  $\Delta r = 3$  mm.

### 1.1.2 Evaluation numérique de l'ionisation

Deux manières d'évaluer la valeur de l'ionisation induite par un champ fondamental et sa TH, en lien avec le Chapitre précédent, vont être comparées ici. La première, celle habituellement utilisée dans les codes de filamentation [1, 2, 3, 6, 7], consiste simplement à sommer les contributions individuelles de chaque champ, négligeant donc la contribution du chemin d'ionisation mélangeant les deux. Nous l'avons pourtant prouvé au Chapitre précédent, cette dernière est très loin d'être négligeable. Ainsi, cette première méthode d'évaluation de l'ionisation s'écrit :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \rho_{at} [W_{\omega_0}(r, t) + W_{3\omega_0}(r, t)] \quad (3.1)$$

où  $W_{\omega_0}(r, t)$  [respectivement  $W_{3\omega_0}(r, t)$ ] est le taux d'ionisation par unité de temps, évalué grâce à la formule de PPT à la fréquence  $\omega_0$  (respectivement  $3\omega_0$ ).

---

La deuxième façon de procéder consiste à prendre en compte un gain sur l'ionisation :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \rho_{\text{at}} \mathcal{G} [I(r, t), R_3, \Delta \varphi_3] W_{\omega_0}(r, t) \quad (3.2)$$

où  $\mathcal{G}$  exprime un gain sur le taux d'ionisation. Comme expliqué au Chapitre précédent (cf partie 3.1), on fera l'approximation que  $\mathcal{G} = G$ , où  $G$  est le gain sur l'ionisation obtenu avec les impulsions portes.

Pour chaque couple de valeur  $(p, f)$ , une simulation de propagation sera alors effectuée pour chacune des deux méthodes. Cette étude repose donc entièrement sur les résultats obtenus et décrits lors du Chapitre précédent. Notamment, la formule provenant de l'ajustement du gain sur l'ionisation  $G$  dû à la TH – publiée dans [8] – est pleinement mise à profit.

De plus, au niveau de l'équation (3.2), nous devons avoir recours à un champ fondamental et à un champ de TH, pour évaluer  $R_3$  et  $\Delta \varphi_3$ . Il est alors nécessaire de découper artificiellement le champ électrique total, ce qui a été fait au moyen d'un filtrage spectral : les fréquences inférieures (respectivement supérieures) à  $2\omega_0$  étaient définies comme appartenant au champ fondamental (respectivement, de TH). Au moment de traiter des filaments, auxquels sont associés la création de supercontinua, impliquant que les spectres du champ fondamental et du champ de TH se chevauchent, cette approximation peut être remise en question. Cependant, on peut montrer, par résolution de l'E.S.D.T. et en incluant un champ de seconde harmonique, que tant que le ratio en éclairnement de ce dernier demeure inférieur à 1 %, l'erreur induite par cette approximation est négligeable.

### 1.1.3 Assigner une valeur numérique à l'impact de la TH sur la propagation

Simulant les propagations conjointes d'un champ fondamental et d'un champ de TH auto-induit, en évaluant d'une part la densité d'électrons libres via l'équation (3.1), et d'autre part via l'équation (3.2), nous cherchons à comparer les dynamiques de propagation dans chaque cas. En particulier, nous nous intéresserons à l'éclairement maximal sur l'axe  $I_{\text{max}}(z)$  (i.e. en  $r = 0$ ). Nous le noterons  $I_G(z)$  lorsque nous considérerons un gain sur l'ionisation, et  $I(z)$  autrement. Afin d'identifier de manière objective si oui ou non la TH impacte fortement la propagation, nous définissons le paramètre  $\varpi$  :

$$\varpi = 1 - \frac{\int_{z=0}^{Z_{\text{max}}} I(z) I_G(z) dz}{\sqrt{\int_{z=0}^{Z_{\text{max}}} I^2(z) dz \int_{z=0}^{Z_{\text{max}}} I_G^2(z) dz}} \quad (3.3)$$

traduisant le degré de corrélation entre les courbes de  $I$  et de  $I_G$ . La valeur de ce paramètre appartient à l'intervalle  $[0, 1]$ . Une fois calculée, elle exprime ainsi combien le fait de tenir compte

---

d'un gain sur l'ionisation modifie la dynamique de la propagation : plus la valeur de  $\varpi$  est grande, plus la modification est importante. En particulier, on obtient  $\varpi = 0$  s'il existe un facteur de proportionnalité entre les deux courbes, et  $\varpi = 1$  si ces dernières sont totalement décorrélées.

## 1.2 Résultats

Venons-en désormais à la présentation des résultats obtenus, et publiés dans [9].

### 1.2.1 Impact de la TH sur la propagation

La figure 3.1(a) dévoile la valeur de  $\varpi$  en fonction de la pression et de la focale. On remarque alors, sans ambiguïté possible, que la génération de troisième harmonique lors de la propagation peut, pour certaines conditions de pressions et de focales bien définies, fortement modifier le processus de filamentation. Une certaine tendance est révélée sur la figure 3.1(b), représentant la valeur de la focale maximisant la valeur de  $\varpi$  – c'est-à-dire pour laquelle l'effet de la TH est maximal – : un filament généré à basse (respectivement, à haute) pression est plus impacté par la TH lorsqu'une longue (respectivement, une courte) focale est utilisée.

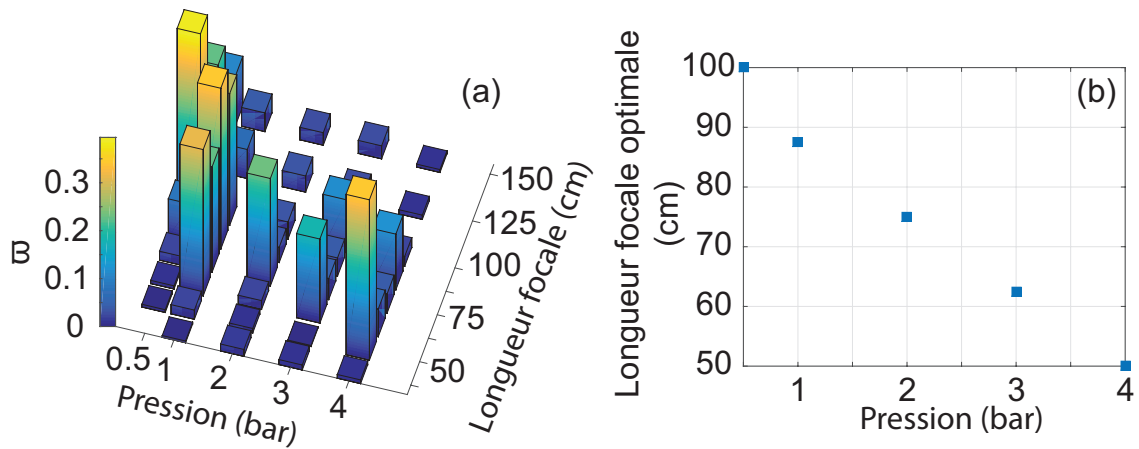


FIGURE 3.1: (a) Impact de la TH sur le processus de filamentation, dans l'argon à  $\lambda_0 = 800$  nm en fonction de la pression et de la longueur focale. (b) Longueur focale optimale en fonction de la pression.

De plus, pour illustrer deux cas caractéristiques, on peut se référer à la figure 3.2, représentant les éclaircissements maximaux  $I$  et  $I_G$  en fonction de la distance de propagation dans 2 bars : (a) pour une focale  $f = 50$  cm, (b) pour une focale  $f = 75$  cm. Dans les deux cas, l'éclairement de clamping demeure du même ordre de grandeur, tout comme la densité de plasma maximale.

Dans le premier cas, le paramètre  $\varpi$  vaut environ 0.01, indiquant que la TH ne modifie quasiment pas la dynamique de la filamentation. On remarque néanmoins un léger effet consistant en une légère diminution de l'éclairement au tout début de la région de clamping. En effet, la présence de TH (en phase avec le fondamental et/ou à un ratio assez élevé) augmente fortement l'ionisation, ce qui a pour conséquence de défocaliser le filament. Dans le deuxième cas, en revanche, la TH a un fort impact sur la dynamique de filamentation, puisque  $\varpi$  vaut alors environ 0.23. De plus, on peut constater que le principal effet dû à la TH réside dans le fait que la seconde focalisation de l'impulsion a lieu plus loin dans la propagation. Pour s'en convaincre, regardons ce qu'il advient de la dynamique spatio-temporelle de l'impulsion.

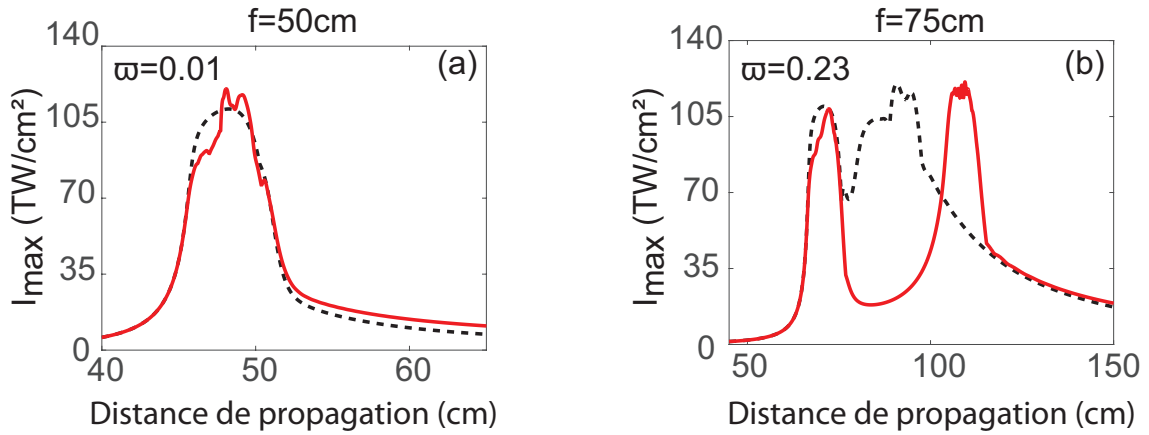


FIGURE 3.2: Eclairements maximaux sur l'axe, en utilisant l'équation (3.1) (courbe noire), et l'équation (3.2) (courbe rouge) dans 2 bar d'argon : pour une focale  $f = 50$  cm (a), et  $f = 75$  cm (b).

### 1.2.2 Distributions spatio-temporelles des impulsions au cours de la propagation

La figure 3.3 représente la distribution spatio-temporelle de l'éclairement du filament en plusieurs points de la propagation, pour le cas où l'on observe un effet de la TH sur la dynamique de la filamentation (i.e., pour une focale  $f = 75$  cm). Sur la première ligne est représenté le cas où l'on ne prend pas en compte de gain sur l'ionisation [équation (3.1)], tandis que la deuxième ligne illustre le cas où un gain est considéré [équation (3.2)].

On peut ainsi relier le fort effet de la TH, observé au paragraphe précédent, à la modification du profil spatio-temporel de l'impulsion au lieu de la première focalisation de cette dernière, c'est-à-dire en  $z = 75$  cm (première colonne de la figure 3.3). Cette légère modification intervenant au tout début du processus de filamentation est en fait à l'origine d'une importante restructuration du filament au niveau de la seconde focalisation.

Ainsi, en modifiant le taux d'ionisation au niveau microscopique, comme nous l'avons fait ici, on montre que la TH émise lors de la propagation peut entièrement modifier la dynamique de propagation du filament.

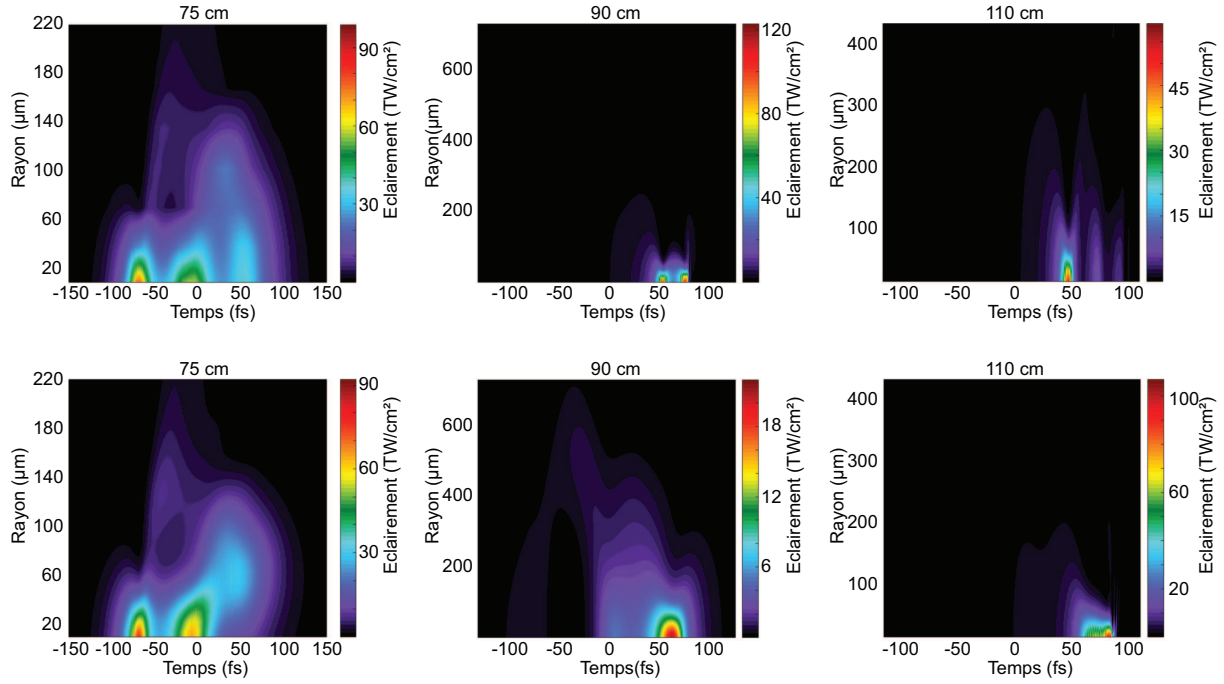


FIGURE 3.3: Distribution spatio-temporelle de l'éclairement du filament dans 2 bar d'argon, pour une focale  $f = 75$  cm, en fonction de la distance de propagation : en utilisant l'équation (3.1) (première ligne), et l'équation (3.2) (deuxième ligne).

Les résultats présentés jusqu'à maintenant dans ce Chapitre concernent uniquement le cas de l'argon. On peut alors légitimement se demander si l'effet de la TH sur la dynamique de propagation est limité à cette seule situation, ou s'il est généralisable à d'autres. Afin de trancher la question, menons donc le même genre d'étude dans le krypton.

### 1.2.3 Etude dans le krypton : dépendance en gaz

Commençons tout d'abord par quelques remarques préliminaires. Nous l'avons vu au cours du Chapitre précédent, d'un point de vue microscopique, la TH a un impact moindre sur l'ionisation dans le krypton que dans l'argon. Nous avons identifié le potentiel d'ionisation, plus bas dans le cas du krypton, comme étant à l'origine de cette différence. Toutefois, l'indice de réfraction non-linéaire du krypton est, quant à lui, trois fois plus important que celui de l'argon, ce qui veut dire que l'on pourra créer plus de TH dans ce cas. Ceci aura tendance à contrebalancer l'effet de la valeur de gain sur l'ionisation moindre dans le cas du krypton. Il n'est bien sûr pas

possible de statuer si, globalement, ces deux effets opposés se compensent et donc, si l'on doit s'attendre ici à un effet plus important ou pas.

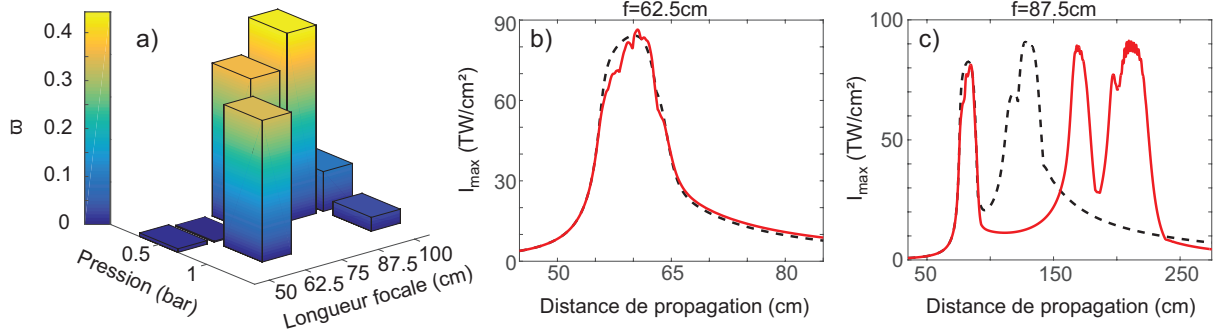


FIGURE 3.4: (a) Impact de la TH sur le processus de filamentation dans le krypton pour  $\lambda_0 = 800\text{nm}$  en fonction de la pression et de la focale. , en utilisant l'équation (3.1) (courbe noire), et l'équation (3.2) (courbe rouge) dans 0.5 bar de krypton : pour une focale  $f = 62.5\text{ cm}$  (a), et  $f = 87.5\text{ cm}$  (b).

Les résultats que l'on obtient alors sont représentés sur la figure 3.4(a), où la valeur de  $\varpi$  est indiquée en fonction de  $p$  et  $f$ . Il apparaît ainsi que la TH peut également fortement impacter la dynamique de propagation dans ce gaz. La même tendance que dans l'argon est observée : l'effet est plus important pour une longue focale à basse pression. De plus, les figures 3.4(b) et (c), représentant l'éclairement maximal sur l'axe en fonction de la distance de propagation pour deux valeurs de focales caractéristiques, permet de remarquer que l'effet dû à la TH sur la dynamique de propagation se présente sous la même forme que dans l'argon, suggérant que celui-ci n'est aucunement dépendant du gaz atomique dans lequel l'étude est menée.

### 1.3 Conclusion

Il a donc été démontré que la génération de troisième harmonique au cours de la propagation est capable de profondément impacter la dynamique de cette dernière, le tout dans des conditions réalistes de pression et de focale. De plus, l'effet est plus prononcé à basse pression et pour de grandes distances focales.

Alors que la TH modifie fortement l'ionisation à l'échelle microscopique, la principale répercussion au niveau macroscopique est un déplacement longitudinal du lieu de la seconde focalisation de l'impulsion, sans que cela ne change significativement la densité de plasma ou encore l'éclairement de clamping.

Démontré ici dans l'argon et le krypton, pour le cas d'impulsions de longueur d'onde centrale valant 800 nm, il est attendu que le phénomène se produise dans d'autres gaz atomiques.

---

De plus, nous avons montré au cours du Chapitre précédent que l'ionisation à deux couleurs induite par des champs très intenses ne dépendait que légèrement de la longueur d'onde centrale. Par conséquent, la présente conclusion devrait demeurer valable pour une large gamme de longueurs d'onde centrales, pour peu que le processus prenne place loin de toute résonance impliquant photons de fondamental et de TH.

Dans les conditions mises en jeu ici, les résultats numériques obtenus (pour le cas où un gain sur l'ionisation est pris en compte) sont censés correspondre à ce qui serait observé si l'on faisait simplement propager un champ centré à  $\lambda_0 = 800$  nm dans ces mêmes conditions. De plus, pour confirmer expérimentalement l'effet de la TH décrit dans cette partie, il faudrait pouvoir comparer le cas où la TH est effectivement auto-induite (cas « normal ») avec le cas pour lequel on empêcherait qu'elle le soit, par exemple en utilisant un champ fondamental polarisé circulairement [10]. On s'attendrait alors à ce que la dynamique de filamentation soit différente d'un cas à l'autre. Notons toutefois qu'entre polarisations linéaire et circulaire l'ionisation fonctionne différemment, et donc que « toute chose ne serait pas égale par ailleurs » pour cette expérience.

Nous venons d'étudier l'influence de la TH auto-induite lors de la propagation sur la dynamique de cette dernière. Etudions à présent la situation pour laquelle nous aurons le contrôle sur la génération de troisième harmonique.

---

## 2 Contrôle de la filamentation par ensemencement de troisième harmonique

Les premières tentatives de contrôle de la propagation d'un filament mettaient en jeu un appareil de mise en forme temporelle [11] ou spatiale [12, 13, 14]. Ces méthodes, basées sur la mise en forme de l'enveloppe de l'impulsion, permettaient de contrôler tant l'élargissement spectral que la position du canal plasma.

Un autre moyen de contrôler le processus de filamentation repose sur l'alignement moléculaire [15, 16] : en agissant sur le degré de liberté rotationnel des molécules au moyen d'une impulsion laser intense, il a été montré que la longueur du filament, sa continuité ainsi que la densité d'électrons pouvaient être manipulés.

Plus récemment, il a été rapporté qu'un faisceau énergétique de Bessel se propageant avec un filament pouvait étendre la longueur de celui-ci d'un ordre de grandeur [17], en ravitaillant continuellement ce dernier tout au long de sa propagation.

Nous allons montrer ici que les propriétés d'un filament généré dans un gaz peuvent être manipulées via le contrôle, au niveau microscopique, de la réponse optique non-linéaire du milieu. Nous distinguerons ici deux régimes de focalisation, pour une raison qui sera donnée un peu plus loin.

### 2.1 Protocole expérimental

L'expérience que nous menons ici, et dont les résultats ont été publiés dans [18], met en jeu des impulsions de durée 100 fs et d'énergie 1 mJ, centrées à  $\lambda_0 = 800$  nm, dont on met en forme la porteuse au moyen d'impulsions de TH de 30  $\mu$ J. Le schéma du montage correspondant, très proche de celui utilisé pour la confirmation expérimentale de l'impact de la TH sur l'ionisation, est présenté sur la figure 3.5.

Au moment d'enregistrer le spectre de sortie de filament, fortement élargi à cause des effets non-linéaires de propagation, la région spectrale située entre 750 nm et 850 nm est rejetée par un filtre passe-bande : on évite ainsi la saturation du spectromètre.

Dans le même temps, la fluorescence du plasma est imagée par le côté de la cellule grâce à une caméra CCD. Pour s'assurer que le signal reçu par celle-ci correspondait bien uniquement à la fluorescence, et pas à de la diffusion du laser, un spectromètre était, dans un premier temps, placé en lieu et place de la caméra. Cette dernière, ainsi que les deux spectromètres, étaient déclenchés de manière synchronisée avec le moteur pas-à-pas utilisé pour faire tourner les deux lames de verre (cf Chapitre précédent). Il était alors possible d'enregistrer le spectre du laser,

l'image du canal plasma ainsi que la fluorescence du gaz en fonction de la phase relative entre les deux champs électriques.

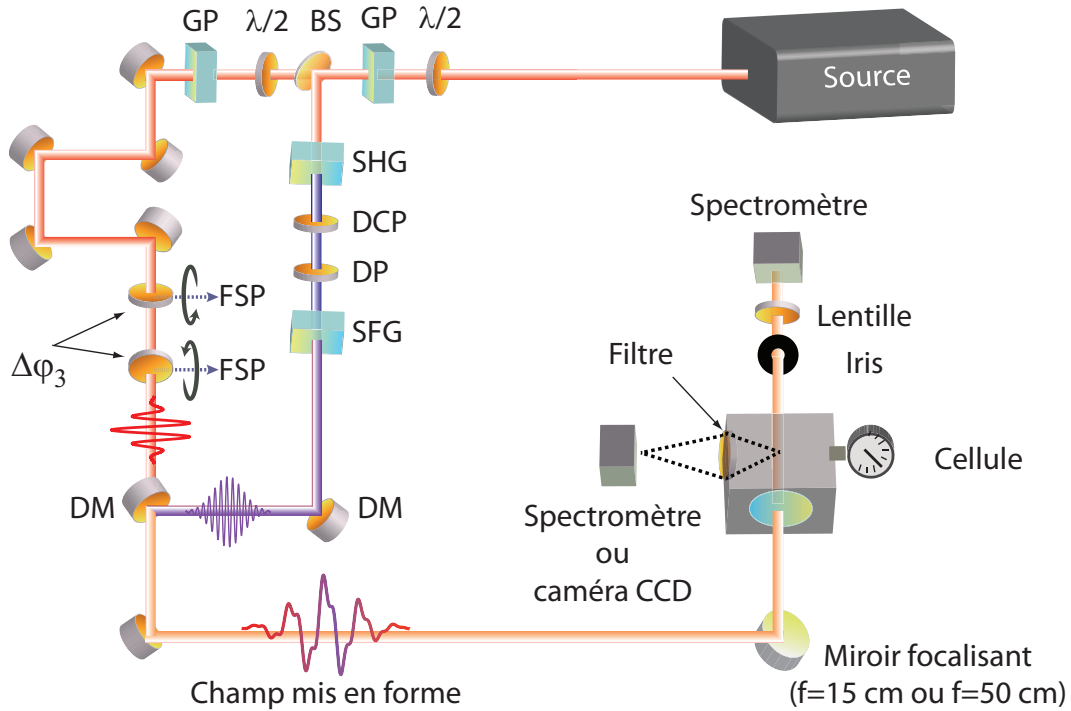


FIGURE 3.5: Schéma expérimental de la mise en forme de champ électrique pour le contrôle cohérent d'un filament produit dans l'argon. Les abréviations suivantes sont utilisées : BS, lame séparatrice ; GP, polariseur de Glan ; FSP, lame de verre ; DM, miroir dichroïque ; DCP, lame compensatrice ; DP, lame  $\lambda/2$  à 796 nm, lame  $\lambda$  à 398 nm ; SHG, génération de seconde harmonique ; SFG : somme de fréquences.

Venons-en à présent à la présentation des résultats obtenus pour le régime de focale courte,  $f$  valant 15 cm.

## 2.2 Régime de focale courte : $f = 15$ cm

La figure 3.6(a) [respectivement, la figure 3.6(b)] représente le profil longitudinal du canal plasma généré (respectivement, le supercontinuum) en fonction de la phase relative  $\Delta\varphi_3$  entre les deux champs électriques. Ces derniers se propagent ici dans 1.5 bar d'argon, et sont focalisés par un miroir de focale  $f = 15$  cm. Dans ce cas,  $\Delta\varphi_3$  demeure quasiment constante tout du long des 2 mm que mesure le filament, puisque le déphasage induit par la différence de vitesse de phase des impulsions est alors négligeable.

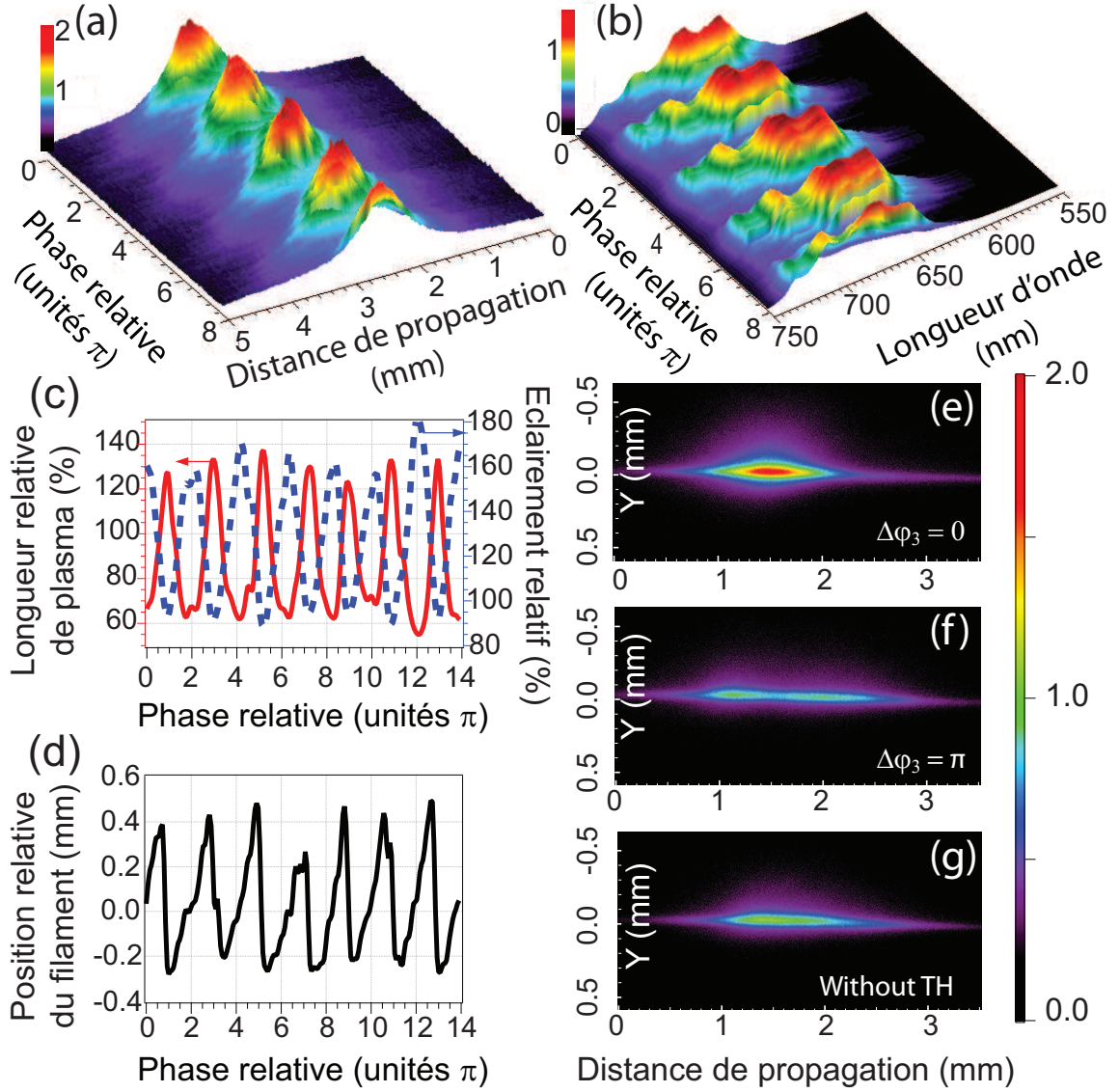


FIGURE 3.6: Contrôle d'un filament en régime de focale courte. (a)-(d) modification des propriétés du filament en fonction de  $\Delta\varphi_3$ . (a) profil longitudinal du canal plasma. (b) génération de supercontinuum. (c) longueur du canal plasma (en rouge) et fluorescence (en bleu). (d) position du filament. (e)-(g) image du filament pour les interférences constructive (e) et destructive (f) entre les différents chemins d'ionisation, à comparer au cas où le filament n'est pas contrôlé par le champ de TH (g).

Comme le montre la figure 3.6, le filament et le plasma laissé dans son sillage sont fortement remodelés en fonction de la valeur de  $\Delta\varphi_3$ .

En particulier, les champs en phase favorisent la production d'un filament à la fois court et brillant [figures 3.6(a) et 3.6(c)], déplaçant la position (mesurée comme étant le point où le

---

filament est le plus intense sur sa distance de propagation) de ce dernier vers le miroir focalisant [figure 3.6(d)] et élargissant le supercontinuum alors généré [figure 3.6(b)].

La fluorescence due au plasma pour les deux phases extrêmes ( $\Delta\varphi_3 = 0$  pour le cas d'interférences constructives,  $\Delta\varphi_3 = \pi$  si elles sont destructives) est dépeinte sur les figures 3.6(e) et 3.6(f). Ces deux cas peuvent être comparés avec celui où le phénomène de filamentation prend place en l'absence du champ de TH [figure 3.6(g)].

Changeons désormais de régime de focalisation, et voyons ce qui change dans ce cas.

### 2.3 Régime de focale longue : $f = 50$ cm

Nous considérons à présent un filament généré au moyen d'un miroir de focale  $f = 50$  cm. Contrairement au cas précédent,  $\Delta\varphi_3$  ne demeure pas constante, cette fois-ci, tout du long des 6 cm que mesure le filament. Ainsi, les deux champs électriques subissent plusieurs cycles périodiques de déphasage/rephasage. La période de ces cycles est déterminée par la différence entre leurs vitesses de phase respectives. On peut ainsi définir la longueur de rephasage  $l_{\text{reph}}$ , comme suit :

$$l_{\text{reph}} = \lambda_{\text{TH}} \left( \frac{1}{n_{\text{TH}} - n_0} \right) \quad (3.4)$$

où  $n_0$  (respectivement  $n_{\text{TH}}$ ) est l'indice de réfraction du gaz évalué à la longueur d'onde fondamentale (respectivement, de TH). Ceci signifie qu'après une propagation sur une distance  $l_{\text{reph}}$ ,  $\Delta\varphi_3$  aura vu sa valeur augmentée de  $2\pi$ . A titre indicatif, pour une pression de 1 bar,  $l_{\text{reph}}$  vaut environ 1 cm. Par conséquent, le canal plasma est modulé selon son axe, avec une période de modulation de  $l_{\text{reph}} = 1$  cm.

#### 2.3.1 Résultats expérimentaux

En jouant sur la phase relative initiale entre les deux champs électriques, les positions extrêmes du canal plasma sont déplacées de manière continue le long de la distance de propagation, comme le montre la figure 3.7(a). De plus, comme la figure 3.7(b) en rend compte, la période de modulation peut être contrôlée en ajustant la pression du gaz, c'est-à-dire en changeant la différence de vitesse de phase entre les champs. La fréquence de modulation qui en résulte, notée  $F_m = 1/l_{\text{reph}}$ , suit une dépendance linéaire en pression, ainsi que la figure 3.7(c) le dépeint. On notera que la périodicité du canal plasma pourrait également être contrôlée, à une valeur de pression donnée, au moyen de faisceaux de Bessel. En effet, la vitesse de phase de ces derniers dépend de leurs conicité [19, 20].

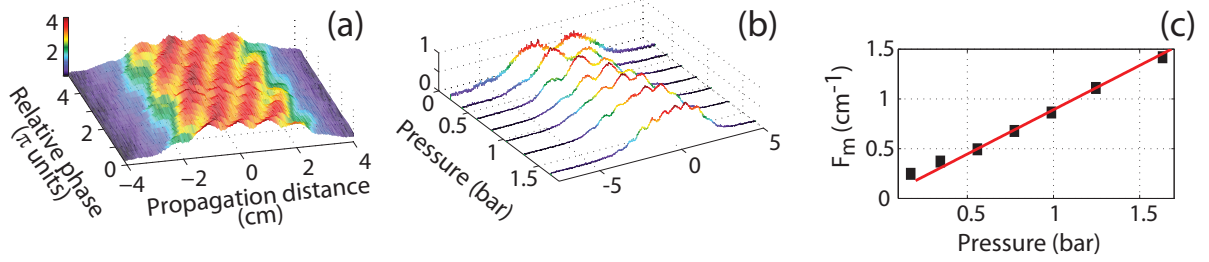


FIGURE 3.7: Production et contrôle d'un canal plasma modulé selon son axe, en régime de focale longue. (a) fluorescence du plasma le long de l'axe de propagation, en fonction de la phase relative  $\Delta\varphi_3$ , pour une pression de 1 bar. (b) modulation du canal plasma en fonction de la pression. (c) fréquence de modulation  $F_m$  du canal plasma en fonction de la pression : données expérimentales (carrés noirs), et courbe théorique calculée comme  $(n_{TH} - n_0)/\lambda_{TH}$  (en rouge).

Nous allons maintenant nous attacher à retranscrire au moyen de simulations numériques les observations expérimentales décrites ci-avant.

### 2.3.2 Modélisation numérique

Simuler la propagation d'impulsions laser sur des distances macroscopiques dans un milieu, entraînant l'ionisation de celui-ci, est compliqué par la nécessité d'inclure l'interaction lumière-matière, traitée par la mécanique quantique. Par l'établissement de formules de gain au Chapitre précédent, dans le cas de l'ionisation à deux couleurs, nous contournons cette difficulté. Ainsi, nous comparerons ici les résultats obtenus avec les équations (3.1) et (3.2).

Nous considérerons un champ électrique initial  $E(r, t, z = 0)$  composé d'une impulsion de durée 100 fs, d'énergie 1 mJ et centrée à la longueur d'onde fondamentale  $\lambda_0 = 800$  nm et d'une autre impulsion, de troisième harmonique, d'énergie  $30 \mu\text{J}$  et de durée 70 fs. Les deux impulsions sont focalisées grâce à une lentille de focale  $f = 50$  cm, et possèdent un waist initial  $\sigma_0 = 2$  mm.

La distribution longitudinale de la densité linéique de plasma obtenue grâce à notre code de propagation, incluant le taux d'ionisation à deux couleurs, dépendant du temps, est représenté sur la figure 3.8. On peut constater que l'accord avec l'expérience [figure 3.7(a)] est relativement correct, puisque reproduisant notamment la modulation du canal plasma. On peut également noter que si l'on utilise l'équation (3.1), c'est-à-dire si l'on prend pas en compte de gain sur l'ionisation dû à la TH [figure 3.8(b)], les résultats numériques sont alors clairement en désaccord avec les observations expérimentales. Ceci souligne la nécessité d'améliorer la manière d'évaluer l'ionisation dans les codes de propagation.

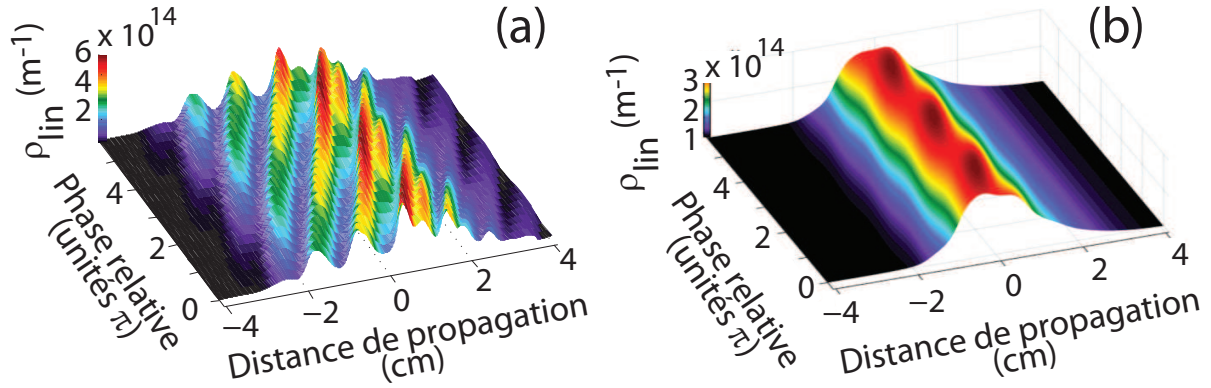


FIGURE 3.8: Densité linéique de plasma  $\rho_{\text{lin}}$  le long de l'axe de propagation en fonction de  $\Delta\varphi_3$  pour une pression de 1 bar, en utilisant : (a) l'équation (3.2), (b) l'équation (3.1).

### 3 Conclusion du Chapitre

Pour conclure, ce Chapitre se divisait en deux parties, chacune correspondant à une manière différente d'étudier l'influence de la troisième harmonique sur la dynamique de la propagation.

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés au cas où la TH était auto-induite lors du processus de filamentation. En d'autres termes, cela correspond au cas très simple où l'on s'intéresse à la propagation d'un champ fondamental seul. Nous démontrons alors que, dans des conditions appropriées, la TH peut être à l'origine d'une forte modification de la dynamique de filamentation.

Mené dans le cas de la TH, ce travail constitue une première étape d'investigation et appelle à aller plus loin : on peut notamment envisager d'étudier des cas où plus d'harmoniques seraient impliquées, et vérifier (ou non) que ces dernières auraient elles-aussi un impact sur le processus de filamentation.

Dans un second temps, nous avons démontré, théoriquement et expérimentalement, que les propriétés optiques non-linéaires d'un gaz soumis à une impulsion laser ultra-courte et ultra-intense pouvaient être manipulées par la mise en forme au niveau du cycle optique de cette dernière. Le contrôle a été réalisé en ajoutant un champ intense de TH, dans des proportions réalistes, se propageant avec le champ fondamental. Du fait d'interférences quantiques se produisant durant le processus d'ionisation, la valeur de l'ionisation peut être soit entravée soit augmentée, selon la valeur de la phase relative entre les deux champs électriques.

Nous avons ainsi réussi à manipuler les caractéristiques macroscopiques d'un filament (gé-

---

nération de supercontinuum, longueur du canal plasma, son amplitude et sa position) en ajustant la phase relative. De plus, en tirant avantage de la différence de vitesse de phase entre les deux champs électriques, nous avons créé et contrôlé un canal plasma, qui ressemblait alors à un sinus. Ce mécanisme étant basé sur un processus quantique non-résonant, il peut potentiellement prendre place dans tous les gaz, et même dans des matériaux massifs.

---

## 4 Bibliographie

- [1] N. Aközbek, A. Iwasaki, A. Becker, M. Scalora, S.L. Chin, and C.M. Bowden, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 143901 (2002), *Third-Harmonic Generation and Self-Channeling in Air Using High-Power Femtosecond Laser Pulses*. Cité p.122 et p.123.
- [2] L. Bergé, S. Skupin, G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, and J.-P. Wolf, *Phys. Rev. E* **71**, 016602 (2005), *Supercontinuum emission and enhanced self-guiding of infrared femtosecond filaments sustained by third-harmonic generation in air*. Cité p.122 et p.123.
- [3] M. Kolesik, E.M. Wright, and J.V. Moloney, *Opt. Lett.* **32**, 2816 (2007), *Supercontinuum and third-harmonic generation accompanying optical filamentation as first-order scattering processes*. Cité p.122 et p.123.
- [4] A. Wirth, M.T. Hassan, I. Grguras, J. Gagnon, A. Moulet, T.T. Luu, S. Pabst, R. Santra, Z.A. Alahmed, A.M. Azzeer, V.S. Yakovlev, V. Pervak, F. Krausz, and E. Goulielmakis, *Science* **334**, 195 (2011), *Synthesized Light Transients*. Cité p.122.
- [5] S. Haessler, T. Balciunas, G. Fan, G. Andriukaitis, A. Pugzlys, A. Baltuska, T. Witting, R. Squibb, A. Zaïr, J.W.G. Tisch, J.P. Marangos, and L.E. Chipperfield, *Phys. Rev. X* **4**, 021028 (2014), *Optimization of Quantum Trajectories Driven by Strong-Field Waveforms*. Cité p.122.
- [6] M.B. Gaarde, and A. Couairon, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 043901 (2009), *Intensity Spikes in Laser Filamentation : Diagnostics and Application*. Cité p.123.
- [7] Y. Liu, M. Durand, A. Houard, B. Forestier, A. Couairon, and A. Mysyrowicz, *Opt. Commun.* **284**, 4706 (2011), *Efficient generation of third harmonic radiation in air filaments : A revisit*. Cité p.123.
- [8] J. Doussot, P. Béjot, G. Karras, F. Billard, and O. Faucher, *J. Phys. B* **48**, 184005 (2015), *Phase control of two-color filamentation*. Cité p.209.

- 
- [9] J. Doussot, P. Béjot, and O. Faucher,  
*Phys. Rev. A* **93**, 033857 (2016), *Impact of third-harmonic generation on the filamentation process*.  
Cité p.[125](#).
  - [10] P.P. Bey, J.F. Giuliani, and H. Rabin,  
*Phys. Lett. A* **26**, 128 (1968), *LINEAR AND CIRCULAR POLARIZED LASER RADIATION IN OPTICAL THIRD HARMONIC GENERATION*. Cité p.[129](#).
  - [11] R. Ackermann, E. Salmon, N. Lascoux, J. Kasparian, P. Rohwetter, K. Stelmaszczyk, S. Li, A. Lindinger, L. Wöste, P. Béjot, L. Bonacina, and J.-P. Wolf,  
*Appl. Phys. Lett.* **89**, 171117 (2006), *Optimal control of filamentation in air*. Cité p.[130](#).
  - [12] G. Heck, J. Sloss, and R.J. Levis,  
*Opt. Commun.* **259**, 216 (2006), *Adaptative control of the spatial position of white light filaments in aqueous solution*. Cité p.[130](#).
  - [13] T. Pfeifer, L. Gallmann, M.J. Abel, D.M. Neumark, and S.R. Leone,  
*Opt. Lett.* **31**, 2326 (2006), *Circular phase mask for control and stabilization of single optical filaments*.  
Cité p.[130](#).
  - [14] D. Walter, S. Eyring, J. Lohbreier, R. Spitzenpfeil, and C. Spielmann,  
*Appl. Phys. B* **88**, 175 (2007), *Spatial optimization of filaments*. Cité p.[130](#).
  - [15] S. Varma, Y.-H. Chen, and H.M. Milchberg,  
*Phys. Rev. Lett.* **101**, 205001 (2008), *Trapping and Destruction of Long-Range High-Intensity Optical Filaments by Molecular Quantum Wakes in Air*. Cité p.[130](#).
  - [16] S. Varma, Y.-H. Chen, J.P. Palastro, A.B. Fallhkaier, E.W. Rosenthal, T. Antonsen, and H.M. Milchberg,  
*Phys. Rev. A* **86**, 023850 (2012), *Molecular quantum wake-induced pulse shaping and extension of femtosecond air filaments*. Cité p.[130](#).
  - [17] M. Scheller, M.S. Mills, M.-A. Miri, W. Cheng, J.V. Moloney, M. Kolesik, P. Polynkin, and D.N. Christodoulides,  
*Nature Photon.* **8**, 297 (2014), *Externally refuelled optical filaments*. Cité p.[130](#).
  - [18] P. Béjot, G. Karras, F. Billard, J. Doussot, E. Hertz, B. Lavorel, and O. Faucher,  
*Phys. Rev. A* **92**, 053417 (2015), *Subcycle engineering of laser filamentation in gas by harmonic seeding*.  
Cité p.[130](#).
  - [19] D. Mugnai, A. Ranfagni, and R. Ruggeri,  
*Phys. Rev. Lett.* **84**, 4830 (2000), *Observation of Superluminal Behaviors in Wave Propagation*.  
Cité p.[133](#).
  - [20] B.D. Layer, A. York, T.M. Antonsen, S. Varma, Y.-H. Chen, Y. Leng, and H.M. Milchberg,  
*Phys. Rev. Lett.* **99**, 035001 (2007), *Ultrahigh-Intensity Optical Slow-Wave Structure*. Cité p.[133](#).
-



## FILAMENTATION AU VOISINAGE D'UNE RÉSONANCE

*Quand on voit ce qu'on voit, que l'on entend  
ce qu'on entend et que l'on sait ce qu'on sait,  
on a bien raison de penser ce qu'on pense.*

---

— Pierre Dac

---

JUSQU'à maintenant, quasiment toutes les études portant sur la filamentation utilisaient des impulsions laser centrées à  $\lambda_0 = 800$  nm, ceci étant principalement dû au fait que presque toutes les sources laser permettant de mettre en jeu une puissance suffisante pour déclencher le processus émettent à cette longueur d'onde. Seulement quelques travaux [1, 2, 3] ont porté sur la filamentation dans le cas de sources laser opérant à d'autres longueurs d'onde. En dehors des impulsions à 800 nm, le processus de filamentation en milieu gazeux a principalement été étudié en utilisant des sources fonctionnant à des longueurs d'onde harmoniques des lasers Ti :saphire, c'est-à-dire à 400 nm [4], ou à 266 nm [5]. Quelques expériences à propos de filamentation ont été menées dans le cas de systèmes laser paramétrique optique CPA à  $3.9 \mu\text{m}$  [6, 7, 8], un laser KrF à 248 nm [9], et plus récemment un laser picoseconde à  $1.03 \mu\text{m}$  [10]. En fait, la dépendance en longueur d'onde du processus de filamentation a été relativement peu étudiée.

L'influence du voisinage d'une résonance sur le processus de filamentation est analysée plus facilement si l'on utilise une source laser opérant dans le régime ultraviolet. C'est dans ce contexte que les études reportées dans ce dernier Chapitre ont été envisagées.

Nous commencerons ainsi par faire la démonstration expérimentale que la filamentation peut être avantageusement renforcée si la longueur d'onde centrale du laser est ajustée à proximité d'une résonance avec une transition multiphotonique, impliquant l'état fondamental et un état lié. Ceci se manifeste par une augmentation de la longueur du filament, tout en diminuant fortement les pertes non-linéaires au sein de celui-ci, ainsi que de l'ionisation. En particulier, cela se produit dans le krypton lorsque la longueur d'onde centrale du laser est fixée à  $\lambda_0 = 300$  nm. De plus, des calculs *ab initio*, reproduisant la réponse optique de l'atome, confirment la nature résonante du processus : dans ce cas, la susceptibilité non-linéaire du cinquième ordre, renforcée par le voisinage d'une résonance, est identifiée comme étant responsable du clamping de l'éclairement, à la place de l'ionisation.

Par ailleurs, la nature résonante du processus mis en jeu donne également accès à une condition propice pour un effet laser infrarouge vers l'avant et vers l'arrière de la direction de propagation, c'est-à-dire une inversion de population significative. Nous présenterons les premiers résultats expérimentaux qui attestent de ce phénomène, et qui proviennent d'études portant sur la dépendance des différentes raies infrarouges d'émission du krypton vis-à-vis de plusieurs paramètres (longueur d'onde de pompe, polarisation, pression, ..).

Enfin, nous en viendrons à l'étude de l'interaction d'un champ fondamental centré à  $\lambda_0 = 400$  nm, accompagné de sa troisième harmonique, avec du krypton. Nous utiliserons à nouveau des calculs *ab initio* pour évaluer la réponse optique de ce dernier, et nous en retirerons les valeurs des indices de réfraction non-linéaires sous-jacents. En particulier, nous montrerons que la proximité d'une résonance avec une transition impliquant un photon de chaque champ ren-

---

force considérablement le coefficient de modulation de phase croisée, qui est en l'occurrence négatif (et a donc un effet défocalisant). Une fois réinjecté dans notre code de propagation, en compagnie des coefficients associés aux autres processus non-linéaires (tels l'auto-modulation de phase, la génération de troisième harmonique, etc), celui-ci participera fortement à la stabilisation du filament, ainsi que nous en rendrons compte.

## 1 Renforcement résonant de la filamentation

La première étude présentée dans ce Chapitre concerne la production de filaments lorsque la longueur d'onde centrale du laser permet d'entrer en résonance avec une transition du système atomique. Nous allons montrer que la proximité de cette résonance donne lieu à de fortes modifications du profil du filament alors créé. Obtenus dans le krypton pour une valeur de  $\lambda_0 = 300$  nm, les résultats ont fait l'objet d'une publication [11], et ont également été généralisés au cas de l'argon.

### 1.1 Etude expérimentale

Au cours de cette expérience, les filaments sont produits dans une cellule longue de 1.5 m et remplie de krypton à une pression de 6 bar. Le champ ultraviolet est produit au sein d'un NOPA (pour Noncollinear Optical Parametric Amplifier), en quadruplant la fréquence du champ de sortie de la source laser. Il est ensuite focalisé au moyen d'un miroir sphérique en aluminium, de focale  $f = 1$  m.

Afin d'éviter d'obtenir des résultats traduisant une dépendance en énergie de l'impulsion, nous fixons celle-ci à une valeur de  $30 \mu\text{J}$  sur toute la plage de longueurs d'onde étudiées lors de cette expérience, c'est-à-dire entre 290 nm et 315 nm. La durée des impulsions étant estimée à 50 fs, la puissance crête vaut alors 800 MW, c'est-à-dire plus de dix fois la puissance critique à la pression considérée.

La fluorescence du plasma produit par le filament est imagée par le côté de la cellule au moyen d'une caméra silicium équipée d'un objectif commercial. De plus, un filtre passe-bas placé sur l'objectif coupe les longueurs d'onde supérieures à 675 nm, de sorte que le signal correspondant à la fluorescence des états excités du krypton soit rejeté. Le signal recueilli par la caméra est ainsi représentatif de l'ionisation induite tout au long de la propagation du filament.

Les manipulations consistent alors, tout en faisant varier la longueur d'onde du laser, à imager la fluorescence du plasma grâce à la caméra, et également à mesurer l'énergie du faisceau à la sortie de la cellule.

Venons-en à la première partie des résultats. Sur la figure 4.1(a) est présenté le profil longitudinal (en unités logarithmiques) de la fluorescence du plasma, tandis que la figure 4.1(b) montre le maximum de cette dernière en fonction de la longueur d'onde centrale du laser.

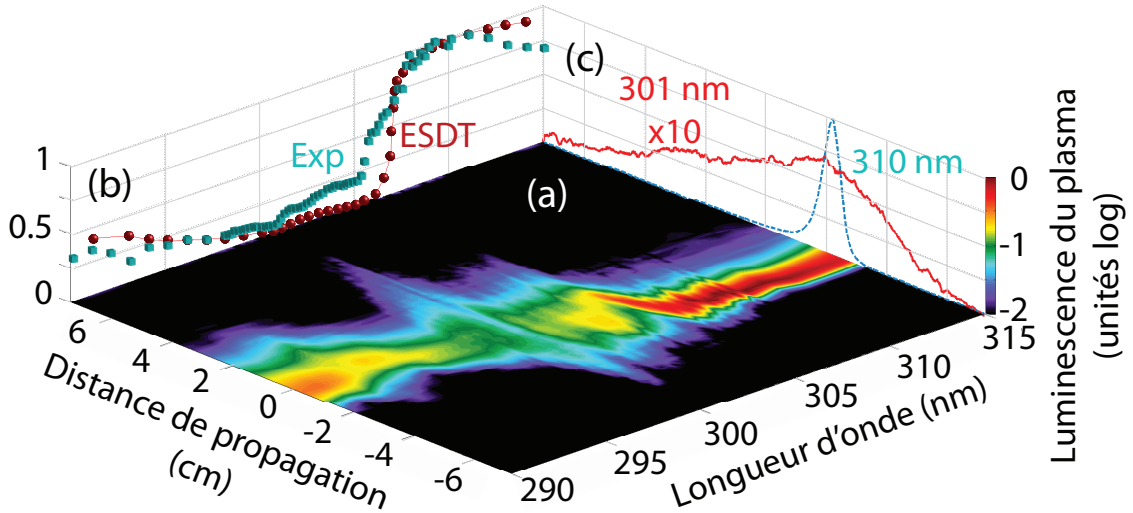


FIGURE 4.1: (a) Profil longitudinal du filament. (b) Maximum du signal de fluorescence associé en fonction de la longueur d'onde centrale. Les cubes bleus correspondent aux résultats expérimentaux, et les cercles rouges aux calculs *ab initio* menés dans le cas d'une impulsion de durée 50 fs. (c) Profil longitudinal du filament comparant le cas hors résonance (310 nm) à celui la résonance (301 nm).

On peut alors observer que les filaments produits avec des longueurs d'onde centrales supérieures à 305 nm (i.e. au-dessus de la résonance) partagent en bonne approximation le même profil longitudinal et la même valeur d'ionisation. Un changement abrupt a lieu, tant au niveau du premier que du deuxième, pour des longueurs d'onde centrales inférieures à cette valeur, c'est-à-dire pour des valeurs proches de la longueur d'onde de résonance atomique [voir la figure 4.1(c), comparant le profil longitudinal des filaments produit à 301 nm et à 310 nm].

A titre indicatif, le tableau 4.1 recense les différents états du krypton atteignables à trois photons [12] : partant de l'état fondamental ( $4p$ ), la règle de sélection pour un champ polarisé linéairement (i.e.  $\Delta l = \pm 1$ ) implique<sup>1</sup> que l'on ne peut atteindre que des états  $s$ ,  $d$  et  $g$ . Avec les

1. Il existe également une règle de sélection sur le moment cinétique total  $J$  : pour chaque photon impliqué dans la transition, la règle est  $\Delta J = 0, \pm 1$ , avec  $J = 0 \rightarrow J = 0$  interdit. Comme nous nous intéressons à des transitions à trois photons, nous pouvons atteindre la plupart des états liés possédant une énergie correspondante à notre plage de longueurs d'onde, à partir de l'état fondamental  $J = 0$ . Seul un état ( $4d$ ), de  $J = 4$ , demeure inaccessible.

longueurs d'onde correspondantes à notre plage de recherche, ils sont au nombre de neuf. Les longueurs d'onde de résonance (à trois photons) de ces états sont cohérentes avec les observations expérimentales : notamment, la modification la plus significative du profil du filament a lieu pour une longueur d'onde centrale valant 301 nm, pour laquelle trois états excités du krypton très proches en énergie sont résonants à la fois.

| Etat                       | $6s[3/2]_1^o$ | $4d[3/2]_1^o$ | $6s[3/2]_2^o$ | $4d[5/2]_3^o$ |
|----------------------------|---------------|---------------|---------------|---------------|
| Energie (eV)               | 12.39         | 12.35(4)      | 12.35(2)      | 12.28         |
| $\lambda_0$ résonante (nm) | 300.18        | 300.93        | 300.99        | 302.65        |
| $4d[5/2]_2^o$              | $4d[7/2]_3^o$ | $4d[3/2]_2^o$ | $4d[1/2]_1^o$ | $4d[1/2]_0^o$ |
| 12.26                      | 12.18         | 12.11         | 12.03         | 11.99(8)      |
| 303.30                     | 305.28        | 306.96        | 308.89        | 309.87        |

TABLE 4.1: Etats liés du krypton accessibles à trois photons associés à une longueur d'onde de pompe comprise entre 291 nm et 315 nm. Les longueurs d'onde sont évaluées dans le krypton.

La nomenclature utilisée pour écrire les états dans le tableau 4.1 est celle de Racah, bien adaptée pour les gaz rares. Ici, le propos n'étant pas de détailler cette notation, nous donnons les explications la concernant au niveau de l'Annexe  $\mathcal{K}$ .

L'exposant "o" est présent dans l'écriture de l'état lorsque la parité de celui-ci est impaire, et absent si elle est paire. Partant d'un état pair, nos transitions à trois photons ont donc forcément des états d'arrivée impairs : tous les états du tableau 4.1 possèdent donc cet exposant. De plus, il a été vérifié qu'avec un nombre de photons différent de trois, aucune transition n'était résonante sur notre gamme de longueurs d'onde. Notamment, à quatre photons, nous nous situons au-dessus du seuil d'ionisation du krypton qui est de 13.99 eV.

Comme le montre la figure 4.2, la longueur du filament est multipliée par un facteur d'environ dix lorsque la longueur d'onde centrale du filament est à la résonance atomique, par rapport au cas hors résonance. Cette augmentation de la longueur du filament est accompagnée par une diminution de l'ionisation d'un ordre de grandeur [cf figure 4.1(c)]. Puisque les résonances multiphotoniques sont connues pour renforcer le processus d'ionisation à une valeur d'éclairement donnée [13], ceci implique nécessairement une forte diminution de l'éclairement à l'intérieur du filament à la résonance.

De plus, le fait que les filaments les plus longs produits lors de notre expérience sont obtenus pour une longueur d'onde centrale du laser minimisant l'ionisation suggère que cette dernière constitue le mécanisme limitant la longueur du filament.

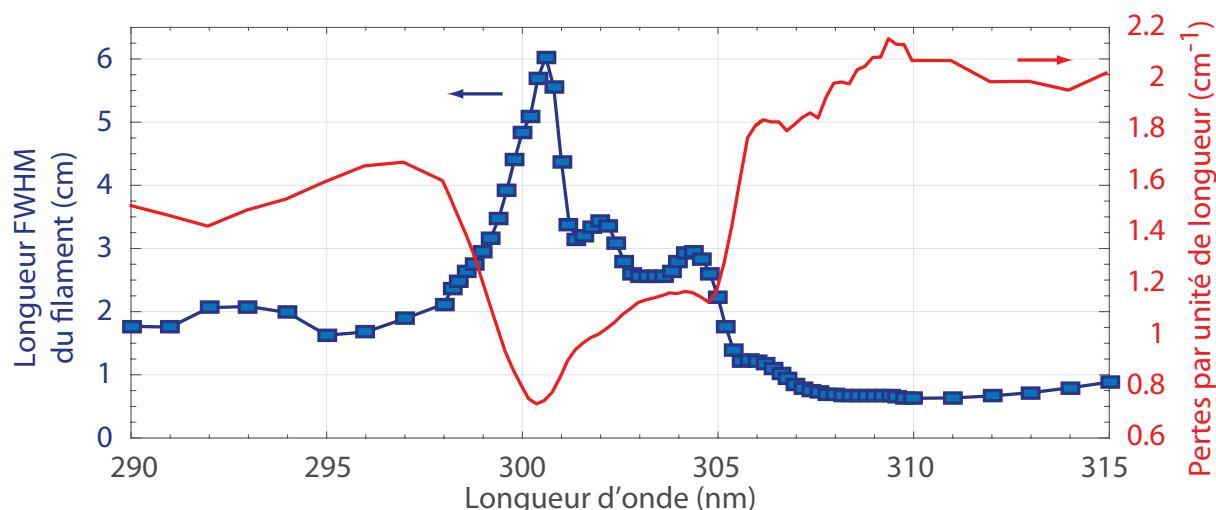


FIGURE 4.2: Longueur du filament (carrés bleus), mesurée comme la FWHM de la luminescence du plasma, et pourcentage de pertes par unité de longueur du filament (trait plein rouge), en fonction de la longueur d'onde centrale du laser.

Le pourcentage de pertes optiques par unité de longueur subies par le filament, pour une énergie à l'entrée de  $30 \mu\text{J}$ , est représenté sur la figure 4.2. Ici encore, au niveau de la résonance, un brusque changement est visible. En particulier, une forte réduction de l'absorption est relevée autour de la résonance : ces pertes moindres permettent aux filaments produits dans cette région spectrale de maintenir un éclairement élevé, favorisant l'auto-stabilisation, sur de plus longues distances. Egalement, il a été vérifié que les résultats expérimentaux présentés ici n'étaient pas dûs à un effet cumulatif (échauffement du gaz, déplétion de l'état fondamental) en diminuant la cadence de la source laser.

Dans le but de mieux comprendre la physique présente dans ce phénomène de renforcement de la filamentation, des calculs *ab initio*, capturant la réponse optique des atomes de krypton, ont été réalisés. Ils consistent en la résolution de l'E.S.D.T., et sont l'objet de la partie suivante.

---

## 1.2 Modélisation théorique du phénomène

La résolution de l'E.S.D.T. est effectuée tous les deux nanomètres entre 250 nm et 800 nm (même si elle est plus élevée au niveau des régions spectrales nécessitant une meilleure discrétisation). Initialement, toute la population se trouve dans l'état fondamental, et le champ électrique possède une enveloppe gaussienne et est polarisé linéairement. De plus, sa durée FWHM est fixée à 7 fs en éclairnement, et gardée constante pour toutes les longueurs d'onde. Ce choix d'une faible durée pour nos impulsions est justifié par notre volonté d'éviter des temps de calcul trop importants. Enfin, la discrétisation en éclairnement se fait tous les  $\text{TW.cm}^{-2}$  de  $1 \text{ TW.cm}^{-2}$  à  $80 \text{ TW.cm}^{-2}$ .

Contrairement à l'étude menée dans le Chapitre précédent, le krypton ne sera pas décrit au moyen du potentiel  $V_{\text{Kr}}$ , mais de  $V_{\text{Kr,m}}$ . La raison pour cela est que le premier conservait un état de cœur ayant une énergie telle qu'il était résonant avec le champ électrique sur la gamme de longueurs d'onde utilisées lors de l'expérience. Le traitement alors utilisé pour le supprimer a été détaillé lors du Chapitre 1, tandis que la formule de  $V_{\text{Kr,m}}$  est donnée en [Annexe G](#). Précisons cependant que ceci nous oblige à travailler dans la jauge des longueurs.

Nous rappelons que l'évaluation numérique des paramètres physiques d'intérêt, tels les indices de réfraction (linéaire et non-linéaire), la population laissée dans l'état fondamental ainsi que dans les états excités à la fin de l'impulsion, et aussi l'ionisation, a également été développée au cours du premier Chapitre de cette thèse.

Dans le cadre de ces simulations numériques, nous présentons sur la [figure 4.3](#) l'ionisation en fonction de la longueur d'onde pour un éclairnement fixe de  $31 \text{ TW.cm}^{-2}$ . On remarque alors que, globalement, la probabilité d'ionisation augmente à mesure que la longueur d'onde centrale du champ diminue (et donc que son énergie augmente). Toutefois, on observe que des longueurs d'onde favorisent le processus d'ionisation du krypton : elles correspondent en fait à des résonances atomiques de ce système. Nos simulations numériques sont donc en accord avec ce qui a été dit précédemment à propos des résonances atomiques renfor-

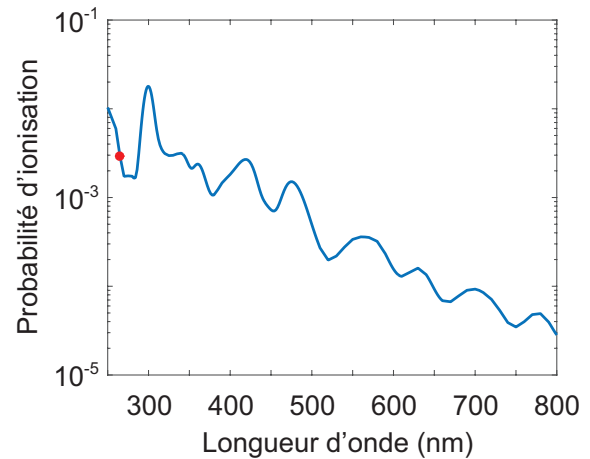


FIGURE 4.3: Probabilité d'ionisation associée à l'interaction avec du krypton d'une impulsion gaussienne d'éclairnement crête  $31 \text{ TW.cm}^{-2}$  et de durée FWHM (en éclairnement) de 7 fs. Le marqueur rouge indique le seuil d'ionisation à trois photons.

çant l'ionisation. De plus, le marqueur rouge, sur cette même figure, indique la longueur d'onde en-dessous de laquelle on franchit le seuil d'ionisation à trois photons. Par conséquent, il n'est pas étonnant de voir l'ionisation augmenter pour les longueurs d'onde inférieures à celle-ci. Ceci étant, il ne faut pas se limiter à regarder l'ionisation à un éclairement constant en fonction de la longueur d'onde. En effet, les filaments que nous avons obtenu en expérience pour des longueurs d'onde différentes ne se sont pas nécessairement stabilisés à la même valeur d'éclairement.

### 1.2.1 Confrontation modèle classique/modèle champ fort

Pour savoir de quoi il retourne, nous représentons sur la figure 4.4 la variation de l'indice de réfraction  $\Delta n = n(\lambda_0, I) - n(\lambda_0, I = 0)$  en fonction de la longueur d'onde  $\lambda_0$  et de l'éclairement crête  $I$ . Ce dernier étant fixé constant en fonction de  $\lambda_0$ , l'énergie ne l'est pas.

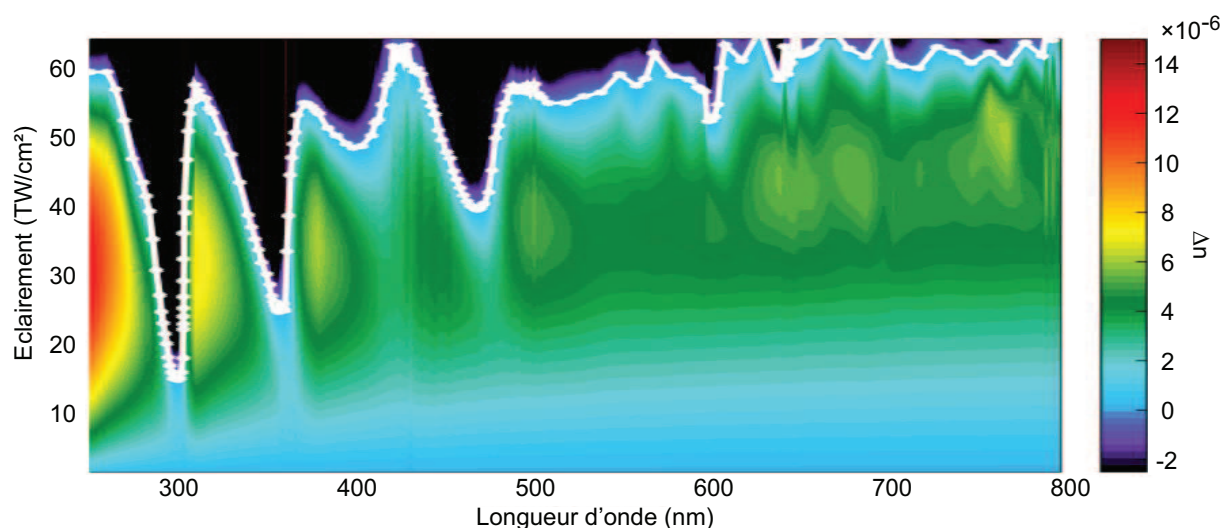


FIGURE 4.4: Indice de réfraction non-linéaire  $\Delta n$  du krypton calculé en fonction de l'éclairement crête et de la longueur d'onde centrale de l'impulsion, d'une durée de 7 fs. La courbe blanche représente l'éclairement crête  $I_{\text{inv}}$  pour lequel  $\Delta n$  change de signe.

Le même comportement de  $\Delta n$  vis-à-vis de l'éclairement est observable pour chaque longueur d'onde. Tout d'abord, l'indice de réfraction non-linéaire augmente quasiment linéairement en fonction de  $I$ , ce qui correspond à l'effet Kerr, bien connu. La valeur de l'indice de réfraction non-linéaire  $n_2$  associée est d'ailleurs estimée d'après la pente à  $n_2 \simeq 5 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2 \cdot \text{TW}^{-1}$ . La valeur de l'éclairement qui voit  $\Delta n$  s'annuler, notée  $I_{\text{inv}}$ , est soulignée par la courbe blanche sur cette même figure, et correspond à la compensation des effets focalisants par les effets défocalisants : en d'autres termes, à l'éclairement auquel le filament se stabilise. C'est cette valeur

d'éclairement, dépendante de la longueur d'onde, qui nous intéresse. Cette dernière a, à peu de chose près, la même valeur entre  $\lambda_0 = 500$  nm et  $\lambda_0 = 800$  nm, à savoir environ  $60 \text{ TW.cm}^{-2}$ . Ceci indique que le clamping de l'éclairement est dû à un processus non-résonant et que la structure atomique précise de l'atome ne joue aucun rôle, comme cela était pointé dans [14]. En-dessous de  $\lambda_0 = 500$  nm, néanmoins, nos simulations prévoient que l'éclairement  $I_{\text{inv}}$  décroisse de manière drastique au niveau de trois régions spectrales différentes, localisées respectivement autour de 300 nm, de 357 nm et de 470 nm. En particulier, en ces longueurs d'onde particulières, l'éclairement de clamping descend respectivement à 14, 24 et 39  $\text{TW.cm}^{-2}$ . Un quatrième pic de résonance, d'amplitude moindre puisque l'éclairement ne descend que jusqu'à 48  $\text{TW.cm}^{-2}$ , est également identifiable à 400 nm.

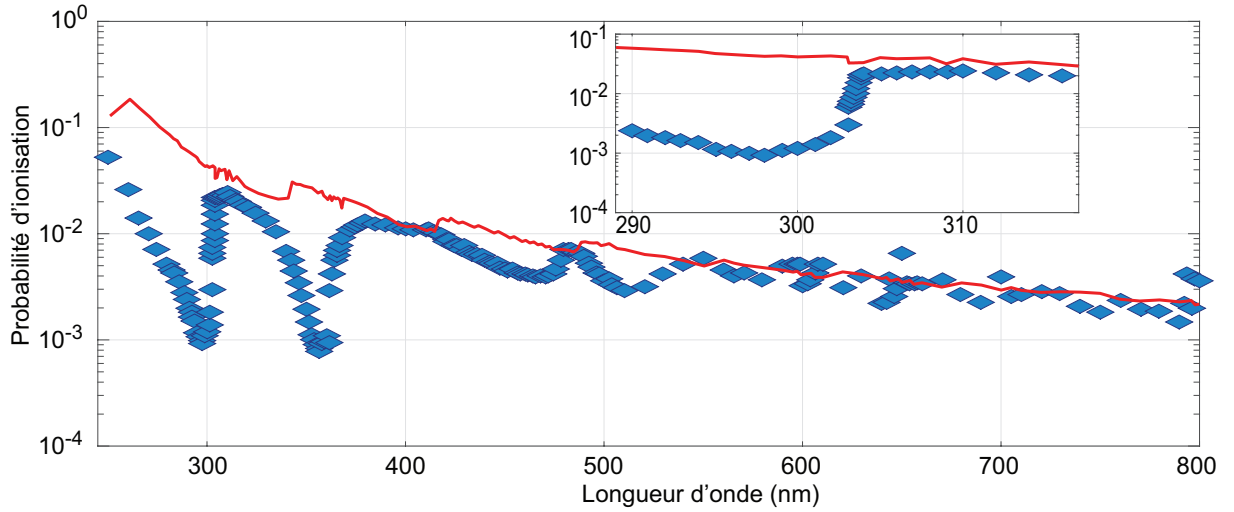


FIGURE 4.5: Probabilité d'ionisation en fonction de la longueur d'onde du laser, à l'éclairement auquel  $\Delta n$  change de signe, selon les calculs *ab initio* (diamants bleus) et selon le modèle usuel de la filamentation (courbe rouge). La durée d'impulsion est de 7 fs. Le médaillon correspond à la région spectrale étudiée expérimentalement.

Le niveau de l'ionisation obtenu à l'éclairement de clamping, représenté en fonction de la longueur d'onde sur la figure 4.5, subit deux chutes d'un ordre de grandeur, localisées aux mêmes longueurs d'onde que celles relevées sur la figure 4.4, à savoir 300 nm et 357 nm. Cette diminution locale de l'ionisation autour de  $\lambda_0 = 300$  nm est en excellent accord, y compris de manière quantitative, avec les observations expérimentales, comme le montre la figure 4.1(b). La diminution de la probabilité d'ionisation à la résonance, identifiée à la fois du point de vue expérimental et théorique, suggère dès lors que le clamping de l'éclairement n'est pas dû à l'ionisation dans cette situation. En particulier, lorsque l'ionisation est responsable du clamping, la stabilisation du filament se produit lorsque  $n_2 I = \rho/2\rho_c$ , où l'expression de  $\rho_c$  est donnée

par la formule (1.6). La courbe rouge sur la figure 4.5 montre la probabilité d'ionisation à  $I_{\text{inv}}$  en fonction de la longueur d'onde, calculée dans ce cadre. En très bon accord avec nos calculs E.S.D.T. dans l'infrarouge, le scénario du clamping basé sur l'ionisation échoue à décrire la forte diminution de la densité d'électrons libres prenant place dans l'ultraviolet.

Afin d'identifier dans quelle mesure chaque processus participe à la stabilisation du filament à  $\lambda_0 = 300$  nm, on représente la contribution de chacun d'eux sur la figure 4.6 : en rouge l'effet Kerr, en violet l'ionisation, en vert les HOKE et en bleu la variation totale de l'indice de réfraction non-linéaire. Le médaillon montre la variation totale de l'indice de réfraction (courbe bleue), la somme des contributions de l'effet Kerr et de l'ionisation (traitillés violets) et la somme de l'effet Kerr et des HOKE (pointillés verts). Les simulations numériques révèlent que l'ionisation contribue au clamping de l'éclairement à hauteur de 10 % seulement. Par conséquent, l'ionisation ne peut pas être identifiée comme le mécanisme responsable de la stabilisation de l'éclairement, prenant place dans ce domaine spectral lors du processus de filamentation [voir figure 4.6]. Cette observation est en parfait accord avec les résultats expérimentaux présentés précédemment et confirme l'existence d'un régime de filamentation reposant sur l'effet Kerr. Dans notre cas, le mécanisme de clamping est en fait dû à des transitions résonantes à trois photons amenant à une importante défocalisation, résultant d'un effet Kerr d'ordre élevé. Ceci est analogue à l'inversion de signe de l'indice de réfraction non-linéaire  $n_2$ , se produisant au voisinage d'une résonance à deux photons [15]. Comme nous pouvons le voir ici, le même phénomène survient au voisinage d'une transition à trois photons pour l'indice de réfraction non-linéaire d'ordre plus élevé  $n_4$ . Ce dernier est estimé, à partir de nos simulations numériques, à une valeur de  $n_4 = -5.03 \times 10^{-8} \text{ cm}^4 \cdot \text{TW}^{-2}$ , à  $\lambda_0 = 300$  nm. Notons cependant que décrire la dynamique de la réponse optique est plus complexe que de simplement considérer un indice de réfraction non-linéaire d'ordre plus élevé, de par la nature non-instantanée du processus d'absorption à trois photons proche d'une résonance.

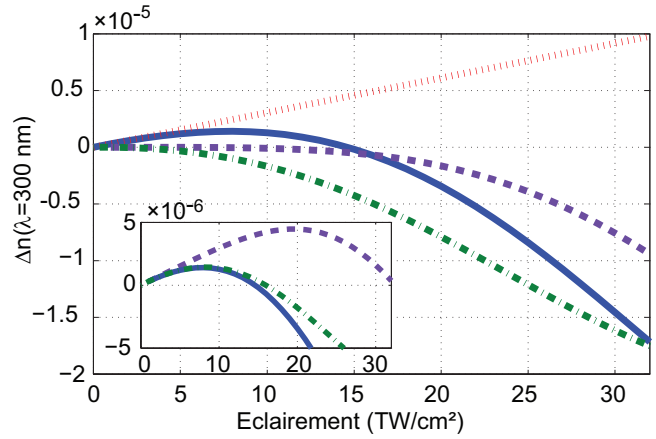


FIGURE 4.6: Contributions de l'effet Kerr (pointillés rouges), de l'ionisation (traitillés violets) et des HOKE (pointillés-traitillés verts) à la variation totale de l'indice de réfraction (courbe bleue) du krypton à  $\lambda_0 = 300$  nm en fonction de l'éclairement.

Enfin, dans le but d'illustrer ce phénomène résonant, les populations laissées dans les premiers états excités sont représentées sur la figure 4.7, en fonction de la longueur d'onde centrale de l'impulsion pour deux valeurs d'éclairement différentes [(a)  $2 \text{ TW.cm}^{-2}$ , (b)  $14 \text{ TW.cm}^{-2}$ ]. Les courbes bleues (respectivement, rouges) soulignent les résonances multiphotoniques impliquant un nombre impair (respectivement, pair) de photons. L'état fondamental  $4p$  n'y est pas représenté, pour plus de clarté.

Dans le premier cas, à faible éclairement, le décalage par effet Stark dynamique est négligeable du fait que les énergies propres des états excités ne sont pas perturbées par le champ électrique. Au contraire, dans le second cas – à plus haut éclairement –, l'effet Stark dynamique commence à jouer un rôle et déplace les longueurs d'onde en lesquelles les résonances prennent place, et ce tout au long de l'excitation. C'est particulièrement le cas pour les grandes longueurs d'onde, puisque le déplacement en énergie varie selon  $\lambda_0^2$  [16]. On notera que le déplacement des lignes bleues et rouges par effet Stark dynamique est pris en compte pour (b). Par conséquent, tandis que les résonances continuent d'être très marquées dans l'ultraviolet pour des éclairement plus élevés, elles sont au contraire davantage lissées dans l'infrarouge. Ceci explique pourquoi les effets dûs à des résonances ne peuvent être observés que dans l'ultraviolet. Par conséquent, les pics de résonance observés sur la figure 4.5 peuvent être identifiés comme correspondants au pompage : des états  $6s$  et  $4d$  à  $\lambda_0 = 300 \text{ nm}$  (à trois photons), de l'état  $5s$  à  $\lambda_0 = 357 \text{ nm}$  (à trois photons), de l'état  $5p$  à  $\lambda_0 = 400 \text{ nm}$  (à quatre photons) et des états  $7s$  et  $5d$  à  $\lambda_0 = 470 \text{ nm}$  (à cinq photons).

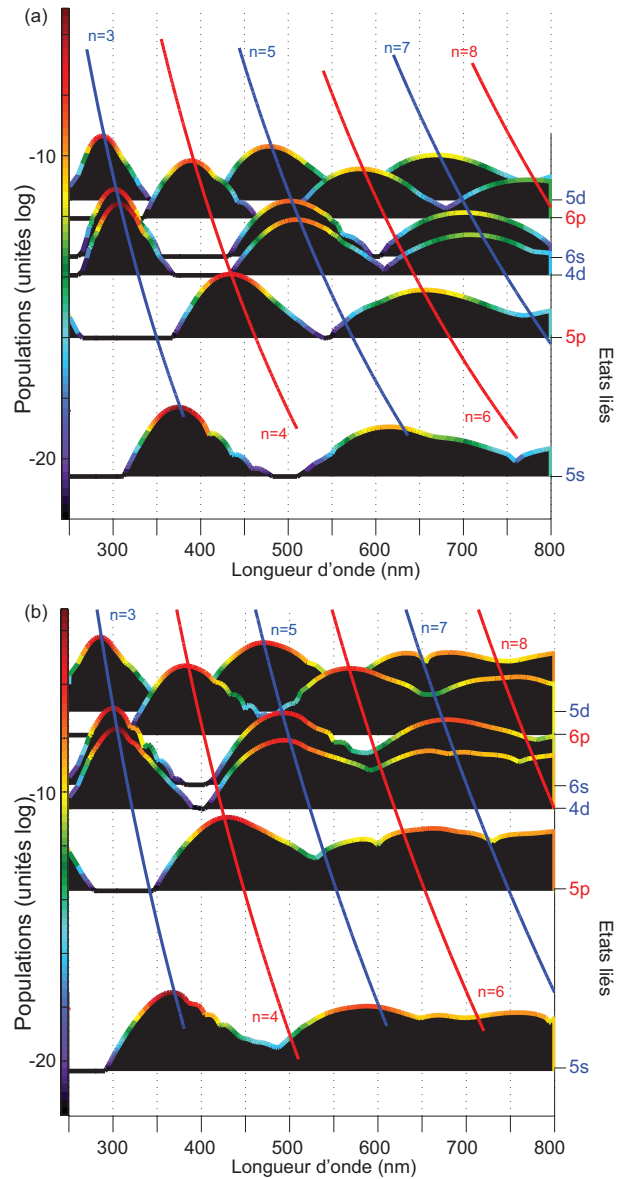


FIGURE 4.7: Populations dans les états excités en fonction de la longueur d'onde centrale du laser à : (a)  $2 \text{ TW.cm}^{-2}$ , (b)  $14 \text{ TW.cm}^{-2}$ ..

### 1.2.2 Durée d'impulsion plus longue

A ce niveau, il peut être intéressant de savoir quelle est l'influence de la durée du champ électrique utilisée sur les enseignements auxquels nous aboutissons. En effet, une impulsion de 7 fs de durée possède un spectre plus large qu'une impulsion de 50 fs et peut, de ce fait, potentiellement atteindre un plus grand nombre d'états. Pour répondre à cette question, nous lançons la même série de simulations numériques, à ceci près qu'elle concerne cette fois-ci des impulsions d'une durée (FWHM) de 50 fs en éclairnement, c'est-à-dire à la valeur à laquelle nous avons estimé la durée des impulsions utilisées lors de nos expériences.

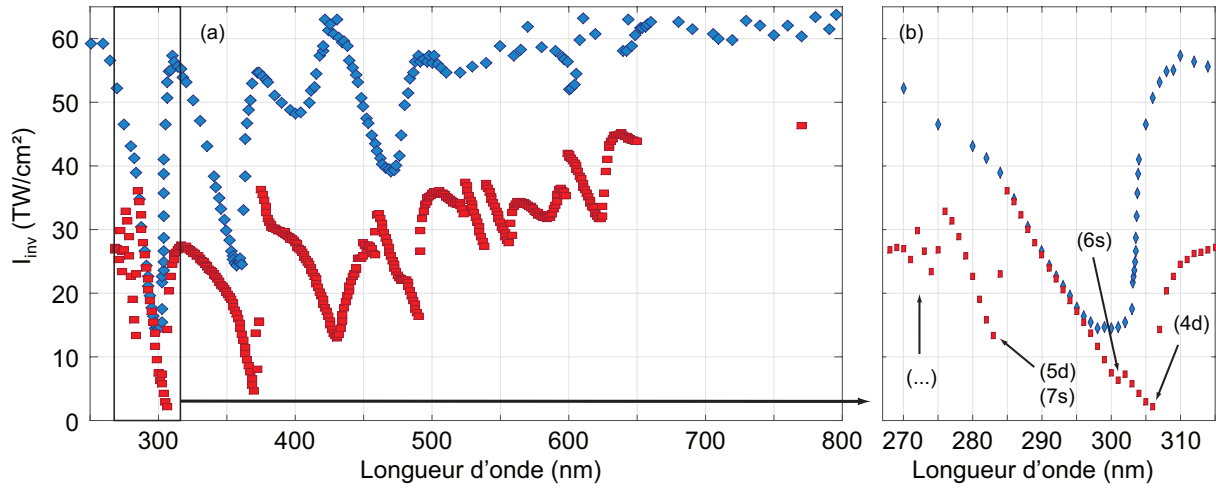


FIGURE 4.8: (a) Evolution de  $I_{inv}$  en fonction de la longueur d'onde pour des durées d'impulsions de 7 fs (courbe bleue) et 50 fs (courbe rouge). (b) zoom sur la région spectrale où plusieurs résonances à trois photons prennent place.

Ainsi, la figure 4.8 compare l'éclairement  $I_{inv}$  en fonction de la longueur d'onde pour ces deux valeurs de durée d'impulsion : en bleu, le cas à 7 fs (qui correspond donc précisément à la courbe blanche de la figure 4.4) ; en rouge, le cas à 50 fs. On peut donc vérifier qu'utiliser des durées d'impulsion différentes ne change pas, de manière qualitative, la conclusion de notre travail numérique. Seules différences, le fait que l'annulation de  $\Delta n$  a lieu pour des éclaircements plus faibles pour le cas à 50 fs – les impulsions étant plus longues, davantage de population peut être promue dans les états résonants, accentuant par la même l'ampleur de l'effet – et que les résonances y sont également plus prononcées – ceci étant directement lié au spectre de l'impulsion qui est plus étroit pour l'impulsion longue –. Notamment, autour de 300 nm [voir figure 4.8(b)], les impulsions de 50 fs révèlent deux pics de résonance, correspondants aux états (6s) et (4d) (respectivement résonants à 302.5 nm et 307.6 nm), là où les impulsions de 7 fs n'en décelaient qu'un seul. De la même manière, pour des longueurs d'onde encore plus

---

petites, d'autres pics de résonance ressortent dans le cas des impulsions d'une durée de 50 fs : à  $\lambda_0 = 283$  nm, les états ( $7s$ ) et ( $5d$ ) sont à leur tour résonants à trois photons. Si l'on continue à diminuer la longueur d'onde du laser, de plus en plus d'états deviennent résonants. Notons que notre modèle théorique ne décrit qu'un seul état pour chaque paire de nombres quantiques ( $n, l$ ) : tous les états impliqués lors de nos expériences, recensés dans le tableau 4.1, ne sont pas présents ici et nos résultats numériques ne peuvent donc pas refléter la stricte réalité.

### 1.3 Généralisation au cas de l'argon

Dans le but de montrer que les conclusions auxquelles nous sommes arrivés dans le krypton sont extensibles à n'importe quel gaz rare, des simulations numériques de résolution de l'E.S.D.T. ont été effectuées en remplaçant ce dernier par de l'argon. La durée FWHM de 7 fs en éclairage était à nouveau choisie pour l'impulsion gaussienne, afin d'éviter un temps de calcul trop long. Ces simulations ayant été effectuées en parallèle de la rédaction du présent manuscrit, d'une part la durée de 50 fs n'a pas été testée et d'autre part l'exploration en longueur d'onde de pompe s'est faite sur une fourchette moins étendue, n'allant notamment que de 235 nm à 535 nm. La discrétisation en longueur d'onde était de 1 nm entre 235 nm (longueur d'onde en-dessous de laquelle le seuil d'ionisation à trois photons est franchi) et 400 nm, et est de 5 nm au-delà, tandis que celle en éclairage se fait tous les  $\text{TW}\cdot\text{cm}^{-2}$ . De la même manière que pour l'étude précédente dans le krypton, le potentiel que l'on utilisait jusqu'alors,  $V_{\text{Ar}}$ , a dû être modifié pour supprimer un état de cœur qui aurait faussé les résultats. Le potentiel  $V_{\text{Ar,m}}$ , dont la formule est elle-aussi donnée en Annexe G, était alors employé.

La variation de l'indice  $\Delta n$  en fonction de la longueur d'onde  $\lambda_0$  et de l'éclairement crête  $I$  est représentée sur la figure 4.9. La valeur de  $I_{\text{inv}}$  est soulignée par la courbe blanche. L'allure de cette courbe est très semblable à celle obtenue dans le krypton à ceci près, bien sûr, que les pics de résonance ne sont pas localisés aux mêmes valeurs de longueurs d'onde. Ainsi, alors qu'en-dessous de 265 nm le seuil d'ionisation à trois photons est franchi dans le krypton, on peut observer qu'un pic de résonance est présent dans l'argon à  $\lambda_0 = 259$  nm, et correspond au pompage conjoint à trois photons des états  $5s$  et  $3d$ , très proches en énergie. Ce pic de résonance en camoufle presque entièrement un autre, toutefois discernable à 245 nm et relié au pompage à trois photons des états  $6s$  et  $4d$ , également très proches en énergie. Remarquons que parmi les états de l'argon correspondant à des longueurs d'onde de cette région spectrale et référencés par le N.I.S.T. [12], tenant compte de la structure fine de l'atome, plusieurs pourraient être pompés à 266 nm (i.e. la troisième harmonique de la longueur d'onde de notre source laser). Il pourrait donc être expérimentalement intéressant d'étudier le phénomène dans l'argon. En allant vers les plus grandes longueurs d'onde, un troisième pic de résonance correspondant au pompage à trois photons d'un état, en l'occurrence le  $4s$ , apparaît pour une longueur d'onde

de pompe de 307 nm. Il est donc relativement proche de celui observé lors de nos expériences dans le krypton. Il s'agit bien sur d'une coïncidence, et le test expérimental a d'ailleurs été rapidement effectué (mais sans enregistrer de résultats) dans l'argon : la conclusion était alors que le renforcement résonant de la filamentation avait lieu pour des longueurs d'onde de pompe certes proches mais différentes dans le krypton et dans l'argon, prouvant par la même qu'aucun artefact n'entraîne en jeu lors de nos expériences.

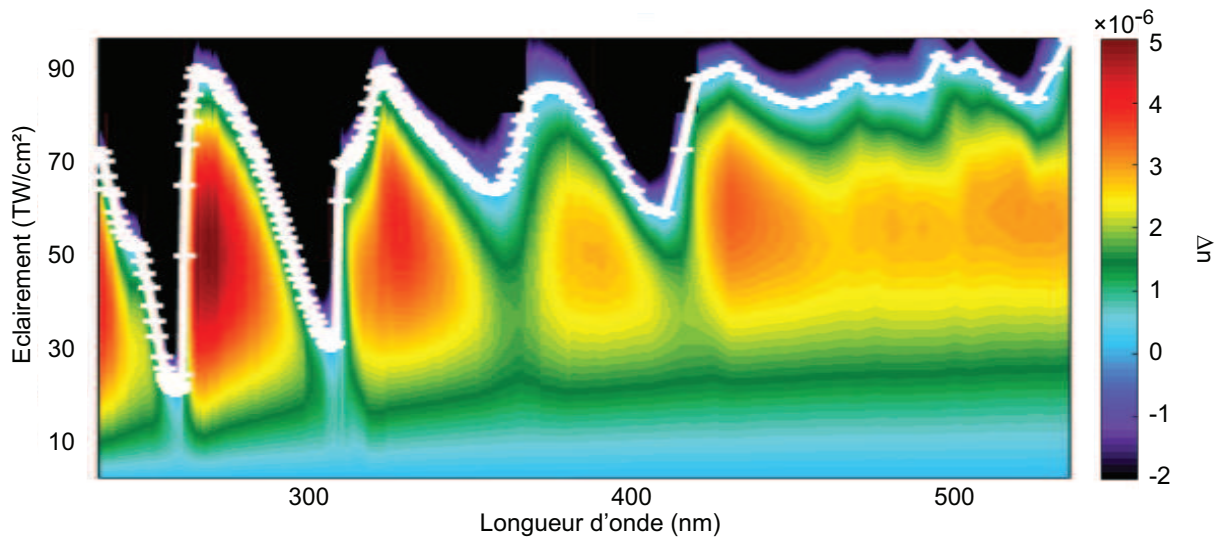


FIGURE 4.9: Indice de réfraction non-linéaire  $\Delta n$  de l'argon calculé en fonction de l'éclairement crête et de la longueur d'onde centrale de l'impulsion, d'une durée de 7 fs. La courbe blanche représente l'éclairement crête  $I_{\text{inv}}$  pour lequel  $\Delta n$  change de signe.

En continuant à progresser vers les grandes longueurs d'onde, deux autres pics de résonance sont clairement identifiables, respectivement à 357 nm et 410 nm. Ils correspondent respectivement au pompage à quatre photons de l'état  $4p$  – l'état fondamental étant le  $3p$  – et au pompage à cinq photons conjoint des états  $5s$  et  $3d$ . Du fait qu'elles impliquent plus de photons, ces résonances amènent la variation de l'indice de réfraction  $\Delta n$  à s'inverser pour des valeurs d'éclairement pic plus élevées que pour celles précédemment identifiées (de 20 à 30  $\text{TW}\cdot\text{cm}^{-2}$  contre environ 60  $\text{TW}\cdot\text{cm}^{-2}$ ). Les mêmes considérations concernant le spectre large de nos impulsions de 7 fs, faites précédemment dans le krypton, sont évidemment valables dans l'argon : les valeurs des longueurs d'onde de pompe associées à chaque pic de résonance permettent de se faire une idée assez précise, mais sont en fait quelque peu décalées – vers les courtes longueurs d'onde – par rapport aux résonances exactes. L'identification des états pompés est, quant à elle, correcte. Notons également que la variation de l'indice de réfraction sature dans l'argon à des valeurs jusqu'à trois fois inférieures à celles obtenues dans le krypton.

---

## 1.4 Conclusion

Pour conclure, l'existence d'un régime de filamentation gouverné par l'effet Kerr a été démontrée expérimentalement, dans le krypton à  $\lambda_0 = 300$  nm. Dans ce régime, la longueur du filament est grandement allongée, les pertes optiques non-linéaires sont fortement réduites et l'ionisation diminue d'un ordre de grandeur. Les résultats expérimentaux sont appuyés par des calculs quantiques *ab initio*, en excellent accord avec les expériences.

Les résultats théoriques soulignent le rôle de transitions résonantes à trois photons concernant ce processus de filamentation gouverné par l'effet Kerr dans l'ultraviolet. En particulier, après l'interaction, les deux états excités impliqués dans les résonances ( $6s$  et  $4d$ ) sont alors significativement peuplés. Notamment, ils le sont bien davantage que l'état excité  $5p$ , localisé plus bas en énergie que les deux précédents et qui ne peut pas être peuplé par un processus à trois photons du fait de sa parité.

La résolution de l'E.S.D.T. prédit en fait une inversion de population lorsque la longueur d'onde du laser est fixée à 300 nm, résultant alors potentiellement en un effet laser dans le krypton, à des longueurs d'onde correspondant aux transitions  $6s - 5p$  et  $4d - 5p$ . L'étude de cet effet laser dans le krypton fait l'objet de la prochaine partie de ce Chapitre. Ce processus de filamentation renforcée par résonance dans l'ultraviolet est également supposé prendre place dans d'autres systèmes atomiques. Notamment, nos simulations numériques prédisent que cela doit être le cas dans l'argon, gaz dans lequel ce schéma de pompage à trois photons a été récemment utilisé pour observer un effet laser vers l'avant et vers l'arrière [17].

Enfin, il pourrait être intéressant d'étudier la possibilité d'étendre ce travail à des gaz moléculaires, en particulier ceux ayant un intérêt atmosphérique. En effet, même si les effets résonants sont à priori moins efficaces dans les molécules, la généralisation de ce travail aux molécules d'oxygène ou d'azote pourrait permettre l'optimisation du processus de filamentation dans l'atmosphère ainsi que des applications sous-jacentes, par un choix approprié de la longueur d'onde du laser.

---

## 2 Effet laser dans le krypton

Au cours de la partie précédente, il a été montré grâce à des simulations numériques que des états excités du krypton (en l'occurrence, les états  $6s$  et  $4d$ ) pouvaient être peuplés, au moyen d'un pompage à trois photons à une longueur d'onde comprise autour de 300 nm. L'inversion de population avec les états  $5p$  qui en résulte nous amène donc à penser qu'un effet laser pourrait alors prendre place. Dans le but de confirmer ces prédictions théoriques, le spectre de la lumière se propageant selon l'axe du laser a été relevé après la cellule. Le faisceau pompe était alors rejeté en utilisant un miroir dichroïque, tandis que la lumière transmise était recueillie grâce à une fibre optique, elle-même connectée à un analyseur de spectre optique (OSA), un Yokogawa AQ6370. Ce dernier nous permettait d'analyser, de manière très résolue, toutes les raies situées en-dessous de  $1.7\ \mu\text{m}$ . Pour celle située au-dessus de cette longueur d'onde, un spectromètre plus classique, de type NIRQUEST (OceanOptics) était alors employé. La plupart des raies observées par Miller lorsqu'il étudia le processus d'émission stimulée dans le krypton [18], en utilisant pour sa part un schéma d'excitation à deux photons, ont ainsi été retrouvées.

Nous commencerons par présenter le schéma des transitions observées lors de cette étude de l'effet laser. De nombreuses analyses ont été menées vis-à-vis des différents paramètres d'influence sur le phénomène, mais nous faisons le choix de consigner les résultats de la plupart en [Annexe L](#). En effet, notre compréhension globale du processus demeure limitée, et notre volonté est ici d'éviter un « effet catalogue ». C'est pourquoi nous ne présenterons au cours de cette partie que les résultats de la dépendance des raies d'émission vis-à-vis de la longueur d'onde de pompe, lorsque celle-ci est polarisée horizontalement puis circulairement. En [Annexe L](#), le lecteur pourra ainsi trouver les résultats d'études menées sur les raies d'émission en fonction de la pression du gaz, sur la lumière rétro-propagée, sur la polarisation des raies d'émission ainsi que d'une expérience pompe-sonde. Les résultats présentés ici n'ont pas encore fait l'objet d'une publication.

### 2.1 Diagramme des transitions

La figure 4.10 présente le schéma des transitions observées lors de notre étude de l'effet laser dans le krypton. Celui-ci ne prétend pas exposer toutes les transitions pouvant prendre place dans du krypton, mais uniquement celles qui ont été identifiées au moins une fois au cours de nos différentes études. Il se peut ainsi qu'un état soit référencé [12], mais ne soit impliqué dans aucune transition observée. Plusieurs des états se trouvant dans cette situation respectent d'ailleurs les conditions nécessaires pour qu'une transition les impliquent, sans que celle-ci ne soit toutefois identifiée expérimentalement (ce qui ne veut pas nécessairement dire qu'elle ne prend effectivement pas place).

En lien avec le phénomène présenté dans la partie précédente, l'effet laser est initié avec le pompage à trois photons des états  $6s$  et  $4d$ , représenté par les flèches violettes. On constate à cet endroit que tous les états du tableau 4.1 ne sont pas présents sur ce schéma. En effet, même s'ils sont *a priori* peuplés de la même manière que les autres, il s'avère que tous ne sont pas impliqués dans des transitions observées. Les cinq états ainsi peuplés servent ensuite d'états de départ de transitions vers les états  $5p$ , représentés par les flèches rouges : c'est le premier étage de notre effet laser.

En effet, ces états  $5p$ , désormais peuplés, constituent à leur tour des états de départ de transitions vers d'autres états excités, situés plus bas qu'eux en énergie, avec lesquels ils sont donc en inversion de population : les états  $5s$ . Les transitions associées sont représentées par les flèches vertes, et correspondent au deuxième étage de notre effet laser. Toutes les longueurs d'onde sont évaluées dans l'air, sauf celles associées aux pompes. Tous les états  $5p$  et  $5s$  impliqués sur notre schéma sont recensés dans le tableau 4.2, aux côtés de leurs énergies respectives. En particulier, on peut noter que deux états  $5p$  sont très proches en énergie, et sont espacés d'environ  $0.0016 \text{ eV}$  seulement, ce qui ne sera pas sans conséquences au niveau des résultats que nous présenterons par la suite. La première étude concerne logiquement l'évolution de chacune de ces raies vis-à-vis de la longueur d'onde de pompe.

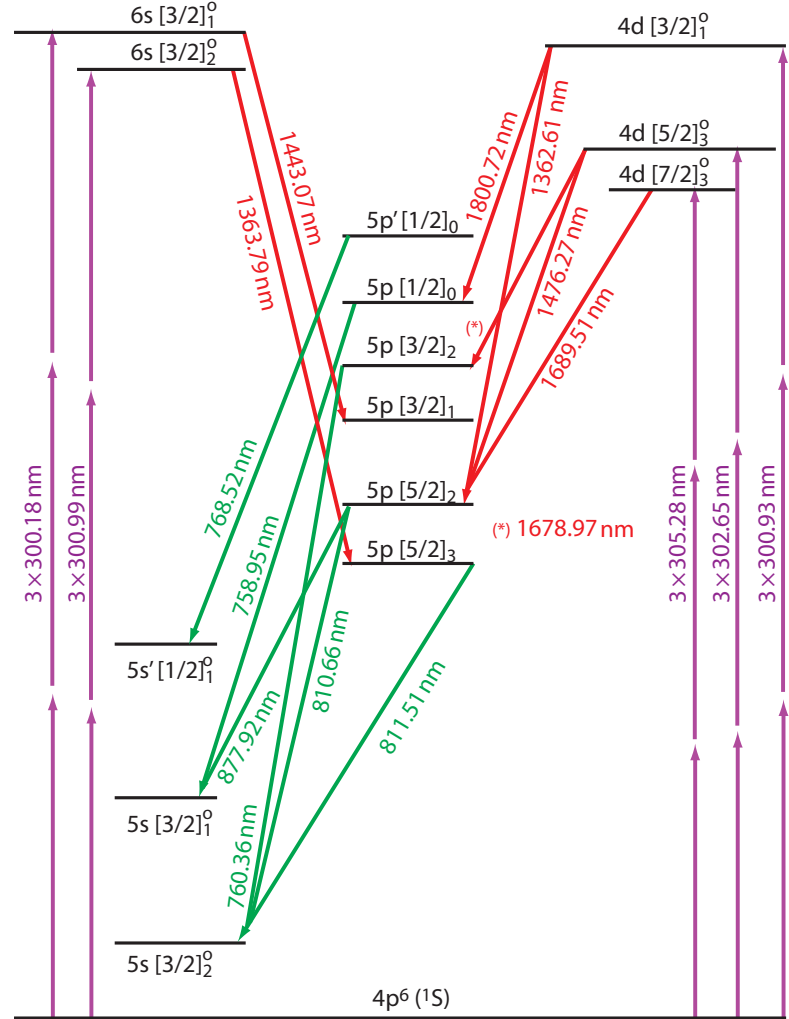


FIGURE 4.10: En violet, le pompage à trois photons des niveaux présentés dans le tableau 4.1. En rouge, premier étage de l'effet laser, depuis les niveaux pompés vers des états  $5p$ , dans l'infrarouge. En vert, deuxième étage de l'effet laser, des états  $5p$  vers des états  $5s$ , dans le visible et dans le proche infrarouge. Le schéma n'est pas à l'échelle.

---

|              |               |               |                |              |
|--------------|---------------|---------------|----------------|--------------|
| Etat         | $5s[3/2]_2^o$ | $5s[3/2]_1^o$ | $5s'[1/2]_1^o$ | $5p[5/2]_3$  |
| Energie (eV) | 9.92          | 10.03         | 10.64          | 11.44(3)     |
| $5p[5/2]_2$  | $5p[3/2]_1$   | $5p[3/2]_2$   | $5p[1/2]_0$    | $5p'[1/2]_0$ |
| 11.44(4)     | 11.53         | 11.56         | 11.67          | 12.26        |

TABLE 4.2: Etats  $5p$  et  $5s$  impliqués dans les deux étages de l'effet laser.

## 2.2 Etudes en fonction de la longueur d'onde de pompe

Pour expliquer l'absence d'une raie, que l'on est pourtant en mesure d'attendre à une longueur d'onde de pompe donnée, l'argument de la compétition entre transitions – c'est-à-dire la domination d'une transition sur une autre, avec laquelle elle a un état en commun (celui de départ ou celui d'arrivée) – pourra être invoqué. En effet, dans le cas où les deux transitions ont en commun leur état de départ, la dominante emportera avec elle la majorité de la population initialement présente dans l'état en question, empêchant l'autre de s'exprimer. Dans le cas où c'est l'état d'arrivée qui est partagé entre les deux transitions, la dominante apporte de la population dans cet état, détruisant ainsi l'inversion de population qui aurait permis à l'autre transition de prendre place. Pour qu'il y ait concurrence, il faut donc que les deux transitions (ou plus) appartiennent au même étage de l'effet laser. Lors de l'injection de la lumière dans la fibre, on pouvait observer qu'optimiser l'amplitude du signal d'une raie pouvait diminuer légèrement celle d'une autre. Ainsi, le choix fut fait d'optimiser les raies d'émission à 1678.97 nm et 1689.51 nm, qui sont situées à proximité du bord supérieur de la région spectrale couverte par l'OSA. De plus, la pression de krypton dans la cellule était de 1 bar et l'énergie de la pompe, polarisée horizontalement, était fixée à environ  $15 \mu\text{J}$  (elle fluctuait légèrement en fonction de la longueur d'onde, mais dans des proportions relativement faibles). La figure 4.11 présente toutes les raies d'émission observées durant nos expériences, en regard les unes des autres pour mieux se représenter les différents étages, lorsque la longueur d'onde de pompe se déplace entre 298 nm et 307 nm. On peut ainsi remarquer que l'effet laser prend place dans la même région spectrale que le processus de renforcement résonant de la filamentation, décrit lors de la partie précédente. Notamment, alors que des états sont atteignables à trois photons jusqu'à environ 310 nm [cf tableau 4.1], ni renforcement résonant ni raie d'émission ne sont pourtant observables au-delà de 307 nm (cette zone spectrale a bel et bien été explorée, mais puisqu'aucune raie d'émission n'y est apparue, elle n'est pas représentée sur la figure 4.11).

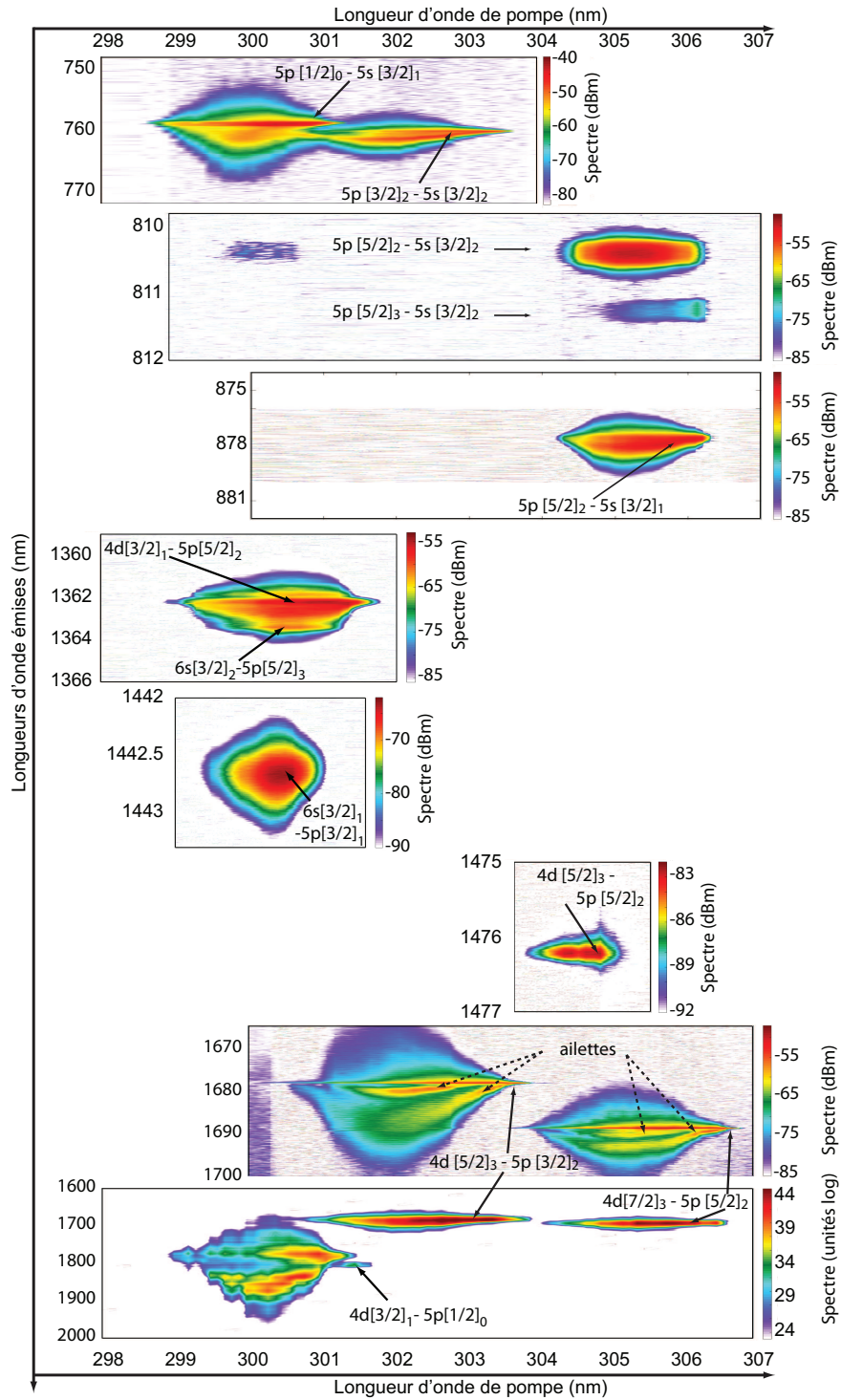


FIGURE 4.11: Longueurs d'onde d'émission observées dans le krypton, en fonction de la longueur d'onde de la pompe, celle-ci étant polarisée horizontalement.

---

### 2.2.1 Cas où la pompe est polarisée horizontalement

Les résultats peuvent être séparés en distinguant trois zones spectrales, à savoir autour de 300 nm, autour de 302.5 nm et autour de 305.3 nm, ce qui correspond bien aux longueurs d'onde de résonance pour atteindre les états  $6s$  et  $4d$  à trois photons.

- *région spectrale centrée à 305.3 nm* : un seul état est pompé pour cette valeur de longueur d'onde, à savoir  $4d[7/2]_3^o$ . Celui-ci engendre alors une transition vers l'état  $5p[5/2]_2$ , à 1689.51 nm. La raie d'émission qui lui est associée présente une forme très inhabituelle. En effet, on peut observer que deux ailettes [indiquées sur la figure 4.11] se déploient en fonction de la valeur de la longueur d'onde de pompe, en une forme proche d'un arc de cercle, orienté du côté des infrarouges et dont le diamètre serait de même longueur que la gamme spectrale sur laquelle la raie d'émission existe. Toutefois, à ce jour, nous sommes incapables d'expliquer l'origine d'un tel comportement.

Ensuite, partant de l'état  $5p[5/2]_2$ , deux transitions prennent place : la première vers l'état  $5s[3/2]_1^o$  (à 877.92 nm), et la deuxième vers l'état  $5s[3/2]_2^o$  (à 810.66 nm). Il semblerait donc que, bien que ces deux transitions soient en concurrence au niveau de leur état de départ commun, leurs forces respectives soient de valeurs similaires.

Enfin, la raie à 811.51 nm est également présente, de manière assez surprenante puisque nous n'avons pas identifié son état de départ,  $5p[5/2]_3$ , comme étant peuplé. La présence de cette raie prouve qu'il en est autrement. Deux hypothèses sont alors proposées pour expliquer ce fait : soit la transition  $4d[7/2]_3^o \rightarrow 5p[5/2]_3$  prend en fait place, sans que l'on ait pu en avoir la preuve au travers d'une observation de la raie correspondante (à 1685.81 nm) ; soit la très grande proximité en énergie entre les états  $5p[5/2]_2$  et  $5p[5/2]_3$  joue un rôle dans le fait que le deuxième se retrouve peuplé. Comme nous aurons l'occasion de l'invoquer à nouveau un peu plus loin, ces deux états semblent en effet être très « connectés ». Notons toutefois, et cela est davantage visible à partir d'une autre série de mesures [cf figure 4.12(b)], que cette raie à 811.51 nm est plus intense au niveau de la limite supérieure de l'intervalle de longueurs d'onde de pompe pour lesquelles elle est observable. En fait, sur une petite plage spectrale, elle est même visible tandis que sa voisine à 810.66 nm ne l'est plus ! Nous ne savons pas expliquer ceci pour le moment.

- *région spectrale centrée à 302.5 nm* : dans ce cas également, un seul état est pompé :  $4d[5/2]_3^o$ . Depuis celui-ci, une transition part pour atteindre l'état  $5p[3/2]_2$  à 1678.97 nm. La raie qui lui est associée présente la même forme inhabituelle que celle à 1689.51 nm, vue ci-

avant. Toutefois, une autre raie est observable au niveau de cette région spectrale : centrée à 1476.27 nm, elle sort difficilement du bruit et correspond à la transition  $4d[5/2]_3^o \rightarrow 5p[5/2]_2$ . Cette transition est particulière en ceci qu'elle est en concurrence à la fois avec la transition à 1678.97 nm (via leur état de départ commun) et avec celle à 1689.51 nm (via leur état d'arrivée commun). Etant donné qu'elle est observable sur une plus courte plage spectrale que toutes les autres raies, on en déduit qu'elle est dominée par ces deux transitions, et qu'elle ne s'exprime que quand celles-ci s'atténuent.

Le seul état  $5p$  peuplé de manière conséquente est donc l'état  $5p[3/2]_2$ , qui est ensuite à l'origine de la transition  $5p[3/2]_2 \rightarrow 5s[3/2]_2^o$ , à 760.36 nm. La raie d'émission associée possède elle-aussi une ailette. De plus, une autre série de mesures, dont les résultats sont représentés sur la figure 4.12(b), révèle que la raie à 810.66 nm est (faiblement) présente dans cette région spectrale, et ce malgré le fait que la transition « du premier étage » (i.e. celle à 1476.27 nm) soit d'une amplitude très faible d'une part, et d'autre part que la transition à 760.36 nm partage le même état d'arrivée avec celle à 810.66 nm, détruisant donc l'inversion de population de cette dernière.

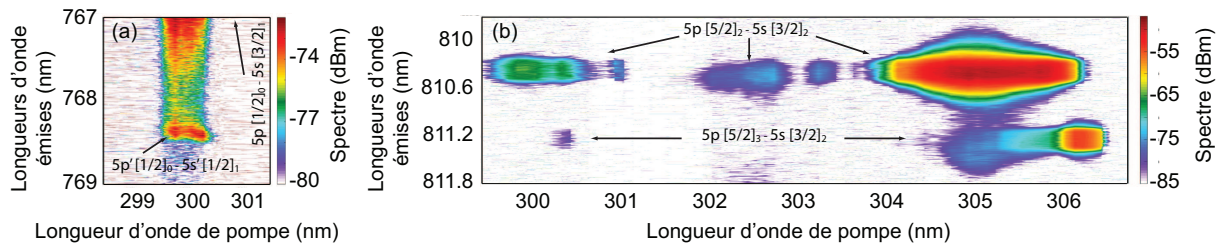


FIGURE 4.12: (a) Raie à 768.52 nm, et (b) raies à 810.66 nm et à 811.51 nm, en fonction de la longueur d'onde de pompe, pour une série de mesures différente de celle dont les résultats sont présentés sur la figure 4.11

- *région spectrale centrée à 300 nm* : deux états  $6s$  et un état  $4d$  y sont contenus dans 0.81 nm de bande spectrale. Une fois peuplés, chacun d'entre eux est à l'origine d'une transition (au moins) vers des états  $5p$  différents, à savoir :  $6s[3/2]_1^o \rightarrow 5p[3/2]_1$  (1443.07 nm),  $4d[3/2]_1^o \rightarrow 5p[1/2]_0$  (1800.72 nm),  $4d[3/2]_1^o \rightarrow 5p[5/2]_2$  (1362.61 nm) et  $6s[3/2]_2^o \rightarrow 5p[5/2]_3$  (1363.79 nm). On déduit donc, à propos de ces transitions, qu'elles dominent toutes les autres possible-ment réalisables à partir de ces trois états.

Toutefois, on peut se demander quelle influence le fait de pomper trois états à la fois a sur la présence (ou non) d'une transition. Par exemple, la transition  $6s[3/2]_1^o \rightarrow 5p[3/2]_1$

---

est-elle celle qui domine « naturellement » les autres, comme elle semble le faire selon nos résultats, ou bien profite-t-elle du fait que la transition  $4d[3/2]_1^o \rightarrow 5p[1/2]_0$  peuple l'état  $5p[1/2]_0$ , détruisant ainsi l'inversion de population entre les états  $4d[3/2]_1^o$  et  $5p[1/2]_0$  ?

Quoiqu'il en soit, il apparaît que (au moins) quatre états  $5p$  sont peuplés suite à la réalisation du premier étage de l'effet laser, à savoir :  $5p[1/2]_0$ ,  $5p[3/2]_1$ ,  $5p[5/2]_2$  et  $5p[5/2]_3$ . La présence de chacune des raies dans le visible et dans le proche infrarouge à cette longueur d'onde de pompe de 300 nm est explicable à partir de ces quatre états. La transition à 758.95 nm, qui est au passage la plus intense de toutes, prend ainsi place entre les états  $5p[1/2]_0 \rightarrow 5s[3/2]_1^o$ . La raie qui lui est associée possède une ailette du même genre que celles des raies à 16XX nm. Nous identifions cette ailette comme telle, plutôt que comme la raie associée à la transition à 760.36 nm, du fait que l'état  $5p$  de départ de cette dernière n'est, selon les raies que nous avons observé au niveau du premier étage de l'effet laser, pas peuplé.

De plus, à partir d'une autre série de mesures dont les résultats sont représentés sur la figure 4.12(a), on peut identifier la présence de la raie à 768.52 nm, associée à la transition  $5p'[1/2]_0 \rightarrow 5s'[1/2]_1^o$ . Même si l'état de départ de cette transition n'avait pas été identifié comme peuplé à partir du premier étage de l'effet laser, il est nécessaire de remarquer que ceci aurait impliqué des transitions<sup>2</sup> à 9624.84 nm (à partir de  $6s[3/2]_1^o$ ) et à 12639.95 nm (à partir de  $4d[3/2]_1^o$ ). Avec le matériel que nous utilisons, il était donc impossible de détecter les raies d'émission qui leur étaient associées, et on peut donc supposer qu'au moins une prenait effectivement place. Cependant, remarquons que cette raie à 768.52 nm est identifiable uniquement à des longueurs d'onde de pompe pour lesquelles la raie à 758.95 nm voit son spectre s'étendre suffisamment, et atteindre cette valeur. On en déduit ainsi que la force de la transition associée à la raie à 768.52 nm n'est pas très importante, et que celle-ci est en fait renforcée par émission stimulée grâce à la raie à 758.95 nm.

Concernant l'état  $5p[3/2]_1$ , aucune raie lui correspondant n'a été enregistrée. On peut cependant supposer que la population ne reste pas piégée dans cet état, mais simplement que la(les) transition(s) dont il est à l'origine n'est pas assez forte pour que l'on ait pu relever la raie qui lui est associée.

La raie à 810.66 nm est à peine discernable pour cette longueur d'onde de pompe sur

---

2. Seuls deux des trois états pompés à 300 nm possèdent une valeur de  $J$  respectant la condition pour qu'une transition prenne place vers l'état  $5p'[1/2]_0$ .

---

la figure 4.11, mais est clairement identifiable à partir de l'autre série de mesures présentée sur la figure 4.12(b). Elle prend place, pour sa part, entre les états  $5p[5/2]_2$  et  $5s[3/2]_2^o$ . On peut alors remarquer, à ce niveau, que cette raie n'est pas accompagnée de celle à 877.92 nm, alors même que nous avons déduit de l'analyse de la région spectrale centrée à 305.3 nm qu'elles possédaient probablement des forces de transition similaires, bien qu'étant en concurrence au niveau de leur état de départ. L'explication provient de la présence de la raie à 758.95 nm : cette dernière, dont on rappelle qu'elle est la plus intense de toutes les raies que nous avons observé, partage en effet son état d'arrivée avec la transition à 877.92 nm. Elle peuple donc vraisemblablement ce dernier de manière trop conséquente pour que cette transition à 877.92 nm puisse prendre place.

La transition à 811.51 nm, qui intervient entre les états  $5p[5/2]_3$  et  $5s[3/2]_2^o$ , se retrouve donc en concurrence avec celle à 810.66 nm, du fait qu'elles partagent toutes les deux le même état  $5s$  d'arrivée. Toutefois, l'autre série de mesures, présentée sur la figure 4.12(b), indique que cette transition prend effectivement place pour cette longueur d'onde de pompe, mais qu'elle est aussi beaucoup plus faible que sa « rivale ». En fait, cette transition est même la seule et unique pouvant partir de l'état  $5p[5/2]_3$ , car les autres états  $5s$  (y compris ceux dont nous n'avons pas fait mention du fait qu'ils n'interviennent dans aucune transition) ont une valeur de  $J$  égale à zéro ou un.

Ajoutons que, comme on peut le noter pour toutes les raies représentées sur la figure 4.11, non seulement l'amplitude des raies dépend de la longueur d'onde de pompe, mais également leur largeur et leur forme. Notamment, toutes les raies observées sont bien plus larges que si elles correspondaient à de l'émission induite par fluorescence. Par exemple, la raie centrée autour de  $1.8\ \mu\text{m}$  s'étend sur une largeur spectrale supérieure à 150 nm à la résonance, tandis que de l'émission provenant de fluorescence résulterait en une largeur de raie d'environ 0.1 nm, à la pression considérée [19].

Précisons enfin que l'hypothèse que l'effet physique étant à l'origine des ailettes, observables sur plusieurs raies d'émission présentées précédemment, se produise dans la fibre reliée à l'OSA plutôt que dans la cellule de gaz a été envisagée. Cependant, elle a été mise de côté en remarquant qu'optimiser l'injection dans la fibre, entre deux séries de mesures, nous faisait gagner une vingtaine de dBm au niveau des raies à 1678.97 nm et à 1689.51 nm, sans pour autant affecter le profil de ces dernières autrement qu'en intensité.

Maintenant que les détails concernant chaque raie d'émission observée ont été donnés, et leur dépendance en longueur d'onde de pompe exprimée, abordons le cas où la pompe est po-

---

larisée, non plus horizontalement mais circulairement. Cette procédure est communément employée par les expérimentateurs qui travaillent avec un grand nombre de transitions, dans le but de discriminer certaines d'entre elles et faciliter ainsi leur analyse. En effet, dans ce cas, la règle de sélection sur le moment cinétique total  $J$  est différente de celle s'appliquant à un champ polarisé linéairement, et s'écrit :  $\Delta J = 1$ . Appliquée à notre situation, pour laquelle notre pompage se fait à trois photons, les seuls états accessibles par ce processus possèdent donc un moment cinétique total  $J = 3$ . Parmi les cinq états de départ du premier étage de l'effet laser, seulement deux respectent cette condition.

### 2.2.2 Cas où la pompe est polarisée circulairement

Pour ce faire, un compensateur de Berek est placé sur le trajet du faisceau pompe avant que celui-ci n'atteigne la cellule. Par ailleurs, les conditions expérimentales (pression du gaz, énergie de la pompe, optimisation du signal, ..) sont strictement les mêmes que celles qui étaient utilisées pour l'étude présentée ci-avant. La figure 4.13 présente les résultats alors obtenus. Plusieurs changements notables peuvent alors être soulignés, à commencer par la disparition (par rapport au cas où la pompe était polarisée horizontalement) de toutes les raies de la zone spectrale centrée à 300 nm. En effet, les trois états qui étaient atteignables à trois photons par la pompe polarisée horizontalement possèdent un moment cinétique total  $J < 3$  ; par conséquent, aucun d'entre eux ne peut plus être peuplé dorénavant, et aucune transition ne peut donc en découler. Au contraire, toutes les autres raies d'émission, qui correspondent aux deux autres zones spectrales identifiées précédemment (centrées à 302.5 nm et 305.3 nm respectivement), sont retrouvées, ce qui est en accord avec le schéma que nous avons construit précédemment pour pointer les différentes raies, et qui reposait sur un état de  $J = 3$  pour chacune des zones.

Parmi toutes les raies qui subsistent, la plupart ont vu leur profil évoluer en même temps que la polarisation de la pompe devenait circulaire. Ainsi, à part les raies à 810.66 nm et 1476.27 nm qui sont quasiment identiques à leurs équivalentes en polarisation horizontale, toutes les autres raies sont plus larges lorsque la pompe est polarisée circulairement. En particulier, les raies à 1678.97 nm et 1689.51 nm s'étendent au-delà de la limite supérieure de l'OSA, à savoir 1.7  $\mu\text{m}$ . On constate également, à propos de ces deux raies, qu'elles possèdent désormais trois ailettes (contre deux en polarisation linéaire). Enfin, la raie à 811.51 nm est également nettement plus intense avec une pompe circulaire. Rappelons qu'elle est en concurrence avec la transition à 810.66 nm qui, elle, n'a pas évolué lorsque la polarisation de la pompe a changé. L'explication n'est pas certaine, mais il se pourrait que la raie à 810.66 nm ait subi comme un effet de saturation et que la population alors disponible ait renforcé la transition à 811.51 nm.

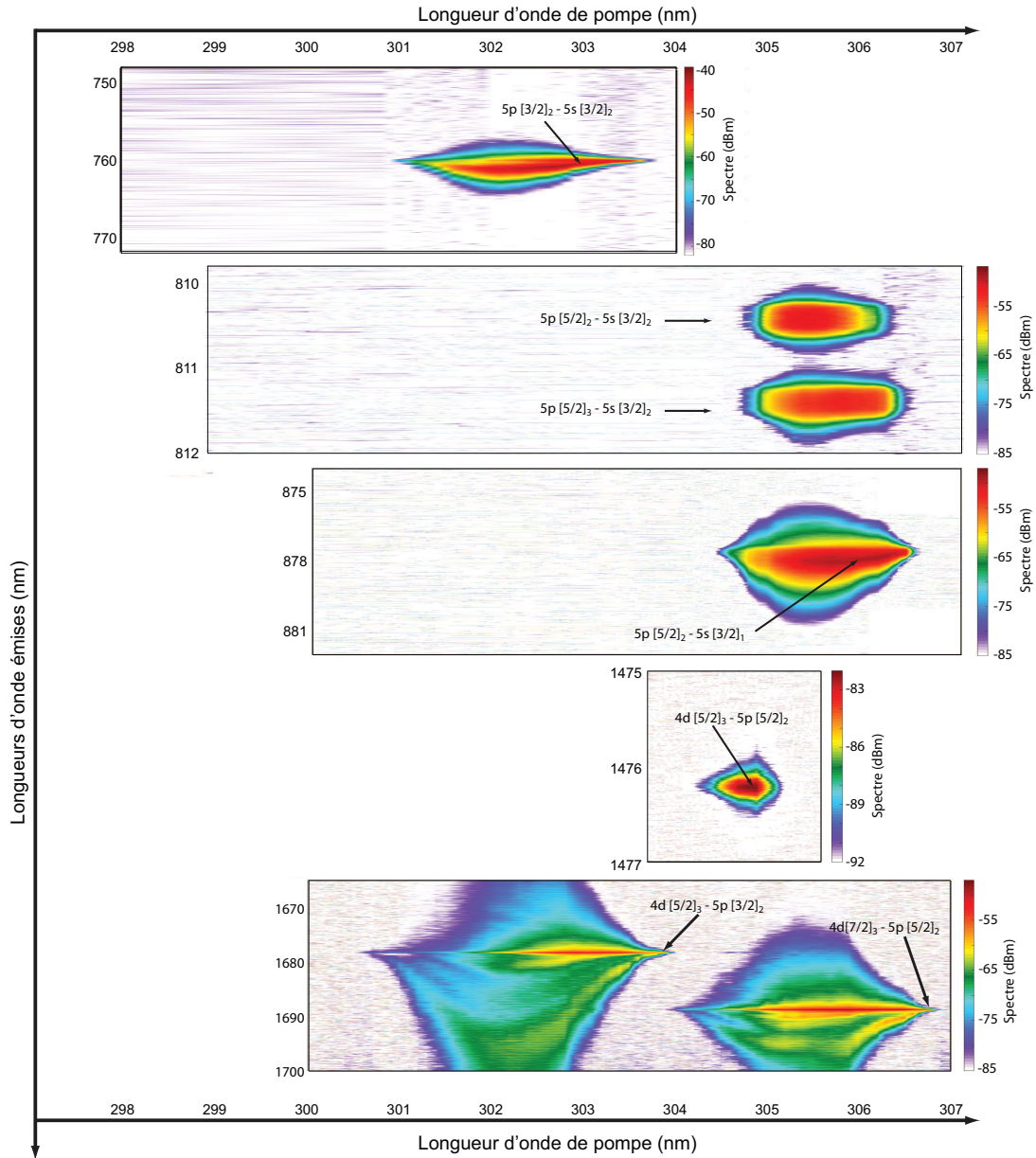


FIGURE 4.13: Longueurs d'onde d'émission observées dans le krypton, en fonction de la longueur d'onde de la pompe, celle-ci étant polarisée circulairement.

En somme, au niveau des raies d'émission, tout se passe en circulaire comme si l'effet laser observé en polarisation linéaire de pompe avait été renforcé. Une hypothèse possible pour expliquer ceci consiste à remarquer que l'état  $4d [5/2]_2^o$  (situé en énergie entre les deux états à l'origine de l'effet laser dans les régions spectrales centrées à 302.5 nm et 305.3 nm respectivement) est peuplé – sans pour autant engendrer de transitions par la suite (ou alors très faibles), confor-

---

mément à nos observations – lorsqu’on utilise une pompe autour de  $\lambda_0 = 303.30$  nm polarisée horizontalement, mais ne l’est pas avec une pompe polarisée circulairement. La quantité de population qui est promue dans cet état (quand la pompe est polarisée linéairement) pourrait ainsi être répartie entre les états à l’origine de l’effet laser prenant place autour de  $\lambda_0 = 302.5$  nm et  $\lambda_0 = 305.3$  nm lorsque la pompe est polarisée circulairement, renforçant par la même les effets du phénomène qui découlent de ces derniers.

## 2.3 Conclusion

Au cours de cette partie, l’observation dans le krypton de raies d’émission, vers l’avant et vers l’arrière de la direction de propagation, a été reportée. Il a été démontré que celles-ci n’apparaissent que si la longueur d’onde de pompe permettait une transition résonante à trois photons, comme l’étude menée lors de la précédente partie le suggérait. De plus, la forme spectrale et la nature polarisée de ces raies d’émission sont autant de preuves de l’origine stimulée de ces radiations émises. Toutefois, certaines observations demeurent inexplicées, et la plupart des résultats a par conséquent été reportée en [Annexe  \$\mathcal{L}\$](#) . Des mesures additionnelles seront nécessaires pour obtenir une meilleure compréhension de la physique mise en jeu lors de cet effet laser. On peut par exemple penser à l’analyse de la lumière par le côté de la cellule, à l’étude de la dépendance des raies d’émission vis-à-vis de l’énergie de la pompe et de la sonde, à la vérification (ou non) qu’aucune autre raie d’émission n’apparaît à mesure que le délai entre pompe et sonde augmente, à la possibilité d’utiliser une sonde dont la longueur d’onde centrale serait différente de 800 nm, ou encore à la réalisation des mesures manquantes concernant les raies à 1476.27 nm et surtout à 1800.72 nm.

---

### 3 Filamentation résonante à deux couleurs

Dans cette dernière étude, entièrement théorique et dont les résultats ont été publiés dans [20], nous mettons en lumière un mécanisme amenant aux HOKE dans le cas où une transition à deux photons, impliquant un champ fondamental et sa troisième harmonique, est proche d'une résonance atomique. Ce cas de figure est rencontré, par exemple, dans le cas d'un champ fondamental centré à  $\lambda_0 = 400\text{ nm}$  accompagné de sa troisième harmonique et interagissant avec du krypton. Dans cette situation, nous verrons que la modulation de phase croisée induite par l'harmonique sur le fondamental est fortement renforcée, quasi instantanément – du moins pour une durée d'impulsion plus grande que 10 fs –, et cause l'inversion de l'indice de réfraction ressenti par le champ fondamental. Dans ce contexte, nous avons été amenés à résoudre l'E.S.D.T. pour évaluer la réponse optique du système en présence du champ bichromatique. Bien que les calculs *ab initio* donnent accès à une bonne description de l'interaction entre le laser et l'atome, les inclure au sein d'une simulation numérique d'une propagation sur une distance macroscopique requiert des ressources numériques trop importantes. Pour pallier à cet obstacle, notre stratégie a été de comparer la polarisation non-linéaire découlant de nos simulations numériques de résolution de l'E.S.D.T. avec un développement de Taylor du champ électrique basé sur l'approximation du champ faible, nous permettant ainsi de déterminer les différents indices de réfraction non-linéaires mis en jeu et par suite de les intégrer dans une simulation de propagation. Pour une reproduction fidèle des résultats de calculs *ab initio*, nous verrons que le développement de Taylor des polarisations non-linéaires devra être poussé jusqu'à des ordres assez élevés. Par ailleurs, du fait que le processus prend place au voisinage d'une résonance, nous aurons également à prendre en compte la non-instantanéité de la réponse optique, i.e. la dispersion fréquentielle des susceptibilités non-linéaires. En effet, dans la plupart des cas (dans les situations non-résonantes), les indices de réfraction non-linéaires responsables de l'auto-modulation de phase (SPM), de la modulation de phase croisée (XPM), de la génération de troisième harmonique (THG) et de la recombinaison d'un photon de troisième harmonique en trois photons de fondamental (R) sont habituellement considérés comme parfaitement égaux. Nous verrons que dans le cas résonant, ceux-ci peuvent voir leurs amplitudes varier sur presque deux ordres de grandeurs et avoir des signes différents. Enfin, au moyen de simulations de propagations de ce champ électrique bichromatique, nous étudierons l'impact que les HOKE peuvent avoir sur la dynamique de la filamentation.

### 3.1 Présentation de l'étude

A proximité d'une résonance à deux photons, il est bien connu que la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre varie fortement en fréquence et peut même devenir négative. Il a ainsi été démontré que la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre responsable de l'auto-modulation de phase dans le xénon devient négative dans l'ultraviolet [15].

#### 3.1.1 Diagramme schématique

Ici, nous considérons un cas complètement différent, puisque la SPM est éloignée de toute résonance à deux photons – la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre responsable de la SPM est donc positive et induit à ce titre une auto-focalisation du faisceau – tandis que le milieu devient défocalisant du fait des HOKE, intervenant au niveau de la XPM.

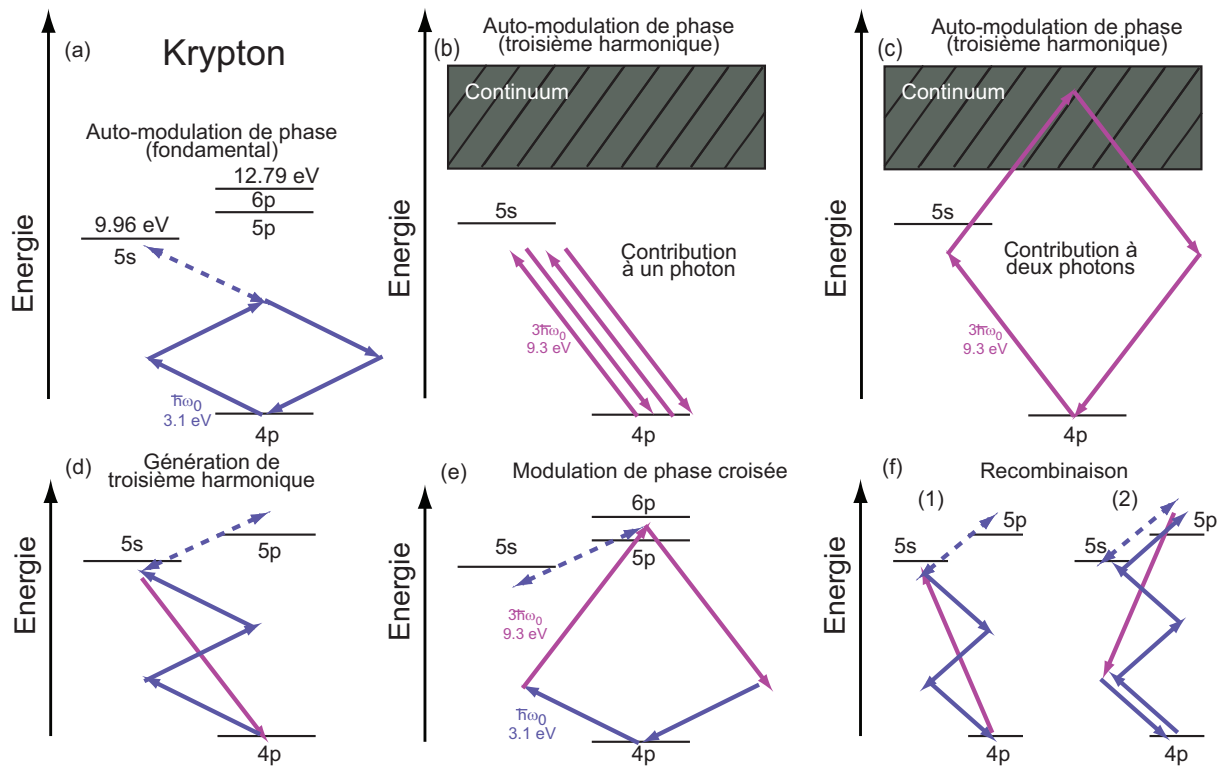


FIGURE 4.14: Schémas des différents processus non-linéaires se produisant lorsque du krypton interagit avec un champ fondamental centré à  $\lambda_0 = 400$  nm et sa troisième harmonique (TH) : (a) SPM pour le champ fondamental, (b) et (c) SPM pour le champ de TH (contributions à un photon et à deux photons, respectivement), (d) THG, (e) XPM et (f) recombinaison d'un photon de TH en trois photons de fondamental dans deux schémas différents (1) et (2). Les flèches en traitillés mettent en lumière les processus d'ordres plus élevés, renforcés par une résonance.

---

Le processus décrit ici prend place, tout d'abord, du fait que de la troisième harmonique est générée, et ensuite parce qu'il existe une résonance atomique à deux photons (à deux couleurs) menant à une forte modulation de phase croisée du champ de troisième harmonique sur le champ fondamental. Cette situation particulière se produit lorsqu'un champ fondamental centré à  $\lambda_0 = 400$  nm se propage dans le krypton. Dans ce cas, l'absorption simultanée d'un photon de fondamental et d'un photon de troisième harmonique se situe à proximité de résonances avec les transitions à deux photons  $4p - 5p$  ( $\approx 11.5$  eV) et  $4p - 6p$  ( $\approx 12.8$  eV) à la fois. Les mécanismes de SPM et de XPM, ainsi que tous les autres impliqués dans la polarisation non-linéaire sont illustrés sur la figure 4.14.

### 3.1.2 Polarisation non-linéaires

Dans le but d'évaluer la réponse optique du krypton lorsqu'il est soumis à un champ électrique centré à  $\lambda_0 = 400$  nm et sa troisième harmonique, des calculs *ab initio* ont été réalisés. Ils consistent en la résolution de l'E.S.D.T. au moyen de simulations numériques. Pour plus de clarté, nous considérerons ici uniquement les enveloppes complexes des polarisations non-linéaires  $\mathcal{P}_{\omega_0}(t)$  et  $\mathcal{P}_{3\omega_0}(t)$ , qui oscillent respectivement à la fréquence fondamentale  $\omega_0$  et à celle de la troisième harmonique  $3\omega_0$ . Celles-ci sont obtenues au moyen d'un filtrage spectral approprié de la polarisation, et en retirant la porteuse dans le domaine temporel. Contrairement aux études présentées dans les précédents Chapitres de cette thèse, les deux champs ne partageront pas ici la même enveloppe temporelle. En effet, comme nous le verrons ci-après, les enveloppes (complexes) des champs fondamental et de troisième harmonique interviennent dans les expressions de  $\mathcal{P}_{\omega_0}(t)$  et  $\mathcal{P}_{3\omega_0}(t)$  : pour extraire la dépendance de ces dernières vis-à-vis de l'un ou l'autre des champs, il est donc préférable que leurs enveloppes diffèrent. Lors des simulations numériques étaient alors utilisées des impulsions d'enveloppes gaussiennes de durées FWHM (en champ) de 14 fs pour le fondamental et de 8 fs pour la troisième harmonique.

Notre méthode consiste à approximer la réponse optique de l'atome par un modèle perturbatif, dans lequel la polarisation atomique est développée en séries de Taylor du champ électrique et les susceptibilités non-linéaires comme séries de Taylor vis-à-vis des fréquences. Ce dernier point a été abordé au moment où nous avons traité le terme source de l'équation de propagation que constitue la polarisation, au niveau du premier Chapitre : nous avons alors donné, pour l'exemple, l'expression de l'enveloppe complexe de la polarisation non-linéaire responsable de la génération de troisième harmonique *dans le cas où le processus est légèrement retardé*. Grâce à cette approche, les enveloppes complexes des polarisations non-linéaires associées à chacun des mécanismes mis en jeu, et découlant de l'E.S.D.T., peuvent être reproduites à la fois en amplitude et en forme.

Selon la fréquence à laquelle elles oscillent, elles contribuent à l'enveloppe complexe des polarisations non-linéaires  $\mathcal{P}_{\omega_0}(t)$  ou  $\mathcal{P}_{3\omega_0}(t)$ , données par les développements perturbatifs suivants :

$$\begin{aligned}\mathcal{P}_{\omega_0}(t) = & 2\sqrt{\frac{2\epsilon_0}{c}} \left( \sum_{l=1}^2 \sum_{k=0}^2 \frac{i^k}{k!} n_{2l_{\text{SPM}}}^{(k)} \frac{\partial^k |\mathcal{A}_0|^{2l}(t) \mathcal{A}_0(t)}{\partial t^k} \right. \\ & + \sum_{l=1}^3 (l+1)! \sum_{k=0}^3 \frac{i^k}{k!} n_{2l_{\text{XPM}}}^{(k)} \frac{\partial^k |\mathcal{A}_0|^{2(l-1)}(t) |\mathcal{A}_3|^2(t) \mathcal{A}_0(t)}{\partial t^k} \\ & + \sum_{l=1}^3 l \sum_{k=0}^3 \frac{i^k}{k!} n_{2l_{\text{R}_1}}^{(k)} \frac{\partial^k |\mathcal{A}_0|^{2(l-1)}(t) \mathcal{A}_0^{*2}(t) \mathcal{A}_3(t)}{\partial t^k} \\ & \left. + \sum_{l=2}^3 \frac{l(l-1)}{l+2} \sum_{k=0}^3 \frac{i^k}{k!} n_{2l_{\text{R}_2}}^{(k)} \frac{\partial^k |\mathcal{A}_0|^{2(l-2)}(t) \mathcal{A}_0^4(t) \mathcal{A}_3^*(t)}{\partial t^k} \right),\end{aligned}\quad (4.1)$$

$$\begin{aligned}\mathcal{P}_{3\omega_0}(t) = & 2\sqrt{\frac{2\epsilon_0}{c}} \left( n_{2\text{SPM},3\omega_0} |\mathcal{A}_3|^2(t) \mathcal{A}_3(t) + 2 \sum_{k=0}^3 \frac{i^k}{k!} n_{2\text{XPM}}^{(k)} \frac{\partial^k |\mathcal{A}_0|^2(t) \mathcal{A}_3(t)}{\partial t^k} \right. \\ & \left. + \sum_{l=1}^6 \frac{l}{2+l} \sum_{k=0}^3 \frac{i^k}{k!} n_{2l_{\text{THG}}}^{(k)} \frac{\partial^k |\mathcal{A}_0|^{2(l-1)} \mathcal{A}_0^3(t)}{\partial t^k} \right)\end{aligned}\quad (4.2)$$

où  $\mathcal{A}_0(t)$  et  $\mathcal{A}_3(t)$  sont les enveloppes complexes du champ fondamental et de celui de troisième harmonique, respectivement. Les équations (4.1) et (4.2) constituent le principal résultat de cette étude.

Ces équations prennent en compte quatre mécanismes distincts (SPM, XPM, THG et R) se produisant lors de l'interaction d'un champ total composé d'un champ fondamental et d'un champ de TH avec un atome. Elles ne prennent en revanche pas en considération la contribution de l'ionisation à la réponse optique de l'atome, qui est, quant à elle, traitée séparément. Les procédures utilisées pour l'ajustement des différents coefficients  $n_i$  sont détaillées dans la prochaine partie. Les valeurs de chacun de ces coefficients sont recensées dans un tableau au niveau de l'Annexe  $\mathcal{M}$ . Notons ici que  $\mathcal{P}_{\omega_0}(t)$  et  $\mathcal{P}_{3\omega_0}(t)$  sont des quantités complexes, la partie réelle (resp., imaginaire) correspondant à la partie en phase (resp., en opposition de phase) avec le champ. Ces deux quantités vont nous apporter des informations distinctes sur les processus. Comme nous le verrons plus loin, la partie réelle nous dévoilera le déphasage subi par le champ, tandis que la partie imaginaire nous renseignera sur la déformation de l'enveloppe ainsi que sur les pertes.

---

### 3.2 Procédures d'ajustement des polarisations non-linéaires et extraction des indices de réfraction non-linéaires

La résolution de l'E.S.D.T. en présence d'un champ bichromatique donné nous permet d'évaluer très précisément la polarisation du système au cours du temps de manière globale, mais ne permet pas de séparer la contribution relative des différents effets physiques mis en jeu (SPM, XPM, THG et R). Chacun des effets non-linéaires, évoqués ci-avant, peut néanmoins être décorrélé individuellement en remarquant simplement que tous ne partagent pas la même dépendance vis-à-vis de l'amplitude et de la phase du champ électrique total à deux couleurs. Nous pouvons ainsi établir des procédures à utiliser lors de nos ajustements numériques, qui nous permettront d'isoler et donc d'en retirer la polarisation exacte correspondante à chacun des effets non-linéaires.

Tout d'abord,  $\mathcal{P}_{\omega_0}(t)$  et  $\mathcal{P}_{3\omega_0}(t)$  oscillent à des fréquences très différentes. Ainsi, leurs contributions respectives sont facilement distinguables par un filtrage spectral approprié de la polarisation globale. Par ailleurs, la modulation de phase croisée et la recombinaison d'un photon de TH en trois photons de fondamental sont deux processus qui ne peuvent prendre place que si, dans le champ électrique initial, sont présents un champ de fondamental et un champ de TH. Dans le cas contraire, seules la SPM (évoluant à l'une ou l'autre fréquence, selon si l'un ou l'autre des deux champs est présent) et la THG (si seul le champ fondamental est présent) interviennent. Résoudre l'E.S.D.T. en présence du champ fondamental seul nous permet ainsi d'étudier les processus de SPM (évoluant à  $\omega_0$ ) et de THG (évoluant à  $3\omega_0$ ) de manière parfaitement isolés. Après avoir caractérisé ces deux effets, seuls les processus de XPM et R restent à évaluer en résolvant cette fois-ci l'E.S.D.T. en présence des deux champs. Ces deux effets sont néanmoins plus compliqués à isoler parce que, d'une part ils oscillent tous les deux à la même fréquence  $\omega_0$ , et d'autre part qu'ils coexistent avec le processus de SPM. Pour isoler leurs contributions respectives, nous serons alors amenés à remarquer que leurs dépendances vis-à-vis des phases des champs excitateurs sont différentes.

Nous reviendrons sur ce point plus en détail au moment de les traiter. Par ailleurs, nous ne nous intéresserons dans un premier temps qu'aux parties réelles des polarisations complexes, et reviendrons sur les parties imaginaires au moment de discuter de la non-instantanéité et des pertes induites.

### 3.2.1 Auto-modulation de phase et génération de troisième harmonique

Dans un premier temps, intéressons-nous à l'auto-modulation de phase du champ fondamental. Comme attendu dans le cas où le processus est non-résonant, l'indice non-linéaire (comme défini dans le premier Chapitre), suit en très bonne approximation une loi linéaire vis-à-vis de l'éclairement jusqu'à  $20 \text{ TW} \cdot \text{cm}^{-2}$  (figure 4.15). Le coefficient  $n_{2\text{SPM},\omega_0}$  de l'indice de réfraction non-linéaire associé, extrait de l'ajustement, vaut  $n_{2\text{SPM},\omega_0} = 2.92 \times 10^{-7} \text{ cm}^2 \cdot \text{TW}^{-1}$ , en bon accord avec la littérature [21]. Ainsi, la partie réelle de la polarisation relative à l'auto-modulation de phase suit en bonne approximation une loi en  $\mathcal{A}_0^3(t)$  [figure 4.16(b)]. Néanmoins, en normalisant  $\mathcal{P}_{\omega_0}(t)$  par  $\mathcal{A}_0^3$ , la présence d'un terme d'ordre Kerr plus élevé est révélée. Celui-ci est associé à un indice de réfraction non-linéaire  $n_4$  valant  $n_{4\text{SPM},\omega_0} = 3.45 \times 10^{-9} \text{ cm}^4 \cdot \text{TW}^{-2}$ , là encore en bon accord avec la littérature [22].

A plus fort éclairement (non-montré ici), la polarisation sature et devient négative au niveau du front arrière du champ électrique à partir d'environ  $50 \text{ TW} \cdot \text{cm}^{-2}$ . Ce comportement retardé dans le domaine temporel est en fait caractéristique de la saturation, induite par l'ionisation, de la réponse optique de l'atome.

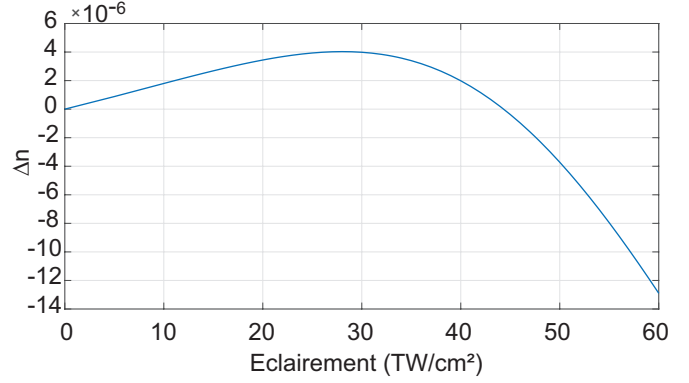


FIGURE 4.15: Indice de réfraction non-linéaire du krypton à 400 nm en fonction de l'éclairement de l'impulsion.

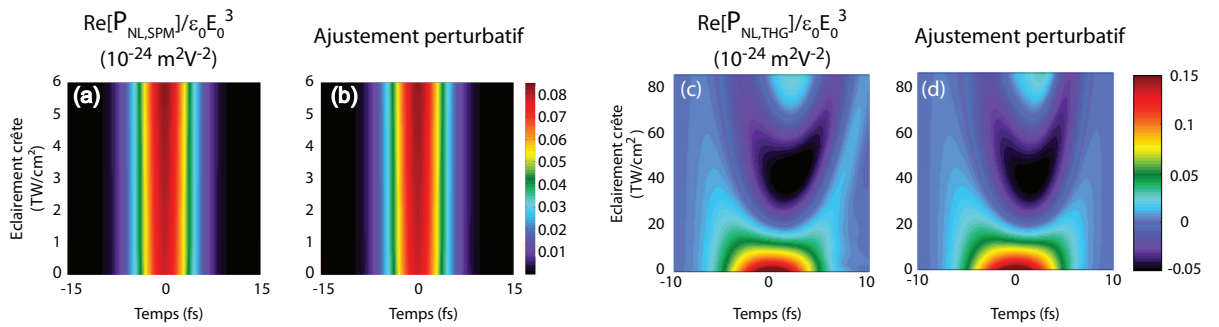


FIGURE 4.16: Parties réelles de l'enveloppe de la polarisation non-linéaire reliée à la SPM (a) et à la THG (c), en fonction du temps et de l'éclairement de l'impulsion de fondamental, et leurs ajustements respectifs : (b) et (d).

---

Intéressons-nous maintenant au processus de génération de troisième harmonique. Dans le cas présent (krypton,  $\lambda_0 = 400$  nm), il prend place, lui-aussi, à proximité d'une résonance, mais cette fois-ci à trois photons entre les états  $4p$  et  $5s$ . Par conséquent, l'indice de réfraction non-linéaire associé à la THG  $n_{2_{\text{THG}}}$  est évalué à une valeur environ six fois plus importante que celle associée à la SPM (du champ fondamental). Le voisinage de la résonance a également un impact sur les dépendances temporelle et en éclairissement de la polarisation non-linéaire. En effet, à l'écart de résonances, il est connu que l'amplitude du champ de TH, produit par génération de troisième harmonique, évolue selon  $\mathcal{A}_0^3(t)$ . Ce n'est pas le cas ici, comme le montre la figure 4.16(c). Au lieu de cela, la polarisation non-linéaire relative à la THG  $\mathcal{P}_{\text{NL,THG}}(t)$  sature à mesure que l'éclairissement du champ fondamental augmente et devient négative à partir de  $20 \text{ TW.cm}^{-2}$ . Ensuite, à partir de  $40 \text{ TW.cm}^{-2}$ , celle-ci augmente à nouveau jusqu'à rejoindre des valeurs positives. Ce comportement vis-à-vis de l'éclairissement du champ fondamental est en fait la manifestation de processus non-linéaires d'ordres plus élevés. On notera par ailleurs que dans le cas présent, où le champ fondamental est seul à interagir avec l'atome, il n'y a aucune contribution de l'ionisation à la polarisation non-linéaire oscillant à  $3\omega_0$  : ce dernier ne peut donc pas être responsable du comportement observé ici.

Ainsi, en nous basant sur un développement perturbatif, il faut considérer des susceptibilités jusqu'à  $\chi^{(13)}$  si l'on veut effectuer un ajustement correct [voir figure 4.16(d)] de la polarisation non-linéaire associée à la THG jusqu'à un éclairissement de  $90 \text{ TW.cm}^{-2}$ . Ceci s'explique facilement si l'on se reporte à la figure 4.14(d). En effet, le processus  $\omega_0 + \omega_0 + \omega_0 \rightarrow 3\omega_0$  n'est pas le seul à se situer au voisinage d'une résonance : des processus d'ordre plus élevés, de type  $\omega_0 + \omega_0 + \omega_0 + N(\omega_0 - \omega_0) \rightarrow 3\omega_0$  le sont également ( $N$  est ici un entier positif). Ainsi, la proximité de la résonance exacerbe des processus d'ordres plus élevés.

Enfin, dans le cas de l'indice de réfraction non-linéaire relatif à la SPM du champ de TH, la procédure d'évaluation est différente. Notons tout d'abord que deux mécanismes différents participent à ce processus : celui non-résonant [voir figure 4.14(b)] et celui faisant intervenir une résonance à deux photons avec le continuum [voir figure 4.14(c)]. Ce dernier, pour le champ de TH ( $\lambda_3 \simeq 133$  nm), ne peut pas être découplée du processus d'ionisation à deux photons. De fait, cela empêche l'identification de l'indice de réfraction non-linéaire  $n_{2_{\text{SPM},3\omega_0}}$  associé à la SPM du champ de TH par résolution de l'E.S.D.T. Pour passer outre cet obstacle, ce dernier a été évalué grâce aux moments dipolaires de transition [23], tabulés à partir du potentiel atomique du krypton utilisé dans nos simulations numériques, et seule la contribution non-résonante a été traitée. Via cette approximation, on obtient alors un indice de réfraction non-linéaire négatif, mais qui ne change pas la conclusion de cette étude. Notamment, il a été vérifié, en changeant à la fois la valeur et le signe de ce dernier, que ce coefficient ne joue pas de rôle significatif sur la dynamique de la propagation.

---

### 3.2.2 Modulation de phase croisée et recombinaison

Comme expliqué en début de partie, les processus de modulation de phase croisée et de recombinaison contribuent à la polarisation non-linéaire dès lors que le champ électrique total est constitué d'un champ fondamental et d'un champ de TH [voir figures 4.14(e) et 4.14(f)]. Leurs contributions relatives à la polarisation non-linéaire peuvent être distinguées l'une de l'autre en remarquant que la recombinaison dépend de la phase relative entre les deux champs  $\Delta\varphi$ , au contraire de la XPM. On peut facilement s'en rendre en compte en regardant l'ordre zéro du développement de chacun de ces deux termes [cf équations (4.1) et (4.2)] :

$$\begin{aligned}\mathcal{P}_{\text{XPM}} &\propto |\mathcal{A}_3|^2 \mathcal{A}_0, \\ \mathcal{P}_{\text{R}} &\propto \mathcal{A}_0^{*2} \mathcal{A}_3.\end{aligned}$$

Ainsi, la contribution de la modulation de phase croisée à la polarisation partage la même phase que  $\mathcal{A}_0(t)$  et est indépendante de la phase de  $\mathcal{A}_3(t)$ . A l'inverse, le processus de recombinaison va, quant à lui, dépendre de ces deux phases et plus précisément de la phase relative  $\Delta\varphi$  entre les deux champs. Il suffira alors de calculer la polarisation non-linéaire pour deux valeurs distinctes – et quelconques – de  $\Delta\varphi$  tout en conservant la phase de  $\mathcal{A}_0(t)$ , puis de retrancher ces deux polarisations pour obtenir la partie recombinaison seule. De manière analogue, la partie modulation de phase croisée peut être isolée du terme de recombinaison par un choix judicieux des deux phases relatives utilisées lors du calcul des polarisations. Plus précisément, la contribution de la recombinaison à la polarisation non-linéaire du troisième ordre  $\mathcal{P}_{\text{R}}(\Delta\varphi)$  suit la formule :  $\mathcal{P}_{\text{R}}(0) = -\mathcal{P}_{\text{R}}(\pi)$ . Puisqu'il s'agit de la seule contribution à la polarisation non-linéaire qui dépend de la phase relative entre les champs, elle peut être isolée comme suit :

$$\mathcal{P}_{\text{R}} = \frac{1}{2} [\mathcal{P}_{\text{NL}}(\Delta\varphi = 0) - \mathcal{P}_{\text{NL}}(\Delta\varphi = \pi)], \quad (4.3)$$

pendant que la contribution  $\mathcal{P}_{\text{XPM}}$  de la XPM à la polarisation non-linéaire peut être extraite comme suit (en retranchant la contribution de la SPM, évaluée précédemment) :

$$\mathcal{P}_{\text{XPM}} = \frac{1}{2} [\mathcal{P}_{\text{NL}}(\Delta\varphi = 0) + \mathcal{P}_{\text{NL}}(\Delta\varphi = \pi)] - \mathcal{P}_{\text{SPM}}, \quad (4.4)$$

Une première série de simulations numériques est effectuée, à un éclairage de fondamental relativement faible  $I_0 = 1 \text{ TW.cm}^{-2}$ , en fonction de l'amplitude du champ de troisième harmonique. Nous constatons alors, comme attendu, que le processus de modulation de phase croisée (respectivement, de recombinaison) dépend linéairement de l'éclairement (respectivement, de l'amplitude du champ) de troisième harmonique. De plus, les deux processus sont quasiment instantanés et respectent approximativement leurs dépendances temporelles attendues. Après ajustement des polarisations non-linéaires, les valeurs trouvées sont  $n_{2\text{XPM}} = -1.07 \times$

---

$10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{TW}^{-1}$  et  $n_{2R} = 1.82 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 \cdot \text{TW}^{-1}$  pour les indices de réfraction non-linéaires associés. Ce coefficient de modulation de phase croisée est donc à la fois négatif et presque trente fois supérieur (en valeur absolue) à  $n_{2\text{SPM}}$ , ceci à cause de la proximité de résonances à deux photons ( $4p - 5p$  et  $4p - 6p$ ) avec le processus de XPM. La conséquence immédiate est que, si le krypton est habituellement un milieu focalisant pour le champ fondamental, il devient défocalisant – à cause de la XPM – dès lors qu'environ 1.5% de TH se propage avec celui-ci. En d'autres termes, si suffisamment de troisième harmonique est générée durant le processus de filamentation dans le krypton, le processus de XPM peut constituer le mécanisme principal permettant d'arrêter l'auto-focalisation du faisceau, à la place de l'ionisation.

Par la suite, la XPM et la recombinaison ont été évaluées, via résolution de l'E.S.D.T., en fonction de l'éclairement de fondamental en conservant l'amplitude du champ de TH constante. Les figures 4.17(a) et 4.17(c) dépeignent la dépendance temporelle de  $\mathcal{P}_{\text{XPM}}$  et de  $\mathcal{P}_R$  ainsi obtenues en fonction de l'éclairement de fondamental. Ces deux contributions à la polarisation non-linéaire ne suivent pas la dépendance attendue vis-à-vis de l'amplitude du champ de fondamental. En effet, loin des résonances, la polarisation relative à la XPM se comporte normalement suivant  $\mathcal{A}_0$ , pendant que celle relative à la recombinaison le fait suivant  $\mathcal{A}_0^2$ . Ici, du fait de la proximité d'une résonance à deux couleurs, des susceptibilités d'ordres supérieurs se manifestent, et modifient la dépendance des polarisations selon l'amplitude du champ de fondamental. La contribution de la XPM à la polarisation non-linéaire doit alors être étendue à des ordres plus élevés, avec des termes mixant éclairements de fondamental et de TH [figures 4.17(b) et 4.17(d)].

Concernant le processus de recombinaison, en écrivant un développement perturbatif en fonction du champ électrique, il doit être noté que deux catégories de termes d'ordres plus élevés participent à celui-ci, et seront définis par la suite comme  $R_1$  et  $R_2$  [voir l'équation (4.1) ainsi que la figure 4.14(f)]. La première (respectivement, la seconde) catégorie de polarisation non-linéaire d'ordre plus élevé  $\mathcal{P}_{R_1}$  (respectivement,  $\mathcal{P}_{R_2}$ ) se comporte selon  $|\mathcal{A}_0|^{2k} \mathcal{A}_0^{*2} \mathcal{A}_3$  (respectivement,  $|\mathcal{A}_0|^{2k} \mathcal{A}_0^4 \mathcal{A}_3^*$ ). En présence d'une résonance, leurs contributions relatives sont a priori différentes, puisque les fréquences impliquées dans leurs susceptibilités non-linéaires respectives ne sont pas les mêmes. Il est par conséquent souhaitable de procéder à leurs ajustements indépendamment l'une de l'autre, ce qui peut être fait en observant que leurs périodicités vis-à-vis de la phase relative  $\Delta\varphi$  sont différentes. Plus précisément,  $\mathcal{P}_{R_1}$  et  $\mathcal{P}_{R_2}$  peuvent être isolées comme suit :

$$\mathcal{P}_{R_1} = \frac{1}{2} \{ \mathcal{P}_{\text{NL}}(\Delta\varphi = 0) - \mathcal{P}_{\text{NL}}(\Delta\varphi = \pi) - i [ \mathcal{P}_{\text{NL}}(\Delta\varphi = \pi/2) - \mathcal{P}_{\text{NL}}(\Delta\varphi = -\pi/2) ] \} \quad (4.5)$$

$$\mathcal{P}_{R_2} = \frac{1}{2} \{ \mathcal{P}_{\text{NL}}(\Delta\varphi = 0) - \mathcal{P}_{\text{NL}}(\Delta\varphi = \pi) + i [ \mathcal{P}_{\text{NL}}(\Delta\varphi = \pi/2) - \mathcal{P}_{\text{NL}}(\Delta\varphi = -\pi/2) ] \} \quad (4.6)$$

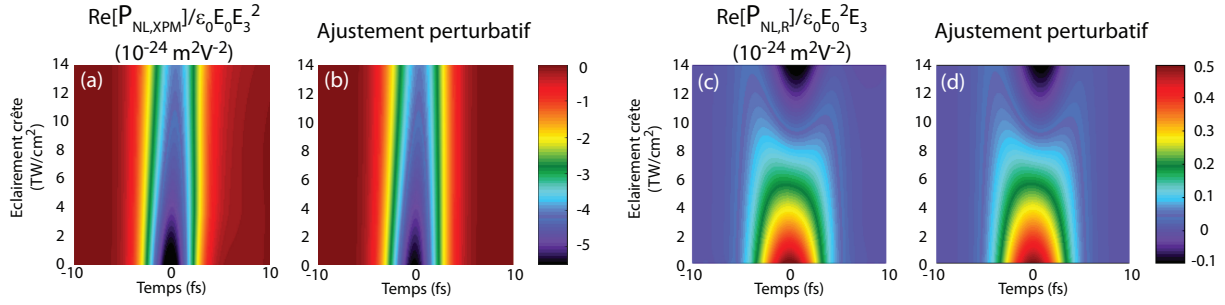


FIGURE 4.17: Parties réelles de l'enveloppe de la polarisation non-linéaire reliée à la XPM (a) et au processus de recombinaison (c), en fonction du temps et de l'éclairement de l'impulsion de fondamental, et leurs ajustements respectifs : (b) et (d).

### 3.2.3 Non-instantanéité des processus non-linéaires

A proximité d'une résonance, les susceptibilités non-linéaires deviennent très dépendantes en fréquence, comme nous l'avons abordé lors du Chapitre 1. Ceci a pour conséquence que l'interaction avec le champ électrique se fait de manière non-instantanée : dès lors, la polarisation révèle une composante retardée. Ceci est mis en évidence dans le cas de la THG non seulement sur la figure 4.16(c), où la forme temporelle de la partie réelle de la polarisation non-linéaire s'avère être asymétrique (alors que le champ incident est temporellement symétrique), mais également en remarquant que la partie imaginaire de l'enveloppe de la polarisation non-linéaire associée à chaque processus (voir figure 4.18) est, en bonne approximation, une fonction impaire du temps – tout du moins en champ faible –. La forme temporelle de cette dernière indique donc que les pertes optiques sont très faibles. Le milieu absorbe de l'énergie au moment du front montant de l'impulsion, et la restitue entièrement au moment de son front descendant : l'énergie est ainsi redistribuée dans le temps, sans pertes d'énergie significatives. D'un point de vue mathématique, ceci peut être compris en exprimant l'évolution de l'éclairement  $I$  d'un champ, ayant une enveloppe complexe  $\mathcal{A}$ , en fonction de la distance  $z$  de propagation dans un milieu qui génère une polarisation  $\mathcal{P}$  :

$$\frac{\partial I(t, z)}{\partial z} \propto -\Im [\mathcal{P}(t) \mathcal{A}^*(t)], \quad (4.7)$$

La fluence  $F$  du champ s'écrivant :

$$F = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t, z) dt, \quad (4.8)$$

---

on peut obtenir l'évolution de celle-ci au long de la propagation :

$$\frac{\partial F}{\partial z} \propto - \int_{-\infty}^{+\infty} \Im [\mathcal{P}(t) \mathcal{A}^*(t)] dt \quad (4.9)$$

Sans perte de généralité, on peut écrire la fonction  $\Im(\mathcal{P})$  comme la somme d'une fonction paire et d'une fonction impaire :

$$\Im [\mathcal{P}(t)] = \Im [\mathcal{P}_{\text{paire}}(t)] + \Im [\mathcal{P}_{\text{impaire}}(t)], \quad (4.10)$$

avec :

$$\Im [\mathcal{P}_{\text{paire}}(-t)] = \Im [\mathcal{P}_{\text{paire}}(t)], \quad (4.11)$$

$$\Im [\mathcal{P}_{\text{impaire}}(-t)] = -\Im [\mathcal{P}_{\text{impaire}}(t)] \quad (4.12)$$

De plus,  $\mathcal{A}(t)$  étant une fonction réelle et paire en fonction du temps dans toutes nos simulations numériques, l'équation (4.9) se réduit à :

$$\frac{\partial F}{\partial z} \propto - \int_{-\infty}^{+\infty} \Im [\mathcal{P}_{\text{paire}}(t) \mathcal{A}^*(t)] dt \quad (4.13)$$

Par conséquent, seule la partie paire de la polarisation peut induire des pertes optiques<sup>3</sup>.

Tandis que l'interaction se produit avec des pertes optiques négligeables en champ faible, ce n'est plus le cas dès lors que l'éclairement du champ fondamental augmente. Ainsi, comme il peut être observé sur la figure 4.18(c), la partie imaginaire de l'enveloppe de la polarisation non-linéaire associée à la génération de troisième harmonique n'est plus une fonction impaire du temps pour des éclaircements supérieurs à  $20 \text{ TW} \cdot \text{cm}^{-2}$ . Ce changement de forme temporelle de la polarisation non-linéaire indique ainsi que de fortes pertes optiques entrent en jeu, ce qui est confirmé du point de vue atomique par la forte augmentation des populations promues dans les états excités de l'atome après l'interaction, à éclairement élevé.

Enfin, notons que cette méthode mathématique consistant à développer la polarisation non-linéaire en développement de Taylor vis-à-vis de la fréquence ne demeure valide que si la polarisation varie relativement doucement en fonction de cette dernière, c'est-à-dire si le processus ne prend pas place à la résonance exacte, ce qui est le cas pour ce qui concerne notre étude. Au contraire, si la polarisation non-linéaire oscillait à l'exacte fréquence de résonance atomique,

---

3. Séparer en une fonction paire et une fonction impaire les polarisations non-linéaires, associées aux différents processus, aide également grandement notre algorithme d'ajustement.

un traitement plus approprié consisterait à évaluer la dépendance spectrale complète de la susceptibilité non-linéaire. Ceci nous amènerait à exprimer la polarisation non-linéaire comme une convolution du champ électrique avec la réponse temporelle du milieu, exprimée comme la transformée de Fourier de la susceptibilité non-linéaire.

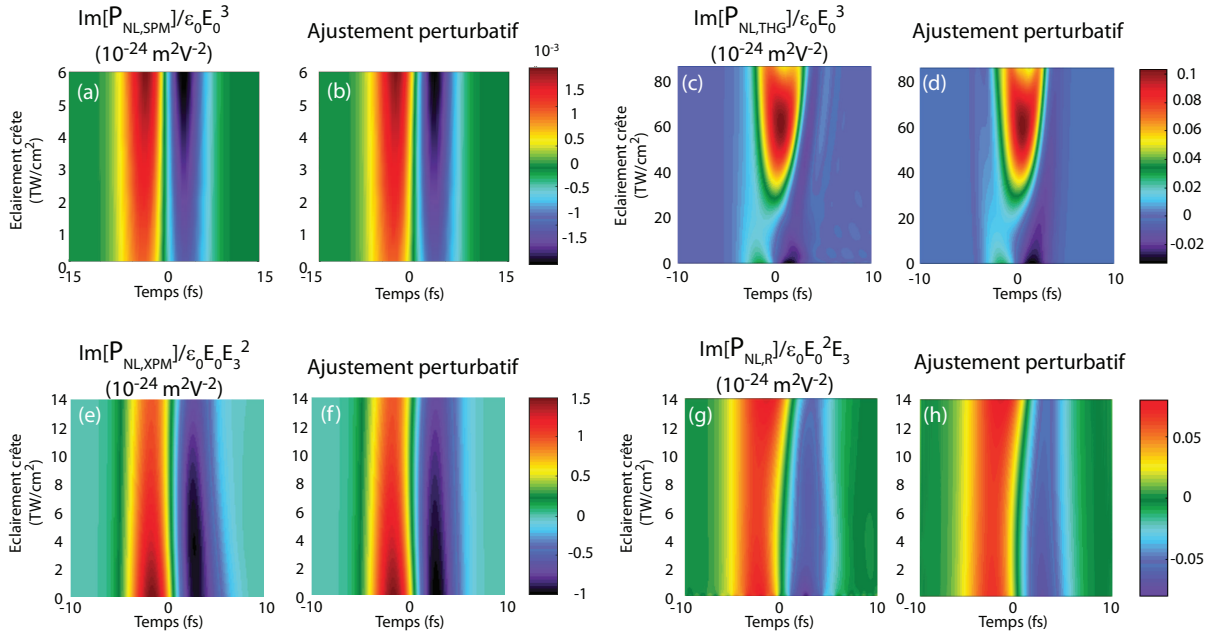


FIGURE 4.18: Parties imaginaires des enveloppes de la polarisation non-linéaire reliée aux quatre processus étudiés : la SPM (a), la THG (c), la XPM (e) et R (g), et leurs ajustements respectifs (b), (d), (f) et (h).

### 3.3 Propagations numériques et impact de la résonance

A la suite de cette étude menée au point de vue microscopique, se pose la question de savoir quel impact peuvent avoir les HOKE, mis en lumière ci-avant, sur la propagation d'une impulsion centrée à  $\lambda_0 = 400\text{nm}$  dans le krypton, en particulier lorsque l'on se trouve en régime de filamentation. En effet, comme nous l'avons mentionné précédemment, il peut suffire que 1.5 % de TH soit produite durant la filamentation pour que la XPM participe activement et puisse même devenir l'effet prédominant pour le clamping de l'éclairement du filament, à la place de l'ionisation.

Dans le but de se faire une idée sur la question, des simulations numériques de propagations non-linéaires ont été réalisées, et deux scénarios ont alors été comparés : le premier est

---

le scénario « classique » de la filamentation, basé sur les deux ingrédients que sont l'effet Kerr et l'ionisation, et pour lequel les HOKE sont exclus et l'effet Kerr est considéré comme parfaitement instantané. Dans ce cas, la susceptibilité non-linéaire d'ordre trois est indépendante de la fréquence, et donc :  $n_{2_{\text{XPM}}} = n_{2_{\text{R}}} = n_{2_{\text{THG}}} = n_{2_{\text{SPM}}}$ . Ce scénario est comparé avec celui qui prend en compte la résonance à deux couleurs, et les HOKE qui y sont reliés. Dans les deux cas, la polarisation non-linéaire peut être évaluée et injectée ensuite dans notre algorithme de propagation. Bien sur, dans les deux situations, de la troisième harmonique se propageant avec son fondamental, nous évaluons l'ionisation grâce à des cartes de gain du même type que celles décrites au Chapitre 2. Les paramètres utilisés pour ces deux simulations sont les suivants : les impulsions possèdent une énergie de  $500 \mu\text{J}$ , une durée de 20 fs (FWHM, en éclaircissement) et un rayon FWHM de 1 mm. Elles sont focalisées par une lentille de focale 1 m dans 0.1 bar de krypton. On peut noter que la durée initiale des impulsions choisie, dans ce cas, est plus longue que celle utilisée pour mener notre étude paramétrique, qui nous a permis d'ajuster les différents indices de réfraction non-linéaires. Ceci assure que la nature retardée de la réponse optique non-linéaire est correctement reproduite par les développements de Taylor des susceptibilités non-linéaires vis-à-vis de la fréquence, tout du moins au début de la propagation. En effet, la génération d'un supercontinuum et l'élargissement spectral qui l'accompagne, prenant place lors de la filamentation, peut potentiellement être à l'origine de la génération de fréquences résonantes avec des transitions multiphotoniques du krypton, remettant en cause la légitimité de notre modèle. Toutefois, pour ce qui concerne les simulations numériques de filamentation que nous présentons ici, l'élargissement spectral des impulsions est suffisamment limité pour assurer que la conclusion à laquelle nous aboutissons soit valide.

Comme le montre la figure 4.19, les caractéristiques du filament diffèrent fortement d'un modèle à l'autre. Notamment, le « modèle HOKE » prédit un filament trois fois plus intense et deux fois plus long que celui du « modèle classique ». Cependant, les deux modèles prédisent des valeurs similaires de densités d'électrons libres maximale et linéique. La différence entre les résultats obtenus par les deux modèles trouve son origine dans deux mécanismes principaux. Tout d'abord, la génération de troisième harmonique est bien plus efficace dans le modèle HOKE, du fait de la proximité de la résonance à trois photons avec la transition  $4p - 5s$ . L'impact de la TH sur le champ fondamental durant la filamentation est donc de fait renforcé, puisque davantage de TH est produite. Comme l'indice de réfraction non-linéaire relié à la XPM est hautement négatif dans le modèle HOKE, la TH défocalise en fait son fondamental, ce qui abaisse alors l'éclaircissement de clamping. Deuxièmement, même si l'éclaircissement de l'impulsion de fondamental est moindre dans le cas du modèle HOKE, la probabilité d'ionisation est tout de même comparable à celle du modèle classique. Ceci est dû au fait que l'ionisation peut être fortement renforcée en présence de TH, ainsi que nous l'avons montré dans les deux précédents Chapitres de cette thèse.

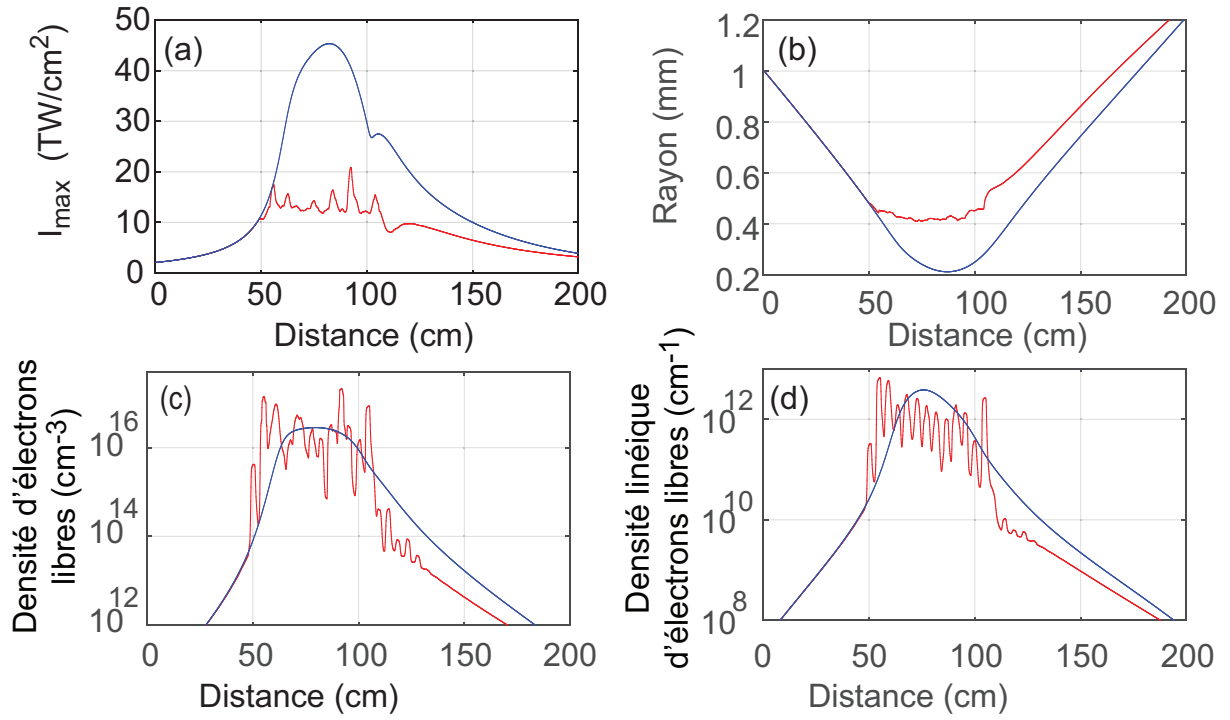


FIGURE 4.19: (a) Eclairement sur l'axe. (b) Rayon (FWHM) du faisceau. (c) Densité maximale d'électrons libres. (d) Densité linéique d'électrons libres. Toutes les observables sont représentés en fonction de la distance de propagation, en bleu dans le modèle classique, et en rouge dans le modèle HOKE.

En conséquence, l'ionisation participe quand même activement au clamping de l'éclairement du filament. Néanmoins, contrairement au scénario usuel de la filamentation, pour lequel le plasma est le seul mécanisme qui assure la stabilisation du filament, il est démontré ici que la modulation de phase croisée induite par le champ de TH, défocalisante, joue elle-aussi un rôle majeur dans le clamping de la filamentation.

---

### 3.4 Conclusion

En conclusion, la réponse optique du krypton a tout d'abord été étudiée, dans le cas où une transition à deux photons, impliquant un champ fondamental et sa troisième harmonique, est proche d'une résonance atomique. Dans cette situation, les processus de modulation de phase croisée, de recombinaison et de génération de troisième harmonique sont fortement renforcés. De plus, il est démontré que les non-linéarités d'ordres plus élevés sont également considérablement intensifiées, et doivent alors être prises en considération pour une représentation fidèle de la polarisation non-linéaire. Les indices de réfraction non-linéaires d'ordres plus élevés ont été extraits à partir des résultats de simulations numériques de résolution de l'E.S.D.T., dans le cas du krypton pour une impulsion centrée à  $\lambda_0 = 400$  nm.

Le processus de filamentation a ensuite été étudié dans cette configuration. Il est alors obtenu que la présence de la résonance à deux photons modifie notablement la dynamique de propagation du filament, par rapport au cas général – c'est-à-dire éloigné de toute résonance –. Plus précisément, il a été démontré que la XPM, défocalisante et induite par le champ de TH sur le champ fondamental, participait activement au clamping de l'éclairement du filament, en compagnie de l'ionisation. Ceci met en lumière le rôle des états excités dans la propagation de filaments ultraviolets.

Il est présumé que le phénomène mis en avant ici, étudié dans le krypton, prenne place dans n'importe quel gaz, mais pour des longueurs d'onde différentes bien sur – principalement dans l'ultraviolet – du fait de la nature résonante de celui-ci. Par exemple, un effet similaire peut être attendu dans l'argon à  $\lambda_0 = 266$  nm. Enfin, on peut noter que le même type de processus pourrait également prendre place avec des harmoniques (de champs visibles, voire infrarouges) d'ordres supérieurs. En particulier, cela peut être mis en perspective avec la possible existence de HOKE pour des impulsions à  $\lambda_0 = 800$  nm. Par conséquent, on peut se demander si une modulation de phase croisée, induite par des harmoniques d'ordres supérieurs, aurait pu être à l'origine des observations faites dans [24].

---

## 4 Conclusion du Chapitre

Les résultats présentés tout au long de ce dernier Chapitre concernent l'étude du processus de filamentation lorsque la longueur d'onde centrale du laser  $\lambda_0$  permet que des transitions résonantes prennent place. Plusieurs cas de figure ont été traités, à chaque fois dans le krypton et pour des champs lasers appartenant au domaine des ultraviolets. Néanmoins, les conclusions associées à chacun d'entre eux sont généralisables à d'autres gaz.

Dans un premier temps, le phénomène de renforcement de la filamentation a été reporté de manière expérimentale. Il se produit, dans le krypton, lorsque  $\lambda_0$  est fixée autour d'une valeur de 300 nm. Appuyée par des simulations numériques de résolution de l'E.S.D.T., la démonstration que des transitions résonantes à trois photons étaient à l'origine de cet effet a été apportée. Le rôle des susceptibilités d'ordre cinq est alors souligné.

Dans la continuité de cette première étude, l'effet laser, prenant son origine directement à partir des mêmes états excités peuplés au cours du processus précédent, a été examiné. Un grand nombre de résultats expérimentaux ont ainsi déjà été rassemblés, mais il en faudra encore beaucoup d'autres pour pouvoir relier entre eux tous les points du modèle qui permettra d'expliquer l'intégralité de la physique sous-jacente de ce phénomène.

Enfin, une situation mêlant processus résonant et troisième harmonique a été traitée. En effet, lorsque le champ fondamental est centré à  $\lambda_0 = 400$  nm, une transition utilisant un photon de fondamental et un photon de sa TH se situe au voisinage d'une résonance du krypton. Les termes Kerr d'ordres supérieurs, les coefficients  $n_i$ , associés à tous les processus prenant place dans ce cas (auto-modulation de phase, modulation de phase croisée, génération de troisième harmonique et fission d'un photon de TH en trois photons de fondamental), ont été calculés à partir d'un grand nombre de simulations numériques, et leur impact sur la propagation a été dévoilé. Notamment, le coefficient de XPM est fortement renforcé par la proximité de la résonance, et participe activement à la stabilisation du filament dans cette situation.

---

## 5 Bibliographie

- [1] S. Skupin, and L. Bergé,  
*Opt. Commun.* **280**, 173 (2007), *Supercontinuum generation of ultrashort laser pulses in air at different central wavelengths*. Cité p.[140](#).
- [2] L. Bergé,  
*Opt. Express* **16**, 21529 (2008), *Self-compression of 2  $\mu$ m laser filaments*. Cité p.[140](#).
- [3] L. Bergé, J. Rolle, and C. Köhler,  
*Phys. Rev. A* **88**, 023816 (2013), *Enhanced self-compression of mid-infrared laser filaments in argon*. Cité p.[140](#).
- [4] P. B  jot, C. Bonnet, V. Boutou, and J.-P. Wolf,  
*Opt. Express* **15**, 13295 (2007), *Laser noise compression by filamentation at 400 nm in argon*. Cité p.[191](#).
- [5] M. Ghotbi, P. Trabs, and M. Beutler,  
*Opt. Lett.* **36**, 463 (2011), *Generation of high-energy, sub-20-fs pulses in the deep ultraviolet by using spectral broadening during filamentation in argon*. Cité p.[140](#).
- [6] D. Kartashov, S. Alisauskas, A. Pugzlys, A. Voronin, A. Zheltikov, M. Petrarca, P. B  jot, J. Kasparian, J.-P. Wolf, and A. Baltuska,  
*Opt. Lett.* **37**, 3456 (2012), *White light generation over three octaves by femtosecond filament at 3.9  $\mu$ m in argon*. Cité p.[140](#).
- [7] D. Kartashov, S. Alisauskas, A. Pugzlys, A. Voronin, A. Zheltikov, M. Petrarca, P. B  jot, J. Kasparian, J.-P. Wolf, and A. Baltuska,  
*Opt. Lett.* **38**, 3194 (2013), *Mid-infrared laser filamentation in molecular gases*. Cité p.[140](#).
- [8] A.V. Mitrofanov, A.A. Voronin, D.A. Sidorov-Biryukov, A. Pugzlys, E.A. Stepanov, G. Andriukaitis, T. Flory, S. Alisauskas, A.B. Fedotov, A. Baltuska, and A.M. Zheltikov,  
*Scient. Rep.* **5**, 8368 (2015), *Mid-infrared laser filaments in the atmosphere*. Cité p.[140](#).
- [9] J. Schwarz, P. Rambo, J.-C. Diels, M. Kolesik E.M. Wright, and J.V. Moloney,  
*Opt. Commun.* **180**, 383 (2000), *Ultraviolet filamentation in air*. Cité p.[140](#).
- [10] A. Houard, V. Jukna, G. Point, Y.-B. Andr  , S. Klingebiel, M. Schutze, K. Michel, T. Metzger, and A. Mysyrowicz,  
*Opt. Express* **24**, 7437 (2016), *Study of filamentation with a high power high repetition rate ps laser at 1.03  $\mu$ m*. Cité p.[140](#).

- 
- [11] J. Doussot, G. Karras, F. Billard, P. Béjot, and O. Faucher, *Optica* **4**, 764 (2017), *Resonantly enhanced filamentation in gases*. Cité p.141.
- [12] A. Kramida, Y. Ralchenko, and J. Reader, and NIST ASD Team, NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.3) (National Institute of Standards and Technology, 2015), <http://physics.nist.gov/asd>. Cité p.142, p.151 et p.154.
- [13] R. Wiehle, B. Witzel, H. Helm, and E. Cormier, *Phys. Rev. A* **67**, 063405 (2003), *Dynamics of strong-field above-threshold ionization of argon : Comparison between experiment and theory*. Cité p.143.
- [14] C. Köhler, R. Guichard, E. Lorin, S. Chelkowski, A.D. Bandrauk, L. Bergé, and S. Skupin, *Phys. Rev. A* **87**, 043811 (2013), *Saturation of the nonlinear refractive index in atomic gases*. Cité p.147.
- [15] C. Köhler, L. Bergé, and S. Skupin, *Physica D* **240**, 963 (2011), *Effect of nonlinear dispersion on pulse self-compression in a defocusing noble gas*. Cité p.148 et p.166.
- [16] P. Kaminski, R. Wiehle, V. Renard, A. Kazmierczak, B. Lavorel, O. Faucher, and B. Witzel, *Phys. Rev. A* **70**, 053413 (2004), *Wavelength dependence of multiphoton ionization of xenon*. Cité p.149.
- [17] A. Dogariu, and R.B. Miles, *Opt. Express* **24**, A544 (2016), *Three-photon femtosecond pumped backwards lasing in argon*. Cité p.153.
- [18] J.C. Miller, *Phys. Rev. A* **40**, 6969 (1989), . Cité p.154.
- [19] P. Laporte and H. Damany, *J. Phys.* **40**, 9 (1979), *High density self-broadening of the first xenon and krypton resonance line*. Cité p.161.
- [20] J. Doussot, P. Béjot, and O. Faucher, *Phys. Rev. A* **94**, 013805 (2016), *Two-color resonant filamentation in gases*. Cité p.165.
- [21] C. Brée, A. Demircan, and G. Steinmeyer, *IEEE J. Quant. Electron.* **46**, 433 (2010), *Method for Computing the Nonlinear Refractive Index via Keldysh Theory*. Cité p.170.
- [22] M. Tarazkar, D.A. Romanov, and R.J. Levis, *Phys. Rev. A* **90**, 062514 (2014), *High-order nonlinear refractive indices for He, Ne, Kr, and Xe atoms*. Cité p.170.
- [23] R.W. Boyd, *Nonlinear Optics (Third Edition)*, p.225 (2008). Cité p.171.
-

- 
- [24] V. Lorient, E. Hertz, O. Faucher, and B. Lavorel,  
*Opt. Express* **17**, 13429 (2009), *Measurement of high order Kerr refractive index of major air components*. Cité p.179.
-



## CONCLUSION GÉNÉRALE

DANS le cadre de cette thèse, plusieurs travaux sur le processus de filamentation dans les gaz rares ont été menés, tant au niveau théorique et simulatoire qu'expérimental. Deux axes de développement ont été explorés : le premier concernait l'impact que peuvent avoir les radiations secondaires, en l'occurrence la troisième harmonique du champ fondamental, notamment sur le processus d'ionisation et par suite sur la filamentation elle-même ; le deuxième, quant à lui, s'intéressait à l'influence de la proximité d'une résonance sur la dynamique de la filamentation.

Dans un premier temps, les bases théoriques du phénomène ont été posées. Du traitement de la propagation du faisceau laser au moyen de l'équation U.P.P.E. (pour **U**nidirectional **P**ulse **P**ropagation **E**quation), dérivée des équations de Maxwell, à l'interaction lumière-matière décrite grâce à la résolution de l'E.S.D.T. (pour **E**quation de **S**chrödinger **D**épendante du **T**emps), par une méthode avantageuse de décomposition de l'équation sur une base de fonctions splines, la manière de modéliser numériquement la filamentation a également été longuement détaillée. Les valeurs typiques des grandeurs physiques associées à la production de filaments (densité d'électrons libres, éclaircissement, fluence, ...) ont été définies, en parallèle de la description de phénomènes accompagnant la filamentation.

Basé sur bon nombre de simulations numériques, un fort effet dû à la présence de troisième harmonique, dès lors qu'une faible proportion de celle-ci accompagne le champ fondamental, a été mis en lumière. La dépendance de cet effet vis-à-vis de caractéristiques du champ dichroïque, à savoir l'éclaircissement pic du champ fondamental ainsi que le ratio en éclaircissement de troisième harmonique et la phase relative entre les deux champs, a été identifiée et prise en compte pour établir des formules permettant l'évaluation numérique de cet impact en fonction de la valeur de ces derniers. L'algorithme de résolution de l'E.S.D.T. dans les gaz rares s'appuie sur l'approximation dite S.A.E. (pour **S**ingle **A**ctive **E**lectron), considérant qu'un seul électron du système atomique est susceptible d'interagir avec le champ électrique, et néglige de fait les corrélations électron-électron dans la réponse optique. Il pourrait alors être envisagé de développer un code prenant en compte deux électrons actifs, dans le but d'étudier la potentielle influence

---

de ces dernières sur nos résultats en champ fort.

A la suite de cela, nous nous sommes interrogés sur les conséquences sur le processus de filamentation que pouvait avoir l'effet observé précédemment, lorsque la troisième harmonique était tantôt auto-induite lors de la propagation du champ fondamental, tantôt produite en parallèle de celle-ci. Il en a été conclu que la présence de troisième harmonique était capable, dans le premier cas, d'impacter significativement la dynamique de propagation de l'impulsion pour certaines valeurs de focales et de pressions, et dans le second cas de modifier les caractéristiques du filament, notamment via la phase relative entre champs fondamental et harmonique. Cette étude appelant à ne plus négliger la réponse optique de l'atome à des fréquences autres que celle fondamentale, l'investigation pourrait être poussée plus avant en incluant les harmoniques d'ordres supérieurs. Du point de vue simulatoire, chaque ajout d'une de celles-ci augmenterait de deux le nombre de paramètres (à savoir le ratio en éclairnement et la phase relative associés à l'harmonique en question) par rapport auxquels l'effet exprimerait une dépendance. Mener le même genre d'étude que celles décrites dans le troisième Chapitre demanderait alors un effort numérique de plus en plus conséquent au fur et à mesure que les harmoniques seraient implantées.

Pour finir, la possibilité de faire s'approcher la longueur centrale des impulsions d'une résonance du système atomique, en l'occurrence du krypton (généralisable aux autres gaz rares), a été envisagée. Un premier travail a ainsi identifié l'existence d'un régime de filamentation basé sur l'effet Kerr. Celui-ci induit un renforcement résonant du processus de filamentation : une diminution significative des pertes optiques autour de la résonance – i.e. lorsque  $\lambda_0 = 300 \text{ nm}$  – permet alors que la distance sur laquelle l'auto-stabilisation du filament parvient à se maintenir se retrouve prolongée par rapport à la situation hors résonance. L'efficacité des applications atmosphériques de la filamentation étant fortement dépendante de la capacité à transporter une importante quantité d'énergie dans les zones d'intérêt, l'extension de ce travail à des gaz moléculaires, tels que l'oxygène et l'azote, pourrait s'avérer très précieuse.

Un effet laser à deux étages, tenant son origine des mêmes états pompés que ceux de l'étude précédente, a ensuite été longuement étudié. Il consiste en l'observation expérimentale de raies d'émission dans la direction de propagation du faisceau laser, uniquement lorsque la longueur d'onde centrale de ce dernier est fixée à proximité d'une résonance à trois photons du krypton. La compréhension que nous avons des observations est encore incomplète, et nécessite davantage d'approfondissements. Enfin, une situation particulière, faisant le lien entre les deux axes de développement de cette thèse, a été examinée. Elle met en jeu un champ fondamental centré à  $\lambda_0 = 400 \text{ nm}$  accompagné de sa troisième harmonique. Un certain nombre de processus non-linéaires prennent place dans ce cas, et nous avons procédé à des ajustements de la contribution

---

que chacun d'entre eux apporte à la polarisation non-linéaire : nous avons ainsi pu déterminer la valeur des indices non-linéaires d'ordres supérieurs. Nous avons démontré grâce à des simulations de propagation que l'un d'entre eux, associé à la modulation de phase croisée et renforcé par résonance, participait activement à la stabilisation du filament.

---

Ce travail de thèse a abouti à la publication des articles suivants :

J. Doussot, P. Béjot, G. Karras, F. Billard and O. Faucher,  
*J. Phys. B* **48**, 184005 (2015),  
*Phase control of two-color filamentation*

P. Béjot, G. Karras, F. Billard, J. Doussot, E. Hertz, B. Lavorel and O. Faucher,  
*Phys. Rev. A* **92**, 053417 (2015),  
*Subcycle engineering of laser filamentation in gas by harmonic seeding*

J. Doussot, P. Béjot and O. Faucher,  
*Phys. Rev. A* **93**, 033857 (2016),  
*Impact of third-harmonic generation on the filamentation process*

J. Doussot, P. Béjot and O. Faucher,  
*Phys. Rev. A* **94**, 013805 (2016),  
*Two-color resonant filamentation in gases*

J. Doussot, G. Karras, F. Billard, P. Béjot and O. Faucher,  
*Optica* **4**, 764 (2017),  
*Resonantly enhanced filamentation in gases*



## ANNEXE $\mathcal{A}$ : GRANDEURS PHYSIQUES ET UNITÉS ASSOCIÉES

### Définitions :

Les rayonnements électromagnétiques étant au cœur de cette thèse, il est important de s'accorder sur leur caractérisation et leur mesure, ainsi que sur le vocabulaire associé. Pour ce faire, des grandeurs physiques, exprimant chacune une caractéristique du rayonnement, sont définies [1]. On distingue notamment les grandeurs photométriques des grandeurs radiométriques. L'adjectif « lumineux » est rattaché aux noms des premières, qui tiennent compte de la physiologie de la perception visuelle humaine, c'est-à-dire qu'elles sont concernées lorsque le capteur est l'œil. Elles sont à ce titre limitées à la description de rayonnements électromagnétiques appartenant au domaine du visible. Les deuxièmes, auxquelles l'adjectif « énergétique » est rattaché, ne sont pas restreintes à une gamme de longueurs d'onde et sont donc applicables aux domaines des micro-ondes, de l'infrarouge autant qu'au visible. C'est pourquoi elles constituent les grandeurs physiques utilisées tout au long de ce manuscrit.

- *l'énergie* : elle est exprimée en joules (J) en unités S.I., et est notée  $\mathcal{E}$ . En physique, cette quantité peut être échangée entre des systèmes, mais pas détruite ni créée : on dit alors qu'il y a conservation de l'énergie. De plus, on peut définir une densité volumique d'énergie électromagnétique  $u$ , associée à un champ électromagnétique ( $\mathbf{E}, \mathbf{B}$ ) :

$$u = \frac{1}{2} \left( \epsilon |\mathbf{E}|^2 + \frac{1}{\mu} |\mathbf{B}|^2 \right) \quad (5.14)$$

le premier (resp. le deuxième) terme pouvant être interprété comme une contribution électrique (resp. magnétique).

- *le flux (énergétique)* : il s'exprime en watts (W) en unités S.I., et est noté  $\Phi_e$ . Il est défini comme la puissance totale du rayonnement lumineux émis par une source (dans ce cas, le flux énergétique est d'ailleurs appelé « puissance »), ou reçu par un corps. Le flux énergétique correspond à l'intégrale de surface de la moyenne temporelle du vecteur de

---

Poynting ( $S$  est la surface en question) :

$$\Phi_e = \iint_S \langle \Pi \rangle \cdot d\mathbf{S} \quad (5.15)$$

- *l'intensité (énergétique)* : elle s'exprime en watts par stéradian ( $\text{W.sr}^{-1}$ ) en unités S.I., et est notée  $\mathcal{I}_e$ . Le stéradian est l'unité de l'angle solide (note  $\Omega$ ). Ainsi, l'intensité énergétique correspond à la puissance du rayonnement électromagnétique se propageant dans une direction donnée, rapportée à l'unité d'angle solide autour de cette direction. Sa formule est alors :

$$\mathcal{I}_e = \frac{d\Phi_e}{d\Omega} \quad (5.16)$$

Cette quantité dépend donc de la direction, contrairement au flux. Elle est bien adaptée pour la description angulaire du rayonnement émis par une source de petite dimension. Dans le cas d'une source étendue, on préfère en général la notion de luminance.

- *la luminance (énergétique)* : elle s'exprime en watts par stéradian et par mètre carré ( $\text{W.sr}^{-1}.\text{m}^{-2}$ ) en unités S.I., et est notée  $L_e$ . Elle désigne la puissance du champ électromagnétique qui traverse une surface réceptrice dans une direction donnée, par unité de surface émettrice  $dS$  et d'angle solide. Elle est reliée à l'intensité (énergétique) par la formule suivante :

$$L_e = \frac{d\mathcal{I}_e}{dS \cos\theta} \quad (5.17)$$

où  $\theta$  est l'angle entre la normale à la surface et la direction considérée.

- *l'éclairement (énergétique)* : il s'exprime en watts par mètre carré ( $\text{W.m}^{-2}$ ) en unités S.I., et est noté  $I$  dans tout ce manuscrit (il est en général noté  $E_e$ ). Il désigne la puissance reçue par unité de surface  $dS$  par un corps soumis à un rayonnement :

$$I = \frac{d\Phi_e}{dS} \quad (5.18)$$

Pour une onde plane monochromatique, l'éclairement est donné par la norme du vecteur de Poynting. En anglais, cette quantité est appelée « *intensity* », ce qui peut porter à confusion puisque ce mot n'est donc pas transparent.

- *l'exittance (énergétique)* : elle s'exprime elle-aussi en watts par mètre carré ( $\text{W.m}^{-2}$ ) en unités S.I., et est notée  $M$ . Elle est associée à une quantité physique proche de l'éclairement, puisqu'elle désigne la puissance lumineuse émise par unité de surface.
- *la fluence* : elle s'exprime en joules par mètre carré ( $\text{J.m}^{-2}$ ) en unités S.I., et est notée  $\mathcal{F}_e$ . Elle désigne l'énergie délivrée par unité de surface par le champ électromagnétique. La formule suivante permet son évaluation :

$$\mathcal{F}_e = \int_{\Delta t} I(t) dt \quad (5.19)$$

---

Si le champ est constant, on a :  $\mathcal{F}_e = I\Delta t$ .

### Evaluation numérique des observables physiques :

A chaque pas de la résolution numérique de la propagation de l'impulsion, nous procédons à l'évaluation numérique de plusieurs observables. En effet, toutes dépendent du champ électrique et comme celui-ci est constamment ré-évalué, il est nécessaire de calculer les valeurs qu'elles prennent à l'intérieur même de la boucle de propagation. Ainsi, l'algorithme calcule :

- ❑ *l'éclairement maximal* : on recherche tout simplement le point maximal de la distribution spatio-temporelle de  $I(r, t) = |E(r, t)|^2$ .
- ❑ *la fluence* : on applique la formule (5.19).
- ❑ *la puissance* : on applique la formule (5.15).
- ❑ *le rayon de l'impulsion* : plus précisément, on calcule en fait le rayon quadratique, correspondant au moment d'ordre deux de la fluence :

$$R_{\text{quad}} = 2\sqrt{\frac{\int r^2 \mathcal{F}_e dr}{\int \mathcal{F}_e dr}} \quad (5.20)$$

En effet, il a été souligné [2] que cette formulation était plus apte à correctement décrire la situation, notamment par rapport à la formulation FWHM qui ne prend pas en compte le bain de photons entourant le filament.

- ❑ *la durée de l'impulsion* : elle est calculée sur l'axe de propagation, en fonction du moment d'ordre deux de l'éclairement :

$$\Delta t = 2\sqrt{2\ln 2} \sqrt{\frac{\int (t - t_0)^2 I(r=0, t) dt}{\int I(r=0, t) dt}} \quad (5.21)$$

où  $t_0$  est le moment d'ordre un, exprimant le centre statistique de l'impulsion :

$$t_0 = \frac{\int t I(r=0, t) dt}{\int I(r=0, t) dt} \quad (5.22)$$

- ❑ *la densité maximale d'électrons libres* : on recherche tout simplement le point maximal de la distribution spatio-temporelle de la densité d'électrons libres  $\rho(r, t)$ .
- ❑ *la densité linéique d'électrons libres* : on intègre la densité d'électrons libres sur la composante radiale :

$$\rho_{\text{lin}} = 2\pi \int r \rho(t = +\infty) dr \quad (5.23)$$


---

---

En plus de ces évaluations numériques, le champ électrique est tout de même sauvegardé à intervalles réguliers, permettant notamment de reconstituer la figure illustrant le processus de pulse-splitting, expliqué lors de la partie 3.4.

## ANNEXE $\mathcal{B}$ : MODÈLE P.P.T.

L'ionisation d'atomes par un champ électrique intense fut étudiée dans les années 1960 notamment par Perelomov, Popov et Terent'ev [3, 4], qui aboutirent à une formulation donnant en bonne approximation la probabilité d'ionisation, valide pour n'importe quel atome ou ion de nombres quantiques  $l$  et  $m$  et de numéro atomique  $Z$  :

$$W(\omega_0, F) = \omega_{\text{a.u.}} \sqrt{\frac{6}{\pi}} |C_{n^*, l^*}|^2 f(l, m) \frac{U_i}{2U_H} A_m(\omega_0, \gamma) \left( \frac{2E_0}{F\sqrt{1+\gamma^2}} \right)^{2n-m-3/2} \exp \left[ -\frac{2E_0}{3F} g(\gamma) \right] \quad (5.24)$$

où  $F$  est l'amplitude crête du champ électrique,  $U_i$  le potentiel d'ionisation du gaz considéré ;  $\omega_{\text{a.u.}} = eE_H / \sqrt{2m_e U_H}$ , avec  $E_H = e^5 m_e^2 / \hbar^4 (4\pi\epsilon_0)^3$  et  $U_H$  le potentiel d'ionisation de l'atome d'hydrogène (13.6 eV).

La constante sans dimension  $|C_{n^*, l^*}|^2$  associée à un atome donné est adaptée à partir de l'hydrogène, en substituant les nombres quantiques principal  $n$  et orbital  $l$  par des valeurs effectives :  $n^* = n - \delta l$  et  $l^* = l - \delta l$ , avec  $\delta l = n - (U_i / U_H)^{-1/2}$  le défaut quantique. Ainsi sera pris en compte l'écrantage induit par les électrons des couches inférieures :

$$|C_{n^*, l^*}|^2 = \frac{2^{2n^*}}{n^* \Gamma(n^* + l^* + 1) \Gamma(n^* - l^*)} \quad (5.25)$$

où  $\Gamma$  est la fonction gamma. La constante  $f(l, m)$ , quant à elle, s'écrit :

$$\begin{aligned} f(0, 0) &= 1 \\ f(l, m) &= \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|} [m]! (l-|m|)!} \end{aligned} \quad (5.26)$$

Les autres fonctions s'écrivent :

$$A_m(\omega_0, \gamma) = \frac{4}{\sqrt{3\pi}} \frac{1}{|m|!} \frac{\gamma^2}{1+\gamma^2} \sum_{\kappa > \nu} \exp[-\alpha(\kappa - \nu)] \Phi_m \left( \sqrt{\beta(\kappa - \nu)} \right) \quad (5.27)$$

où l'on retrouve le paramètre  $\gamma$ , défini par Keldysh [5] et dont l'expression est donnée par l'équa-

---

tion (1.42). Egaleme<sup>nt</sup> :

$$\Phi_m(x) = \frac{x^{2|m|+1}}{2} \int_0^1 \frac{e^{-x^2 t} t^{|m|}}{\sqrt{1-t}} dt = e^{-x^2} \int_0^x (x^2 - y^2)^{|m|} e^{y^2} dy \quad (5.28)$$

$$\beta(\gamma) = \frac{2\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}} \quad (5.29)$$

$$\alpha(\gamma) = 2 \left( \sinh^{-1}(\gamma) - \frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}} \right) \quad (5.30)$$

$$g(\gamma) = \frac{3}{2\gamma} \left[ \left( 1 + \frac{1}{2\gamma^2} \right) \sinh^{-1}(\gamma) - \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{2\gamma} \right] \quad (5.31)$$

$$\nu = \frac{U_i}{\hbar\omega_0} \left( 1 + \frac{1}{2\gamma^2} \right) \quad (5.32)$$

$$\nu_0 = \frac{U_i}{\hbar\omega_0} \quad (5.33)$$

$$E_0 = E_H (U_i / U_H)^{3/2} \quad (5.34)$$

## ANNEXE $\mathcal{C}$ : DÉVELOPPEMENT DE LA POLARISATION EN PUISSANCES DU CHAMP ÉLECTRIQUE ET INDICES NON-LINÉAIRES

Le but de cette partie est de développer les calculs amenant à l'équation (1.70), et notamment ceux portant sur le terme de polarisation non-linéaire  $\tilde{P}_{\text{NL}}$ . Nous rappelons que nous nous plaçons dans l'approximation du champ faible et que, n'étudiant que des gaz centrosymétriques, nous considérons l'annulation des termes d'ordres pairs de la polarisation développée en série du champ électrique, i.e.  $\chi^{2q} = 0 \quad \forall q$ .

Dans le cas où l'on considère que la polarisation est instantanée (i.e.  $\chi$  indépendante de  $\omega$ ), les détails des calculs sont les suivants :

- ➡️ rappelons tout d'abord l'équation de propagation établie au Chapitre 1, s'appliquant sur le champ complexe  $\xi$  du champ électrique  $E$  :

$$\frac{\partial \tilde{\xi}}{\partial z} = i k_z \tilde{\xi} + \frac{\mu_0 \omega}{k_z} \left( i \omega \tilde{P}_{\text{NL}} - \frac{e^2 (v_e + i \omega)}{2 m_e (v_e^2 + \omega^2)} \widetilde{\rho \xi} \right) \quad (5.35)$$

- ➡️ nous nous intéressons ici au terme de polarisation non-linéaire, qui s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \tilde{P}_{\text{NL}} &= \epsilon_0 \sum_{q \geq 1} \chi^{(2q+1)} \left[ \frac{1}{2} (\tilde{\xi} + \tilde{\xi}^*) \right]^{2q+1} \\ \tilde{P}_{\text{NL}} &= \epsilon_0 \sum_{q \geq 1} \sum_{\beta=0}^q \chi^{(2q+1)} \left\{ \frac{1}{2^{2q+1}} \left[ C_\beta(q) |\tilde{\xi}|^{2(q-\beta)} \tilde{\xi}^{2\beta+1} + \text{c.c.} \right] \right\} \end{aligned} \quad (5.36)$$

où  $C_\beta$  représente les coefficients liés aux termes oscillants à  $(2\beta + 1)$  fois  $\omega_0$  lorsqu'on développe les puissances du champ électrique. Bien sur, certains coefficients n'existent pas si l'ordre  $q$  n'est pas assez élevé pour le permettre : par exemple, à l'ordre  $q = 1$ , il est impossible de créer de la cinquième harmonique (et à fortiori, de la septième, etc...). De manière générale, on a donc :  $C_{\beta > q} = \emptyset$ .

- le coefficient  $C_0(q)$  étant en fait intégré par la suite à la définition de l'indice non-linéaire correspondant  $n_{2q}$ , nous le sortons donc des crochets dans l'équation précédente. Le facteur associé au terme oscillant à  $\omega_0$  vaut donc 1 dans tous les cas.
- dans le Chapitre 1, nous avons ensuite défini un changement de variable  $(\xi) \rightarrow (\varepsilon)$ , selon :

$$\varepsilon = \sqrt{\frac{\epsilon_0 c n}{2}} \xi \quad \longleftrightarrow \quad \xi = \sqrt{\frac{2}{\epsilon_0 c n}} \varepsilon \quad (5.37)$$

l'unité de  $\varepsilon$  étant le  $\sqrt{W}/m$ .

- lorsqu'on applique ce changement de variable à l'équation (5.35), il vient :

$$\sqrt{\frac{2}{\epsilon_0 c n}} \frac{\partial \tilde{\varepsilon}}{\partial z} = i k_z \sqrt{\frac{2}{\epsilon_0 c n}} \tilde{\varepsilon} + \frac{\mu_0 \omega}{k_z} \left( i \omega \tilde{P}_{NL} - \sqrt{\frac{2}{\epsilon_0 c n}} \frac{e^2 (v_e + i \omega)}{2 m_e (v_e^2 + \omega^2)} \tilde{\rho} \tilde{\varepsilon} \right) \quad (5.38)$$

le terme de polarisation non-linéaire devenant pour sa part :

$$\tilde{P}_{NL} = \epsilon_0 \sum_{q \geq 1} \sum_{\beta=0}^q \chi^{(2q+1)} \frac{C_0(q)}{2^{2q+1}} \sqrt{\frac{2}{\epsilon_0 c n}}^{2q+1} \left[ \frac{C_\beta(q)}{C_0(q)} |\tilde{\varepsilon}|^{2(q-\beta)} \tilde{\varepsilon}^{2\beta+1} + \text{c.c.} \right] \quad (5.39)$$

- le facteur  $\sqrt{2/\epsilon_0 c n}$  se simplifie dans l'équation (5.38) :

$$\frac{\partial \tilde{\varepsilon}}{\partial z} = i k_z \tilde{\varepsilon} + \frac{\mu_0 \omega}{k_z} \left( i \omega \tilde{P}_{NL} - \frac{e^2 (v_e + i \omega)}{2 m_e (v_e^2 + \omega^2)} \tilde{\rho} \tilde{\varepsilon} \right) \quad (5.40)$$

avec la polarisation non-linéaire s'écrivant alors :

$$\begin{aligned} \tilde{P}_{NL} &= \epsilon_0 \sum_{q \geq 1} \sum_{\beta=0}^q \chi^{(2q+1)} \frac{C_0(q)}{2^{2q+1}} \sqrt{\frac{2}{\epsilon_0 c n}}^{2q} \left[ \frac{C_\beta(q)}{C_0(q)} |\tilde{\varepsilon}|^{2(q-\beta)} \tilde{\varepsilon}^{2\beta+1} + \text{c.c.} \right] \\ \tilde{P}_{NL} &= \epsilon_0 \sum_{q \geq 1} \sum_{\beta=0}^q \chi^{(2q+1)} \frac{C_0(q)}{2^{q+1} \epsilon_0^q c^q n^q} \left[ \frac{C_\beta(q)}{C_0(q)} |\tilde{\varepsilon}|^{2(q-\beta)} \tilde{\varepsilon}^{2\beta+1} + \text{c.c.} \right] \end{aligned} \quad (5.41)$$

- les coefficients  $C_\beta(q)$  découlent du développement des puissances du champ, et à ce titre correspondent chacun au nombre de possibilités  $\mathcal{C}_n^k$  de compter  $k$  éléments dans un ensemble à  $n$  éléments. Célèbre en combinatoire, ce nombre est exprimé comme suit :

$$\mathcal{C}_n^k = \frac{n!}{k!(n-k)!} \quad (5.42)$$

Adaptée à nos notations, cette expression devient :

$$C_\beta(q) = \mathcal{C}_{2q+1}^{q-\beta} = \frac{(2q+1)!}{(q-\beta)!(q+1+\beta)!} \quad (5.43)$$

avec la condition :

$$0 \leq \beta \leq q \quad (5.44)$$

---

➡ le rapport des coefficients  $C_\beta(q)/C_0(q)$  est alors :

$$\frac{C_\beta(q)}{C_0(q)} = \frac{q!(q+1)!}{(q-\beta)!(q+1+\beta)!} \quad (5.45)$$

➡ on identifie également l'indice non-linéaire  $n_{2q}$  associé à la susceptibilité d'ordre  $2q+1$  comme :

$$n_{2q} = \frac{C_0(q)}{2^{q+1}} \frac{\chi^{(2q+1)}}{\epsilon_0^q c^q n^q} = \frac{(2q+1)!}{q!(q+1)!} \frac{1}{2^{q+1}} \frac{\chi^{(2q+1)}}{\epsilon_0^q c^q n^q} \quad (5.46)$$

On notera que cette définition des termes d'indices non-linéaires est indépendante de la convention choisie pour exprimer le champ électrique.

A titre d'illustration, le tableau 5.3 regroupe les formules de  $n_{2q}$  en fonction de la susceptibilité d'ordre  $2q+1$ , ainsi que les valeurs des rapports des coefficients  $C_\beta(q)/C_0(q)$  pour des valeurs de  $q$  comprises entre 1 et 6 (i.e. jusqu'à  $n_{12}$ ). Dans chaque cas, le résultat est mis sous la forme d'une fraction irréductible. Lorsque le coefficient n'existe pas, le symbole  $\emptyset$  remplit alors la case correspondante du tableau. Dans le cas où l'on néglige les termes d'ordres  $q > 1$ , on peut vérifier que l'on retrouve bien l'équation (1.70).

| $q$                         | 1                                                     | 2                                                           | 3                                                             | 4                                                             | 5                                                                 | 6                                                                 |
|-----------------------------|-------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------|
| $n_{2q} = f(\chi^{(2q+1)})$ | $n_2 = \frac{3}{4} \frac{\chi^{(3)}}{\epsilon_0 c n}$ | $n_4 = \frac{5}{4} \frac{\chi^{(5)}}{\epsilon_0^2 c^2 n^2}$ | $n_6 = \frac{35}{16} \frac{\chi^{(5)}}{\epsilon_0^3 c^3 n^3}$ | $n_8 = \frac{63}{16} \frac{\chi^{(7)}}{\epsilon_0^4 c^4 n^4}$ | $n_{10} = \frac{231}{32} \frac{\chi^{(9)}}{\epsilon_0^5 c^5 n^5}$ | $n_{12} = \frac{429}{32} \frac{\chi^{(9)}}{\epsilon_0^6 c^6 n^6}$ |
| $C_1/C_0$                   | $\frac{1}{3}$                                         | $\frac{1}{2}$                                               | $\frac{3}{5}$                                                 | $\frac{2}{3}$                                                 | $\frac{5}{7}$                                                     | $\frac{3}{4}$                                                     |
| $C_2/C_0$                   | $\emptyset$                                           | $\frac{1}{10}$                                              | $\frac{1}{5}$                                                 | $\frac{2}{7}$                                                 | $\frac{5}{14}$                                                    | $\frac{5}{12}$                                                    |
| $C_3/C_0$                   | $\emptyset$                                           | $\emptyset$                                                 | $\frac{1}{35}$                                                | $\frac{1}{14}$                                                | $\frac{5}{42}$                                                    | $\frac{1}{6}$                                                     |
| $C_4/C_0$                   | $\emptyset$                                           | $\emptyset$                                                 | $\emptyset$                                                   | $\frac{1}{126}$                                               | $\frac{1}{42}$                                                    | $\frac{1}{22}$                                                    |
| $C_5/C_0$                   | $\emptyset$                                           | $\emptyset$                                                 | $\emptyset$                                                   | $\emptyset$                                                   | $\frac{1}{462}$                                                   | $\frac{1}{132}$                                                   |
| $C_6/C_0$                   | $\emptyset$                                           | $\emptyset$                                                 | $\emptyset$                                                   | $\emptyset$                                                   | $\emptyset$                                                       | $\frac{1}{1716}$                                                  |

TABLE 5.3: Valeurs des coefficients  $n_{2q}$  et  $C_\beta/C_0$  pour  $1 < q < 6$  et  $1 < \beta < 6$ .

# ANNEXE D : CONSTANTES UNIVERSELLES ET UNITÉS ATOMIQUES

## Constantes Universelles :

Le tableau 5.4 récapitule les constantes universelles auxquelles nous avons recours lors de nos calculs.

| Quantité                          | Valeur                              | Unité S.I.                        |
|-----------------------------------|-------------------------------------|-----------------------------------|
| Vitesse de la lumière             | $c = 299792458$                     | $\text{m.s}^{-1}$                 |
| Charge électrique                 | $e = -1.602176565.10^{-19}$         | A.s                               |
| Masse de l'électron               | $m_e = 9.1093826.10^{-31}$          | kg                                |
| Constante de Planck               | $h = 6.62606957.10^{-34}$           | $\text{kg.m}^2.\text{s}^{-1}$     |
| Permittivité diélectrique du vide | $\epsilon_0 = 8.854187817.10^{-12}$ | $\text{V.s.A}^{-1}.\text{m}^{-1}$ |
| Perméabilité magnétique du vide   | $\mu_0 = 12.566370614.10^{-7}$      | $\text{A.s.V}^{-1}.\text{m}^{-1}$ |

TABLE 5.4: Quantités physiques et leurs unités exprimées dans le système des unités internationales (S.I.).

## Unités Atomiques :

Le système des unités internationales, dans lequel sont exprimées les quantités physiques du tableau 5.4, convient pour exprimer des quantités à l'échelle macroscopique (mètre, kilogramme, ...). Au moment de traiter la résolution de l'E.S.D.T, il est plus commode de les redimensionner, et de définir par là même un système d'unité adapté à la physique atomique.

Tant qu'à faire, il est défini de manière à simplifier les équations gouvernant ces systèmes atomiques/moléculaires. Ainsi, le choix est fait de poser :  $m_e = e = \hbar = a_0 = 1$ , et il est associé aux relations suivantes, en unités atomiques :

$$c = \frac{1}{\alpha} \quad \epsilon_0 = \frac{1}{4\pi} \quad \mu_0 = \frac{4\pi}{c^2} \quad (5.47)$$

quantités elles-mêmes reliées invariablement par la relation :

$$\epsilon_0 \mu_0 c^2 = \kappa^2 \quad (5.48)$$

où  $\kappa$  dépend du système d'unités.  $\alpha$  est la constante de structure fine, définie par la relation :

$$\alpha = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\hbar c} \quad (5.49)$$

Le tableau 5.5 rassemble les correspondances entre une unité atomique des différentes quantités physiques et les valeurs de ces-dernières dans le Système International.

| Quantité         | Nom                         | Notation                     | Valeur en unités S.I.                   |
|------------------|-----------------------------|------------------------------|-----------------------------------------|
| Masse            | Masse de l'électron         | $m_e$                        | $9.1093826.10^{-31}$ kg                 |
| Charge           | –                           | $e$                          | $-1.602176565.10^{-19}$ A.s             |
| Moment angulaire | Constante de Planck réduite | $\hbar$                      | $1.05459.10^{-34}$ J.s                  |
| Longueur         | Rayon de Bohr               | $a_0$                        | $5.29177.10^{-11}$ m                    |
| Vitesse          | –                           | $v_0 = \alpha c$             | $2.18769.10^6$ m.s <sup>-1</sup>        |
| Impulsion        | –                           | $p_0 = m v_0$                | $1.99288.10^{-24}$ kg.m.s <sup>-2</sup> |
| Temps            | –                           | $\tau_0 = a_0 / v_0$         | $2.41889.10^{-17}$ s                    |
| Energie          | Hartree                     | $E_0 = \frac{\hbar}{\tau_0}$ | 27.2116 eV                              |

TABLE 5.5: Correspondance entre le système des unités internationales et le système des unités atomiques.

## ANNEXE $\mathcal{E}$ : FOCALISATION D'UN FAISCEAU PAR UNE LENTILLE

Dans cette annexe, nous revenons sur l'expression simulant l'effet d'une lentille convergente sur le faisceau, vue à la partie .

La figure 5.20 schématise une telle situation : en passant à travers la lentille, le front d'onde se courbe. En d'autres termes et en suivant les notations du schéma : tous les points R de la surface d'onde  $\Sigma$ , qui coupe l'axe de propagation  $z$  au point O situé à une distance  $d$  du point focal A, ne correspondent pas au même point B de cet axe de propagation. Ces points R sont éloignés de leur projection sur l'axe de propagation d'une distance  $r$ .

Ainsi, l'expression radiale  $E_r = e^{-r^2/\sigma_r^2}$  du champ électrique est multiplié par un coefficient complexe  $e^{ik_0 z_e}$  prenant en compte cette transmission à travers la lentille. On cherche ici à déterminer l'expression de  $z_e$ , distance à laquelle est placée le point B par rapport au point O. On définit également la distance  $z_d$ , comme suit :

$$z_d = [AB] = f - z_e \quad (5.50)$$

Egalement, dans l'hypothèse d'un faisceau pas trop focalisé, on a :

$$[AR] \simeq f \quad (5.51)$$

où  $f$  est la distance focale de la lentille. En appliquant le théorème de Pythagore au triangle ABR, rectangle en B, on a :

$$\begin{aligned} f^2 &= z_d^2 + r^2 \\ \Rightarrow z_d &= \sqrt{f^2 - r^2} \end{aligned} \quad (5.52)$$

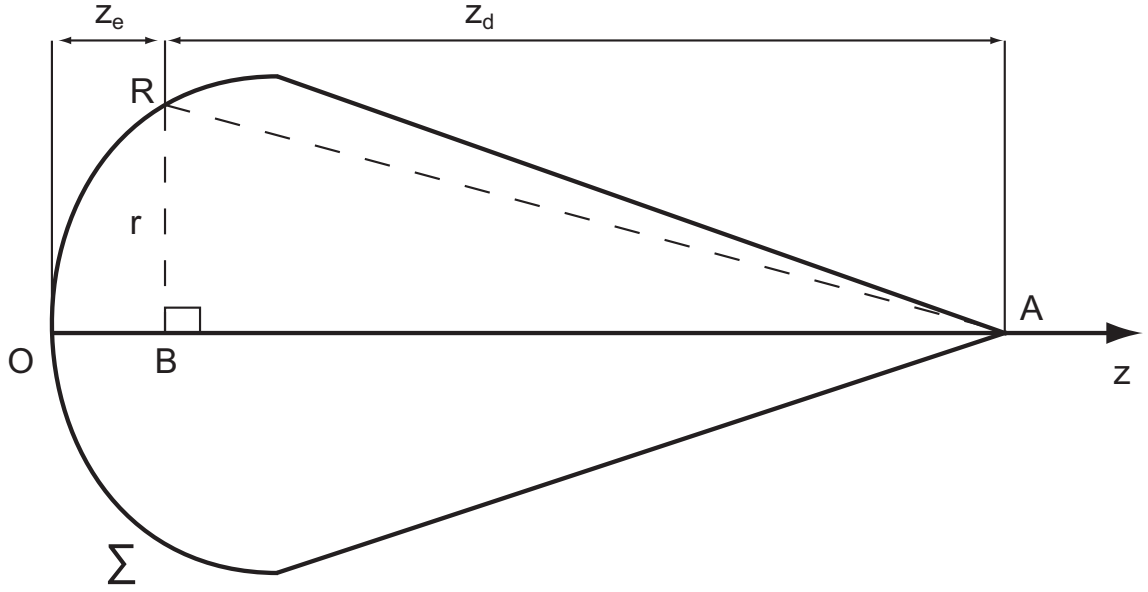


FIGURE 5.20: Schéma du front d'onde d'un faisceau ayant traversé une lentille convergente. Les échelles ne sont pas respectées, notamment  $z_d$  a été grandement réduit.

En réinjectant l'équation (5.50) dans l'équation précédente, on obtient :

$$\begin{aligned}
 f - z_e &= \sqrt{f^2 - r^2} \\
 z_e &= f - \sqrt{f^2 - r^2} \\
 &= f - \sqrt{f^2 \left(1 - \frac{r^2}{f^2}\right)} = f - f \sqrt{1 - \frac{r^2}{f^2}}
 \end{aligned}
 \tag{5.53}$$

Si le faisceau n'est pas trop focalisé, i.e.  $f \gg r$ , alors le terme  $r^2/f^2$  est petit devant 1. On applique alors un développement limité à la racine carrée de l'expression précédente :

$$z_e = f - f \left(1 - \frac{r^2}{2f^2}\right)
 \tag{5.54}$$

On obtient alors l'expression de  $z_e$  utilisée pour écrire le champ électrique traversant la lentille :

$$z_e = \frac{r^2}{2f}
 \tag{5.55}$$

De plus, le faisceau doit être assez monochromatique. En effet, toutes les longueurs d'onde ne focalisant pas de la même manière (aberration chromatique), la validité de l'expression établie ne serait pas vérifiée dans le cas d'un faisceau trop polychromatique.

## ANNEXE $\mathcal{F}$ : SÉQUENCES DE POINTS D'ARRÊT

On rappelle que l'utilisateur sub-divise l'intervalle des positions  $[r_0, r_{\max}]$ , grâce à  $y$  points-supports (et donc  $y - 1$  sous-intervalles). Plusieurs façons de faire existent, correspondant à plusieurs types de séquences de points-supports  $\zeta$  rassemblant tous les points-supports  $\zeta_i$ ,  $i = 1 : y$ . Les séquences de points-supports sont strictement croissantes, et c'est en prenant en compte la multiplicité de chacun des points-supports qu'on obtient des séquences de nœuds  $t$ . Chaque type de séquence est plus ou moins judicieux à employer selon les études menées. Nous en présentons quelques-unes ici.

### Séquence linéaire :

La séquence linéaire est la plus simple de toutes, divisant l'espace en sous-intervalles égaux :

$$h = \frac{r_{\max} - r_0}{y - 1} \quad (5.56)$$

$$\zeta_i = r_0 + h \times (i - 1), \quad i = 1 : y \quad (5.57)$$

### Séquence exponentielle :

La séquence exponentielle permet d'entasser plus ou moins les points d'arrêt en  $r_0$ , selon la valeur donnée au paramètre  $b$  :

$$\alpha = \frac{r_{\max} - r_0}{e^{b(y-1)/y} - 1} \quad (5.58)$$

$$\zeta_i = r_0 + \alpha \times \left[ e^{b(y-1)/y} - 1 \right], \quad i = 1 : y \quad (5.59)$$

Si  $b = 0$ , on retrouve la séquence linéaire.

Ainsi, cette séquence permet d'obtenir plus facilement une bonne résolution des états localisés proches du noyau. Dans les études menées au cours de cette thèse, nécessitant également une bonne résolution des états du continuum, le choix s'est donc porté sur la séquence linéaire.

---

## Séquence sinus :

La séquence sinus permet d'entasser les points d'arrêt, soit en  $r_0$  (quand  $\alpha$  tend vers 0), soit en  $r_{\max}$  (quand  $\alpha$  tend vers l'infini). L'accumulation a lieu aux deux extrémités lorsque  $\alpha$  prend une valeur intermédiaire ( $\alpha \simeq 2$ ).

$$\varsigma_i = r_0 + r_{\max} \times \sin\left(\frac{\pi}{2} \left[ \frac{i-1}{y-1} \right]^\alpha\right), \quad i = 1 : y \quad (5.60)$$

## ANNEXE $\mathcal{G}$ : PSEUDO-POTENTIELS ET ÉTATS DE CŒUR

### Argon :

Ce pseudo-potentiel a été établi par Muller et Kooiman [6], et possède l'avantage de ne pas dépendre du moment angulaire. Il s'écrit :

$$\begin{aligned} V_0(r) &= -\frac{1}{r} [1 + A \exp(-Br) + (17 - A) \exp(-Cr)] \\ V_C(r) &= F \left[ \left( \frac{R_x - r}{G} \right)^5 - \left( \frac{R_x - r}{G} \right)^4 \right] \\ V_{\text{Ar}}(r) &= V_0 + \begin{cases} V_C(r) & r < R_x \\ 0 & r \geq R_x \end{cases} \end{aligned} \quad (5.61)$$

avec :

$$\begin{aligned} A &= 5.4 \\ B &= 1 \\ C &= 3.682 \\ F &= 2.5 \\ G &= 2.01785 \\ R_x &= 3 \end{aligned}$$

---

## Krypton :

Ce pseudo-potentiel provient du travail de Cloux *et al.* [7], et possède l'avantage de ne pas dépendre du moment angulaire. Il s'écrit :

$$\begin{aligned} A &= 5.25 \\ B &= 0.902 \\ C &= 3.64 \\ V_{\text{Kr}}(r) &= -\frac{1}{r} \left[ 1 + A \exp(-Br) + (35 - A) \exp(-Cr) \right] \end{aligned} \quad (5.62)$$

## Suppression de l'état de cœur : pseudo-potentiels modifiés

Pour supprimer l'état de cœur qui subsistait avec les pseudo-potentiels  $V_{\text{Ar}}$  et  $V_{\text{Kr}}$ , la correction suivante leur a été ajoutée :

$$V_{g,m} = V_g + \begin{cases} 50 \left( \frac{1}{r} - \frac{1}{R_x} \right)^2 & \text{si } l = 0 \text{ et } r < R_x \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (5.63)$$

où  $g$  signifie soit Ar soit Kr, et où  $R_x$  vaut 3.11 dans le cas de l'Argon, et 3.35 dans le cas du Krypton.

Ces pseudo-potentiels modifiés dépendent alors du moment angulaire, et les calculs les utilisant nécessitent d'être effectués dans la jauge des longueurs.

## ANNEXE $\mathcal{H}$ : SOURCE LASER FEMTOSECONDE

La source laser utilisée pour les expériences menées au cours de cette thèse a été achetée auprès de Spectra Physics, modèle Solstice. L'oscillateur laser, nommé Mai Tai et utilisant des cristaux Ti :saphire, génère les impulsions ultra-courtes par blocage de modes. A cet endroit de la chaîne laser, l'impulsion est encore peu énergétique.

Par la suite, on amplifie l'impulsion initiale : le problème est que l'on augmente par la même son éclaircissement, ce qui pourrait s'avérer fâcheux au moment où elle rencontrera les différents éléments optiques présents au sein de la source laser, qui risqueraient alors d'être endommagés. On utilise alors la technologie dite CPA [8] (pour **Chirped Pulse Amplification**).

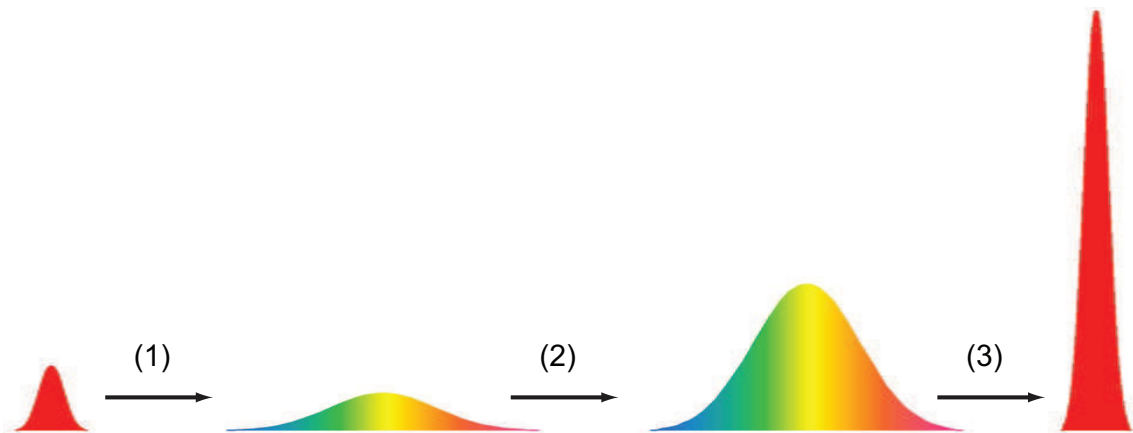


FIGURE 5.21: Schéma de principe de la technique de Chirped Pulse Amplification.

---

Le schéma de principe est représenté sur la figure 5.21, et le détail est le suivant :

- ❑ *étape (1)* : l'impulsion qui sort de l'oscillateur femtoseconde est étirée temporellement. L'impulsion est alors chirpée : on conserve ainsi son énergie tout en diminuant son éclairement pic.
- ❑ *étape (2)* : on procède à l'amplification de l'impulsion obtenue à l'étape précédente.
- ❑ *étape (3)* : on re-comprime l'impulsion, pour retrouver une durée semblable à celle initiale et un éclairement pic élevé.

Les caractéristiques de la source laser utilisée sont recensées dans le tableau 5.6.

| Caractéristique          | Valeur          |
|--------------------------|-----------------|
| Durée d'impulsion (FWHM) | $\simeq 100$ fs |
| Energie                  | 3 mJ            |
| Cadence                  | 1 kHz           |
| Longueur d'onde centrale | 796 nm          |
| Rayon du faisceau        | $\simeq 3$ mm   |

TABLE 5.6: Caractéristiques de la source laser utilisée lors des expériences présentées dans cette thèse.

## ANNEXE $\mathcal{J}$ : FORMULE PAR FITTING DU GAIN SUR L'IONISATION

La formule présentée dans le tableau 5.7 et publiée dans [9], permet l'évaluation numérique du gain sur l'ionisation dû à la présence de TH, dans l'argon à  $\lambda_0 = 800$  nm.

|                         |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        |
|-------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| <b>Formule</b>          | $\ln(G_f) = A \times \ln \{1 + \alpha \times [\mu + B \times \nu + C \times \xi + P \times (D \times \sigma + E \times \tau)]\}$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |
| $\mu(\alpha, \beta)$    | $262.5\alpha^4 + 103.95\alpha + 15\beta$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |
| $\nu(\alpha, \beta)$    | $1 + \alpha \times [3.2\beta^5 + \beta^4(-40\alpha + 2.667) + \beta^3(-571.43\alpha^2 + 150\alpha + 0.05) + 2.77]$<br>$+ \beta \times (-1.25\beta^5 - 0.5\beta^4 + 1.111\beta^3 - \beta^2 - \beta + 0.4)$                                                                                                                                                                                                                                                              |
| $\xi(\alpha, \beta)$    | $\alpha^3\beta^2 + \alpha^2\beta$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |
| $\sigma(\alpha, \beta)$ | $\alpha \times (\beta^2 + 1.54) + 0.222\beta$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |
| $\tau(\alpha, \beta)$   | $\alpha \times (\alpha^5 - 0.5\alpha^4 + 0.25\alpha^3 + 50\alpha^2 + 3.33 \cdot 10^{-3}\alpha + 1) +$<br>$\beta \times (5\alpha^5 - 5\alpha^4 + 15\alpha^3 + \alpha)$                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |
| $A(I_0)$                | $1.15 + 0.1333 \times \exp\left[-\left(\frac{I_0 - 88.51}{8.16}\right)^2\right] - 0.1994 \times \exp\left[-\left(\frac{I_0 - 67.64}{8.319}\right)^2\right]$<br>$+ 0.175 \times \left[1 - \operatorname{erf}\left(\frac{I_0 - 36}{5}\right)\right]$                                                                                                                                                                                                                     |
| $B(I_0)$                | $3.397 \times \exp\left[-\left(\frac{I_0 - 15.66}{2.779}\right)^2\right] + 23.38 \times \exp\left[-\left(\frac{I_0 - 21.14}{5.895}\right)^2\right]$<br>$+ 12.67 \times \exp\left[-\left(\frac{I_0 - 29.1}{8.357}\right)^2\right] - 4076 \times \exp\left[-\left(\frac{I_0 - 66.03}{15.72}\right)^2\right]$<br>$+ 4084 \times \exp\left[-\left(\frac{I_0 - 66.07}{15.81}\right)^2\right] - 23.51 \times \exp\left[-\left(\frac{I_0 - 80.32}{10.44}\right)^2\right] - 5$ |

---

| Formula  | $\ln(G_f) = A \times \ln \{1 + \alpha \times [\mu + B \times \nu + C \times \xi + P \times (D \times \sigma + E \times \tau)]\}$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |
|----------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| $C(I_0)$ | $508.2 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 11.82}{3.84} \right)^2 \right] + 261.9 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 15.13}{1.418} \right)^2 \right]$ $+ 54.47 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 20}{2} \right)^2 \right] + 154.7 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 29.3}{3.25} \right)^2 \right]$ $+ 616.1 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 43}{5} \right)^2 \right] + 599.2 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 62.46}{6.409} \right)^2 \right]$ $+ 164.6 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 82.89}{12.54} \right)^2 \right] + 10.81 \times I_0 - 1097.31$ |
| $D(I_0)$ | $1.184 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 48.54}{42.39} \right)^8 \right] - 1$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |
| $E(I_0)$ | $\frac{1}{4} \times [-4.175 \cdot 10^{-8} \times (I_0 - 53.42)^5 + 1]$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |
| $P(I_0)$ | $365.23 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 12.32}{4.89} \right)^2 \right] + 533.56 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 22.72}{8.22} \right)^2 \right]$ $+ 1145.1 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 53.94}{15.56} \right)^2 \right] - 860.14 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 54.89}{11.55} \right)^2 \right]$ $- 165.08 \times \exp \left[ - \left( \frac{I_0 - 60.19}{3.45} \right)^2 \right]$                                                                                                                                                                             |

TABLE 5.7: Formule complète établie pour le logarithme népérien du gain sur l'ionisation, induit par la présence de troisième harmonique, dans le cas où un champ fondamental à  $\lambda_0 = 800$  nm interagit avec de l'argon.

**ANNEXE  $\mathcal{J}$  : GAIN SUR L'IONISATION DÛ À  
D'AUTRES HARMONIQUES QUE LA TROISIÈME :**

Après avoir détaillé nos résultats, au cours du deuxième Chapitre, dans le cas où une certaine proportion de troisième harmonique était présente avec son champ fondamental, on peut se demander si les conclusions auxquelles nous sommes arrivés sont généralisables à d'autres cas de figure ou non. Afin de répondre à cette question, nous allons donc tout d'abord envisager le cas où le champ fondamental est accompagné de sa seconde harmonique (SH), et non de sa TH. Ensuite, nous étudierons un cas un peu plus complexe, où le fondamental interagira cette fois-ci avec le système en compagnie de deux de ses harmoniques.

## Ajout de seconde harmonique :

### Point de vue du champ électrique :

Considérons un champ électrique dépendant du temps, composé d'un champ fondamental accompagné de sa seconde harmonique :

$$E(t) = E_0 f(t) \Re \left\{ \exp [i (\omega_0 t + \varphi_0)] + \sqrt{R_2} \exp [i (2\omega_0 t + \varphi_2)] \right\} \quad (5.64)$$

où  $R_2$  désigne le ratio en éclairnement de SH, que l'on distingue de  $R_3$ , celui pour la TH. On définit également le terme  $\alpha_2 = \sqrt{R_2} / (1 + \sqrt{R_2})$ .

La figure 5.22(a) représente les deux champs constituant le champ électrique total, pour le cas où  $\varphi_2 = \pi$  ( $R_2 = 100\%$ , et  $\varphi_0 = \pi/2$ ). On peut en déduire que l'on ne pourra pas définir de phases constructive/destructive cette fois-ci. En effet, dans ce cas, les pics du champ fondamental sont alternativement en phase et en opposition de phase avec le champ de SH. Cette valeur de  $\varphi_2$  constitue donc à la fois la phase constructive et la phase destructive. De plus, si l'on trace la valeur maximale du champ en fonction de la phase  $\varphi_2$  (l'allure est la même quelque soit la valeur du ratio), ce qui est fait sur la figure 5.22(b), on observe que c'est malgré tout lorsque  $\varphi_2 = \pi$  que le champ total atteint sa valeur maximale possible. C'est donc pour cette valeur de la phase  $\varphi_2$  que l'on s'attend à voir la plus forte influence sur l'ionisation.

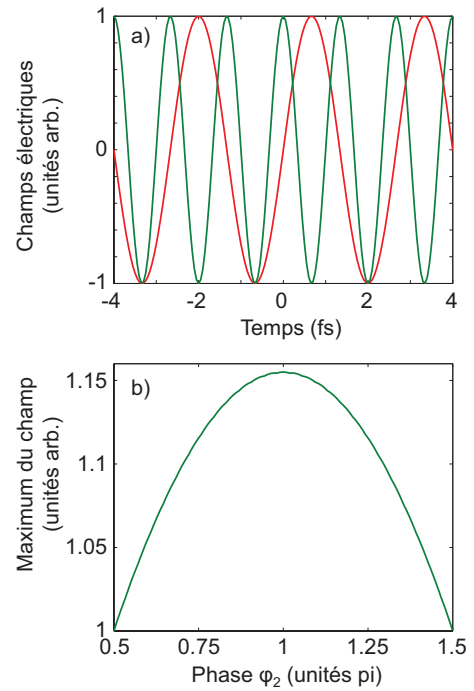


FIGURE 5.22: (a) : champs électriques de fondamental (en rouge) et de SH (en vert). (b) : maximum du champ en fonction de  $\varphi_2$ .

---

### Point de vue des interférences quantiques :

Les interférences quantiques sont à l'origine de la forte augmentation de l'ionisation dans le cas fondamental+TH. Rappelons qu'une condition nécessaire pour que de telles interférences prennent place est que les différents chemins d'ionisation mis en jeu partent et arrivent sur les mêmes états.

Dans le cas fondamental+SH, ces derniers sont représentées sur la figure 5.23. On peut alors constater immédiatement que le mécanisme d'interférences quantiques ne peut pas avoir lieu dans ce cas. En effet, pour que les états de départ et d'arrivée des transitions soient les mêmes au niveau de chaque voie d'ionisation possible, la parité du nombre de photons alors impliqués diffère d'une voie à l'autre : dans notre exemple, un nombre pair de photons est associé aux voies mono-couleur, tandis que la voie mixant les deux couleurs implique un nombre impair de photons. D'autre part, la règle de sélection s'appliquant à chaque photon de la transition est  $\Delta l = \pm 1$  (lorsque la polarisation du champ électrique est linéaire), en d'autres termes : partant d'un état de départ, si un état d'arrivée est atteignable avec un nombre pair de photons, alors ce même état ne l'est nécessairement pas avec un nombre impair de photons. La parité différente du nombre de photons de chaque voie d'ionisation empêche par conséquent les interférences quantiques de prendre place, et aucun gain significatif sur l'ionisation n'est donc attendu.

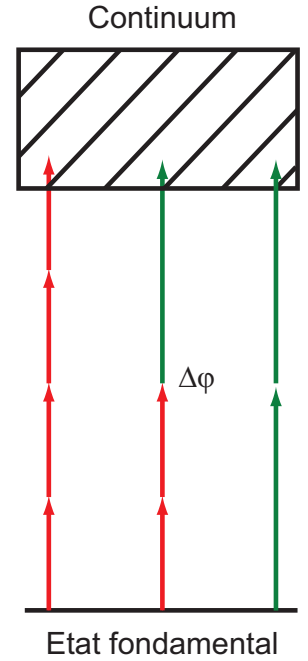


FIGURE 5.23: Différentes voies quantiques d'ionisation impliquant des photons de fondamental et de SH.

### Résultats de simulations :

La figure 5.24 représente les cartes de gain en fonction de  $\alpha_2$  et  $\varphi_2$ , obtenues dans ce cas où le champ fondamental est accompagné de sa SH : (a) lorsque  $I_0 = 20 \text{ TW.cm}^2$ , et (b) lorsque  $I_0 = 93 \text{ TW.cm}^2$ .

On peut alors observer, comme il était attendu, que la phase pour laquelle le gain sur l'ionisation est maximal est bien  $\varphi_2 = \pi$ . Cependant, l'écart avec les valeurs liées aux autres phases est en fait très ténu, notamment en régime de champ faible, indiquant que l'ionisation ne dépend pratiquement pas de la phase entre les champs fondamental et de SH dans ce cas.

En régime de champ fort, la différence est déjà un peu plus évidente, en accord avec [10] qui observait que la dépendance en phase était notable pour des éclaircissements correspondants à ce

régime d'ionisation, sensible au maximum du champ électrique. On note également qu'aucun couple  $(R_2, \Delta\varphi_2)$  ne permet de diminuer l'ionisation dans cette situation.

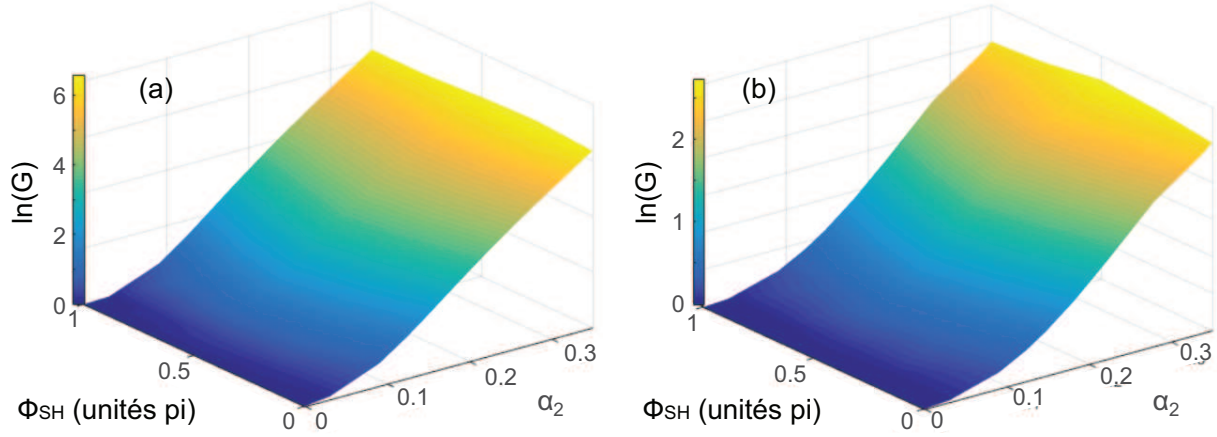


FIGURE 5.24: Cartes de gain pour le cas où le fondamental est accompagné de sa SH : (a)  $I_0 = 20 \text{ TW.cm}^2$ , (b)  $I_0 = 93 \text{ TW.cm}^2$ .

### Ajout de cinquième harmonique :

Nous venons de le voir, ajouter une harmonique d'ordre pair au champ total ne permet pas de faire intervenir le processus d'interférences quantiques entre différentes voies d'ionisation. Dans ce cas, on n'observe aucune dépendance vis-à-vis de la phase entre les champs fondamental et de SH, indiquant que le gain sur l'ionisation provient dans ce cas uniquement du simple fait d'injecter un champ supplémentaire.

Nous allons à présent reprendre notre champ fondamental accompagné de sa TH, et nous allons lui ajouter l'harmonique d'ordre impair immédiatement supérieur. Le champ total sera ainsi composé de trois champs : le fondamental, sa TH et sa cinquième harmonique (5H). En effet, ayant traité le cas fondamental+TH, il est légitime de se demander ce qu'il advient de l'effet étudié si l'on monte un peu plus haut dans les ordres des harmoniques.

### Définition du champ électrique :

Similairement à ce qui a été fait précédemment, on définit un champ dépendant du temps, somme de trois champs partageant la même enveloppe :

$$E(t) = E_0 f(t) \Re \left\{ \exp[i(\omega_0 t + \varphi_0)] + \sqrt{R_3} \exp[i(3\omega_0 t + \varphi_3)] + \sqrt{R_5} \exp[i(5\omega_0 t + \varphi_5)] \right\} \quad (5.65)$$

où  $R_5$  désigne le ratio en éclairnement de cinquième harmonique (5H), et  $\varphi_5$  sa phase.

---

Une nouvelle phase relative est alors impliquée :  $\Delta\varphi_5$ , la phase relative entre les champs fondamental et de 5H, valant  $\varphi_5 - 5\varphi_0$ . De plus, si les paramètres de phases relatives seront ici encore traduits à travers leur cosinus [ $\beta = \cos(\Delta\varphi_3)$  et  $\beta_5 = \cos(\Delta\varphi_5)$ ],  $R_3$  ne sera lui plus exprimé à travers  $\alpha$ . En effet, toujours en nous basant sur la définition du champ électrique par [?], nous allons définir les paramètres  $\alpha_3$  et  $\alpha_5$ , exprimant à travers eux respectivement  $R_3$  et  $R_5$  :

$$\alpha_3 = \frac{\sqrt{R_3}}{1 + \sqrt{R_3} + \sqrt{R_5}} \quad (5.66)$$

$$\alpha_5 = \frac{\sqrt{R_5}}{1 + \sqrt{R_3} + \sqrt{R_5}} \quad (5.67)$$

Avec cette façon d'écrire le champ électrique,  $\alpha_3$  (respectivement  $\alpha_5$ ) dépend en effet de  $R_5$  (respectivement de  $R_3$ ).

### Calcul des cartes de gain :

En plus des trois paramètres identifiés dans le cas fondamental+TH, deux nouveaux paramètres associés au champ de 5H ont donc une influence sur la valeur du gain :  $R_5$  et  $\Delta\varphi_5$ . Au moment de calculer les cartes de gain associées à un tel champ électrique, ceci constitue une difficulté supplémentaire, notamment au niveau du temps de calcul. En effet, si l'on choisit de faire varier ces deux nouveaux paramètres d'un nombre de points équivalent à ce qui a été fait précédemment (i.e. douze points selon  $R_5$  et cinq points selon  $\Delta\varphi_5$ ), c'est alors pas moins de 350400 simulations individuelles qui sont impliquées, représentant un temps de calcul d'une année! Bien sur, nous avons opté pour une diminution de ce nombre de simulations nécessaires :

- ❑ l'éclairement pic du champ fondamental  $I_0$  prit ainsi seulement 7 valeurs différentes (sans compter la simulation en champ faible), toujours entre 5 TW.cm<sup>-2</sup> et 93 TW.cm<sup>-2</sup>,
- ❑ les phases relatives  $\Delta\varphi_3$  et  $\Delta\varphi_5$  prirent chacune 9 valeurs différentes, entre 0 et  $\pi$ . En effet, pour le besoin de l'interpolation des cartes de gain, le nombre de points selon les phases relatives devait être augmenté dans ce cas.
- ❑ le ratio  $R_3$  prit 6 valeurs différentes ( $R_3 = 0$  exclu), entre 0.05 % et 10 %,
- ❑ le ratio  $R_5$  prit 7 valeurs différentes ( $R_5 = 0$  exclu), entre 0.001 % et 1 %.

Ainsi discrétisée, la carte de gain requiert désormais 28512 simulations individuelles pour sa construction. En utilisant la possibilité de calculs en parallèle de Matlab sur un cluster de calcul, le temps de calcul d'une telle carte de gain est alors ramené à environ un mois! Le gaz dans lequel l'étude a été menée est l'argon.

### Cas particulier où $R_3 = 0$ :

Commençons par traiter le cas où la cinquième harmonique est seule à accompagner son fondamental. Nous pourrions alors exhiber les ressemblances (et/ou les différences) dans l'influence de la 5H sur l'ionisation par rapport à celle de la TH.

Ainsi, la figure 5.25 représente le gain sur l'ionisation (due au champ fondamental seul) induit par la 5H (en violet), que l'on peut alors comparer avec le gain induit par la TH (en bleu), lorsque les deux champs mis en jeu sont : (a) en opposition de phase, (b) en phase. Le champ fondamental est ici à un éclairement de  $65 \text{ TW.cm}^{-2}$ .

On observe tout d'abord que lorsque la phase relative entre champs fondamental et de 5H est destructive, la cinquième harmonique est, de la même manière que la troisième, capable d'entraver l'ionisation.

De plus, à ratio en éclairement identique (et donc, à éclairement identique), la cinquième harmonique est à l'origine d'une valeur de gain sur l'ionisation plus importante que la TH. En effet, un photon de 5H est plus énergétique qu'un photon de TH, ce qui explique l'observation précédente. Toutefois, notons qu'il est, en pratique, plus difficile d'atteindre un éclairement donné de 5H, que d'atteindre cette même valeur d'éclairement pour de la TH.

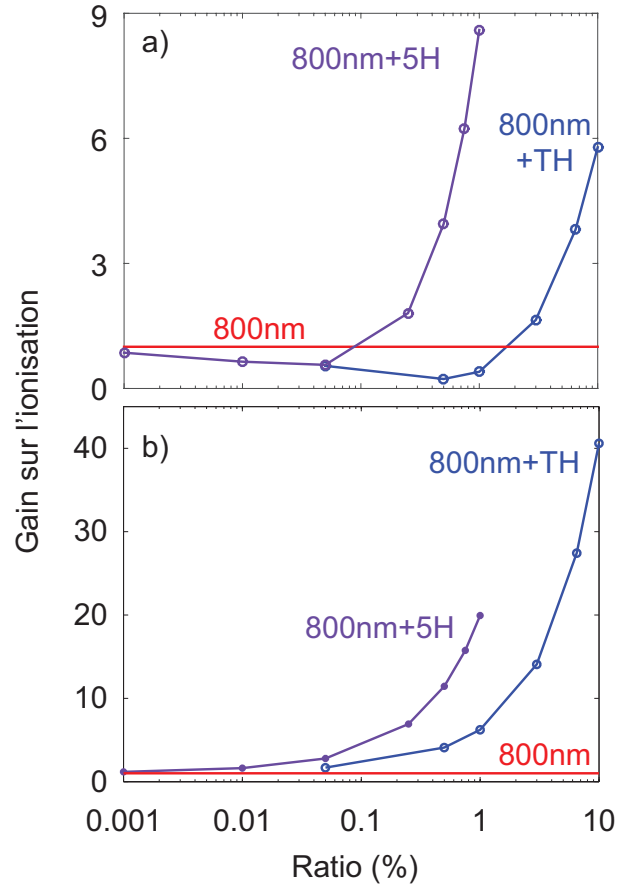


FIGURE 5.25: Gain sur l'ionisation en fonction des ratios en éclairement de TH (en bleu) et de 5H (en violet), lorsqu'ils sont : (a) en opposition de phase, (b) en phase, avec le fondamental. La droite rouge représente le cas « fondamental seul » (i.e.  $G = 1$ ).

La figure 5.26 présente l'une des cartes de gain que l'on obtient lorsque la TH est absente du champ total. De la même façon que pour le cas de la TH, on représente le logarithme népérien du gain en fonction de  $\alpha_5$  et de  $\Delta\varphi_5$  (ici, nous avons ajouté des points par rapport à la carte obtenue avec les paramètres décrits au paragraphe précédent).

On constate que l'allure de la carte obtenue est très similaire à celles présentées au niveau de la partie précédente de ce Chapitre. L'ajustement des cartes de gain de cette ionisation à trois couleurs, qui n'a pas été effectué au cours de cette thèse, pourra donc être envisagé.

Toutefois, un tel ajustement impliquera deux paramètres supplémentaires, induisant autant de nouveaux degrés de liberté au niveau du gain. La tâche sera donc plus complexe.

Bien sur, à partir du moment où l'on tient compte de la présence de cinquième harmonique, il est évident qu'il faut en faire de même avec la troisième. Le prochain paragraphe aborde ce cas.

### Présentation de résultats :

Notre champ électrique total, somme de trois champs liés entre eux par des valeurs particulières de fréquences, peut emprunter plusieurs voies quantiques pour parvenir à ioniser l'atome. Le tableau 5.8 présente ces différentes voies d'ionisation, ainsi que les champs électriques que nous avons injectés lors des différentes résolutions de l'E.S.D.T. : nous obtenions alors la probabilité d'ionisation  $\rho$  dans chaque, dans le but de calculer la contribution relative de chaque voie au processus total.

On commence par traiter les simulations correspondantes aux champs mono-couleur. Ayant obtenu la valeur des probabilités d'ionisation  $\rho$  associées, nous pouvons ensuite déduire les contributions des voies à deux couleurs, et ainsi de suite. Dans le cas présent, le nombre de paramètres en fonction desquels le gain sur l'ionisation varie commence à devenir élevé, et complexifie encore un peu plus le problème.

Il s'agira donc ici de présenter seulement quelques résultats intéressants plutôt que d'étudier toutes les influences possibles, ce qui équivaldrait à établir un long catalogue de figures. De plus, nous avons fait varier les ratios de TH et de 5H jusqu'à des valeurs plutôt élevées, ce qui n'a pas nécessairement d'utilité si l'on veut traiter des situations réalistes. Ainsi, nous nous cantonnerons à des valeurs plus proches de ce qui est attendu pour les facteurs de conversion

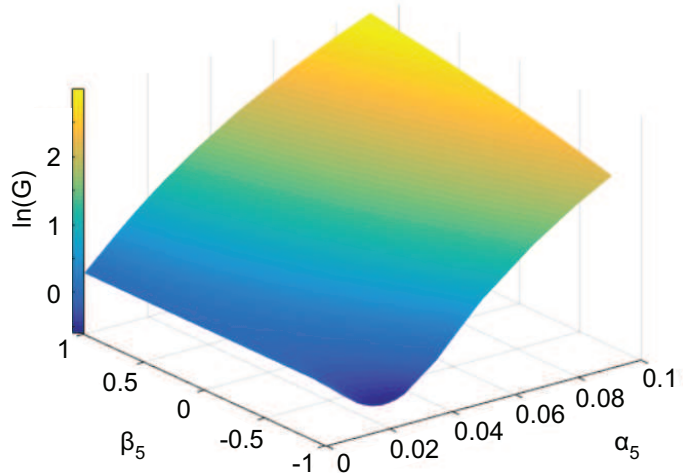


FIGURE 5.26: Carte de gain sur l'ionisation induit par la 5H seule, à  $I_0 = 65 \text{ TW.cm}^{-2}$ .

correspondants à ces harmoniques : autour de 1 % pour la TH, et environ 100 fois moins pour la cinquième harmonique [11, 12, 13, 14], même si certaines conditions de pression permettent d'atteindre un facteur de conversion pour la 5H proche de celui de la TH.

| Voie d'ionisation | Champ électrique  | Expression de $\rho$ associée                                                                                 |
|-------------------|-------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 800 seul          | $E_1$             | $\rho = \rho_{800}$                                                                                           |
| TH seule          | $E_3$             | $\rho = \rho_{TH}$                                                                                            |
| 5H seule          | $E_5$             | $\rho = \rho_{5H}$                                                                                            |
| 800 + TH          | $E_1 + E_3$       | $\rho = \rho_{800} + \rho_{800+TH} + \rho_{TH}$                                                               |
| 800 + 5H          | $E_1 + E_5$       | $\rho = \rho_{800} + \rho_{800+5H} + \rho_{5H}$                                                               |
| TH + 5H           | $E_3 + E_5$       | $\rho = \rho_{TH} + \rho_{TH+5H} + \rho_{5H}$                                                                 |
| 800 + TH + 5H     | $E_1 + E_3 + E_5$ | $\rho = \rho_{800} + \rho_{TH} + \rho_{5H} + \rho_{800+TH} + \rho_{800+5H} + \rho_{TH+5H} + \rho_{800+TH+5H}$ |

TABLE 5.8: Calcul de la contribution relative de chaque voie d'ionisation au processus total d'ionisation.

Sept voies d'ionisation possibles sont ainsi identifiées, dont les contributions correspondantes sont :  $\rho_{800} = \rho_{(1)}$ ,  $\rho_{TH} = \rho_{(2)}$ ,  $\rho_{5H} = \rho_{(3)}$ ,  $\rho_{800+TH} = \rho_{(4)}$ ,  $\rho_{800+5H} = \rho_{(5)}$ ,  $\rho_{TH+5H} = \rho_{(6)}$  et  $\rho_{800+TH+5H} = \rho_{(7)}$ . Parmi celles-ci, certaines peuvent, si elles impliquent (au moins) deux couleurs, entraver l'ionisation. Compte tenu de cela, nous définissons le poids relatif  $\mathcal{R}_{(a)}$  de chaque voie dans le processus total d'ionisation :

$$\mathcal{R}_{(a)} = \frac{|\rho_{(a)}|}{\sum_{j=1}^7 |\rho_{(j)}|}, \quad a = 1, \dots, 7 \quad (5.68)$$

Cette nouvelle variable ne peut, quant à elle, pas être négative.

Nous représentons ainsi la valeur de  $\mathcal{R}$  sur la figure 5.27, dans le cas où  $I_0 = 65 \text{ TW.cm}^{-2}$ ,  $R_3 = 1 \%$ ,  $R_5 = 0.001 \%$  et  $\Delta\varphi_3 = \pi$  (a-b),  $\Delta\varphi_3 = 0$  (c-d). Les courbes en traits pleins correspondent à des contributions relatives positives, tandis que les courbes en traitillés correspondent à des contributions relatives négatives.

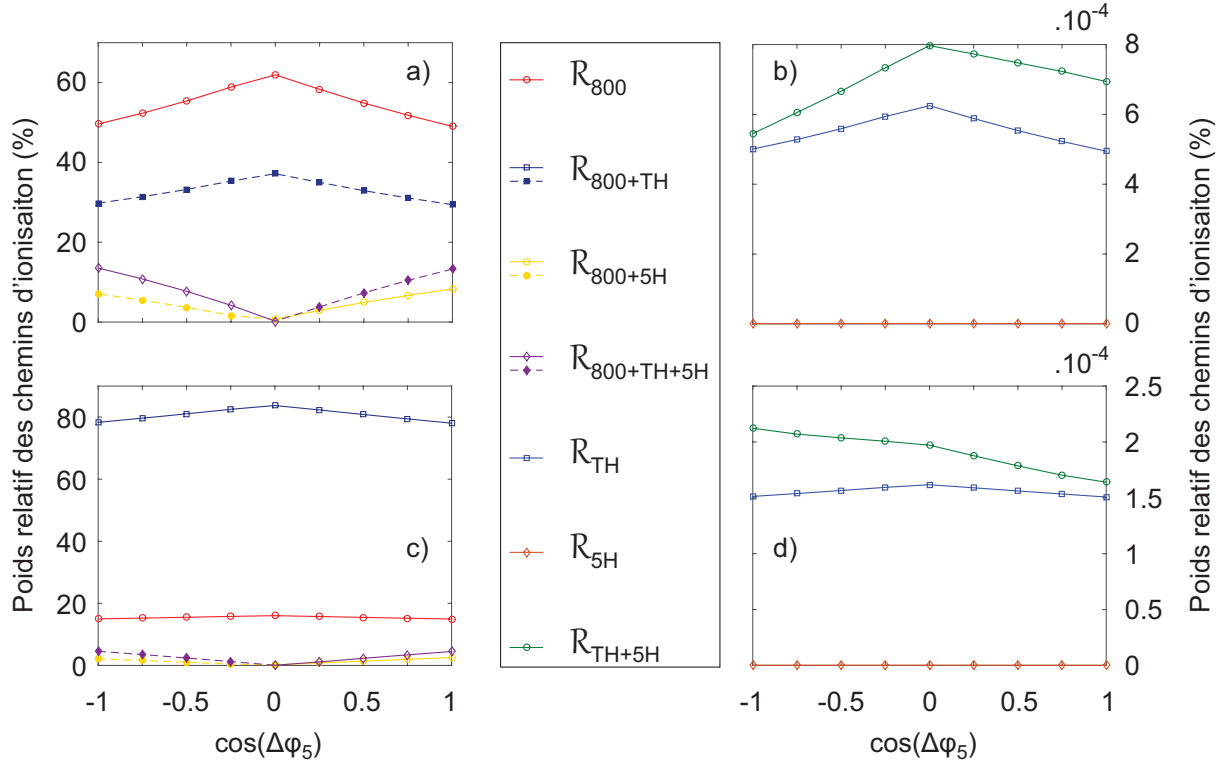


FIGURE 5.27: Poids relatif des sept différents chemins d'ionisation en fonction de la phase relative  $\Delta\varphi_5$  :  $I_0 = 65 \text{ TW.cm}^{-2}$ ,  $R_3 = 1 \%$ ,  $R_5 = 0.001 \%$  et  $\Delta\varphi_3 = \pi$  (a-b),  $\Delta\varphi_3 = 0$  (c-d).

Commençons par remarquer que les chemins d'ionisation n'impliquant pas de photons à 800 nm ont un poids relatif minime, voire négligeable. Egalement, on retrouve les conclusions faites précédemment pour le cas « fondamental + TH » : si le champ de TH est en phase avec son fondamental, le poids relatif du chemin mixant les deux sortes de photons est celui qui prédomine ( $\approx 80 \%$  !); s'ils sont en opposition de phase, c'est le chemin fondamental seul qui est majoritaire (entre 50 % et 60 %), le poids relatif du chemin « mix » chutant à moins de 40 % dans ce cas. De plus, le chemin mixant photons de 800 nm et de sa 5H se comporte comme attendu vis-à-vis de la phase relative  $\Delta\varphi_5$  : si le cosinus de celle-ci est positif, le chemin augmente l'ionisation ; sinon, il l'entrave. Par ailleurs, plus la phase relative est « extrême », plus le poids relatif est important, celui-ci demeurant toutefois inférieur à 10 % dans ce cas.

Enfin, venons-en au chemin impliquant les trois types de photons : il dépend donc de deux phases relatives. Trois cas de figure peuvent alors être distingués. Le premier est évident : lorsque les champs de TH et de 5H sont en phase avec leur fondamental [figure 5.27(c),  $\cos(\Delta\varphi_5) > 0$ ], le chemin produit un gain sur l'ionisation.

Le deuxième met en jeu le champ fondamental en phase avec l'un et en opposition avec

---

l'autre [figure 5.27(c),  $\cos(\Delta\varphi_5) < 0$  et figure 5.27(a),  $\cos(\Delta\varphi_5) > 0$ ] : le chemin s'oppose alors à l'ionisation.

Le dernier cas [figure 5.27(a),  $\cos(\Delta\varphi_5) < 0$ ] est plus surprenant : les champs de TH et de 5H sont tous les deux en opposition de phase avec leur fondamental (et donc en phase entre eux) ; pourtant, en empruntant cette voie, on aboutit à un gain sur l'ionisation.

## ANNEXE $\mathcal{K}$ : NOTATION DE RACAH

Les configurations atomiques des états fondamentaux de l'argon et du krypton, les deux gaz rares étudiés lors de la partie 1 du Chapitre 4, s'écrivent :

$$\text{Ar} : 1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 \quad (5.69)$$

$$\text{Kr} : [\text{Ar}] 4s^2 3d^{10} 4p^6 \quad (5.70)$$

Les états excités de ces mêmes gaz, quant à eux, sont écrits en fonction des nombres quantiques  $n$  et  $l$  de l'électron excité, lié à un cœur ionique ( $\text{Ar}^+$  et  $\text{Kr}^+$ , respectivement).

La notation de Racah [15] prend en compte le couplage  $j l$ . Dans ce cas, le moment angulaire total du cœur ionique  $J_c$  est couplé avec le moment orbital  $l$  de l'électron excité. Le moment cinétique résultant de ce couplage est noté  $K$ , et est à son tour couplé avec le spin  $s$  de l'électron, pour donner le moment cinétique total  $J$ . Les différentes valeurs que peut prendre  $J$  sont comprises entre  $l - s$  et  $l + s$ .

Les cœurs ioniques de ces deux gaz sont donc caractérisés par les deux mêmes valeurs de  $J_c$ , à savoir  $1/2$  et  $3/2$  (avec, pour les deux gaz,  $l = l_c = 1$  et  $s = s_c = 1/2$ ). La notation de Racah écrit alors chaque état sous la forme :

$$\left( (2s_c+1) L_{cJ_c} \right) n l [K]_J^o \quad (5.71)$$

où les indices “c” font référence au cœur ionique de l'élément.  $J$  est le nombre quantique du moment cinétique total de l'état, et l'exposant “o” est relié à la parité de l'état : il est présent si elle est impaire, et absent si elle est paire. Le cœur ionique est alors soit  $^2P_{1/2}$  soit  $^2P_{3/2}$ .

Du fait qu'il n'y ait que deux valeurs possibles, il est envisageable de simplifier quelque peu l'écriture des états excités : on supprime la parenthèse, traitant du cœur ionique, et soit on prime la valeur de  $l$  si le cœur ionique est  $^2P_{1/2}$  (plus énergétique), soit on ne touche à rien de plus si celui-ci est  $^2P_{3/2}$ .



## ANNEXE $\mathcal{L}$ : DÉPENDANCES DE L'EFFET LASER DANS LE KRYPTON :

### Variation de la pression de gaz dans la cellule :

Les raies d'émission pouvant être fortement influencées, au niveau de leur amplitude comme de leur forme, par la pression de gaz utilisée, une étude a été menée en fonction de ce paramètre. Au cours de celle-ci, les mesures ont été réalisées en employant une pompe polarisée tantôt horizontalement, tantôt circulairement. De plus, les investigations ont été restreintes aux seules raies d'émission identifiées auparavant, sans chercher à vérifier si d'autres raies émergeaient ailleurs ou non – en effet, plus la région spectrale à faire analyser par l'OSA est large, plus le relevé prend du temps –. Toutefois, dans un souci de ne pas faire un catalogue, nous ne montrons ici qu'un nombre limité de résultats expérimentaux.

Ainsi, la figure 5.28 représente la raie à 758.95 nm (a) et à 1362.79 nm (b) en fonction de la pression, lorsque la pompe est centrée à  $\lambda_0 = 300$  nm. On rappelle que, dans ce cas, utiliser une pompe polarisée circulairement empêche le pompage à trois photons des états du krypton à l'origine des raies d'émission observées pour cette région spectrale.

Une première constatation peut alors être faite : ce n'est pas à la valeur de pression de 1 bar, utilisée lors de toutes les autres études, que ces deux raies sont les plus intenses. En effet, la première – et plus précisément, son ailette – est maximale en intensité pour une pression de 0.2 bar, tandis que la deuxième l'est pour 0.05 bar. On peut également noter que, à partir de 0.03 bar – pression à laquelle commencent à apparaître les raies d'émission –, l'évolution de ces dernières vis-à-vis de ce paramètre n'est pas linéaire, ni en amplitude ni en forme. Il en est de même pour les raies à 760.36 nm et à 1678.97 nm, obtenues pour une pompe centrée à  $\lambda_0 = 302.5$  nm et représentées sur la figure 5.29. Notamment, la deuxième subit un fort décalage vers le rouge, ainsi qu'un élargissement spectral, à mesure que la pression augmente. Pour expliquer cela, une hypothèse peut être avancée : dès lors que les raies sont émises, elles ne se propageraient pas linéairement, ce qui aboutirait à cette dépendance observée vis-à-vis de la pression.

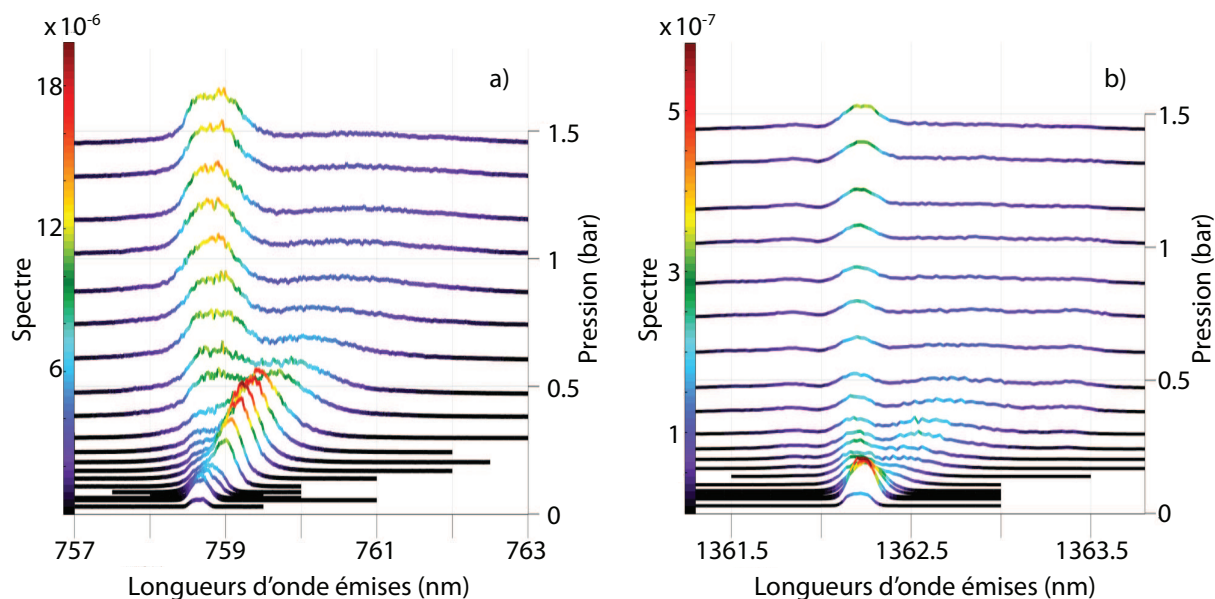


FIGURE 5.28: Spectres des raies d'émission à 758.95 nm (a) et à 1362.79 nm (b) en fonction de la pression de gaz dans la cellule. La pompe est centrée à  $\lambda_0 = 300$  nm, et polarisée horizontalement.

On observe également que lorsque la pompe est polarisée circulairement [figures 5.29(b) et 5.29(d)], la raie d'émission à 760.36 nm (ainsi que son ailette) est renforcée en amplitude, mais n'est pas élargie par rapport au cas où la pompe est polarisée horizontalement [figures 5.29(a) et 5.29(c)]. Au contraire, la deuxième raie, en plus d'être amplifiée, voit ses ailettes fortement déplacées spectralement, comme ceci a été noté précédemment.

### Lumière rétro-propagée :

A l'aide d'un miroir dichroïque placé sur le trajet de notre faisceau laser avant qu'il n'entre dans la cellule, la lumière qui se rétro-propageait, passant au travers de celui-ci, pouvait ensuite être collectée par la fibre, pour être ensuite analysée par l'OSA.

La figure 5.30 superpose les spectres de celle-ci avec ceux de la lumière se propageant vers l'avant. Ces derniers sont issus d'une autre série de mesures que celle dont les résultats sont présentés sur les figures 4.11 et 4.13, mais sont très similaires.

Notons toutefois que les spectres, et plus précisément leurs amplitudes relatives, ne peuvent pas pour autant être comparés en l'état, du fait que la lumière n'était pas collectée de la même manière dans les deux cas, et donc que l'injection dans la fibre n'était pas optimisée identiquement.

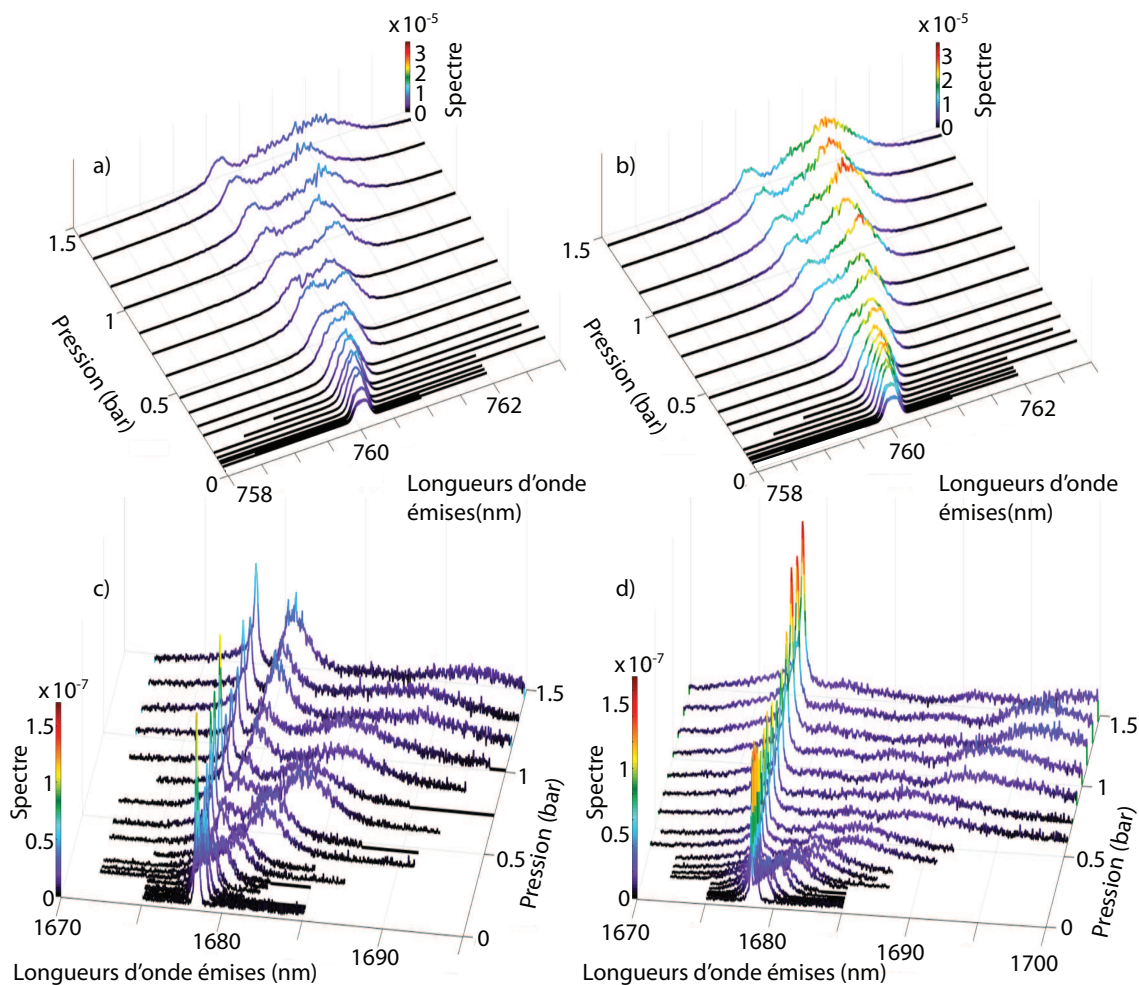


FIGURE 5.29: Spectres des raies d'émission à 760.36 nm (a)-(b) et à 1678.97 nm (c)-(d) en fonction de la pression de gaz dans la cellule. La pompe est centrée à  $\lambda_0 = 302.5$  nm, et polarisée horizontalement (colonne de gauche) et circulairement (colonne de droite).

Les résultats montrent que toutes les raies d'émission (nous avons « découvert » les raies à 1476.27 nm et 1800.72 nm seulement après cette étude, ce qui explique leur absence ici) sont retrouvées dans cette situation. De plus, les profils de ces raies sont assez différents de ceux obtenus pour le cas où la lumière se propage vers l'avant. Ainsi, les raies d'émission qui possédaient une ou plusieurs ailettes sur la figure 4.11 (à savoir 758.95 nm, 760.36 nm, 1678.97 nm et 1689.51 nm) l'(les) ont perdu ici. On peut également noter la nature bien plus piquée autour de la longueur d'onde centrale de celles-ci. La raie à 877.92 nm est également dans ce cas-ci, tout comme les raies à 1362.61 nm et 1363.79 nm, ces deux dernières étant même désormais parfaitement distinguables l'une de l'autre. La raie à 1443.07 nm présente globalement le même profil

en émission avant et arrière. Remarquons enfin que, quand la pompe est centrée à  $\lambda_0 = 305.9$  nm et contrairement au cas où elle est centrée à  $\lambda_0 = 300$  nm, la raie à 811.51 nm est plus intense que sa concurrente à 810.66 nm, alors que celle-ci était toujours identifiée comme dominante dans toutes les études présentées jusqu'ici, semblant ainsi indiquer que le processus ne fonctionnerait pas tout à fait de la même manière pour ces deux longueurs d'onde de pompe.

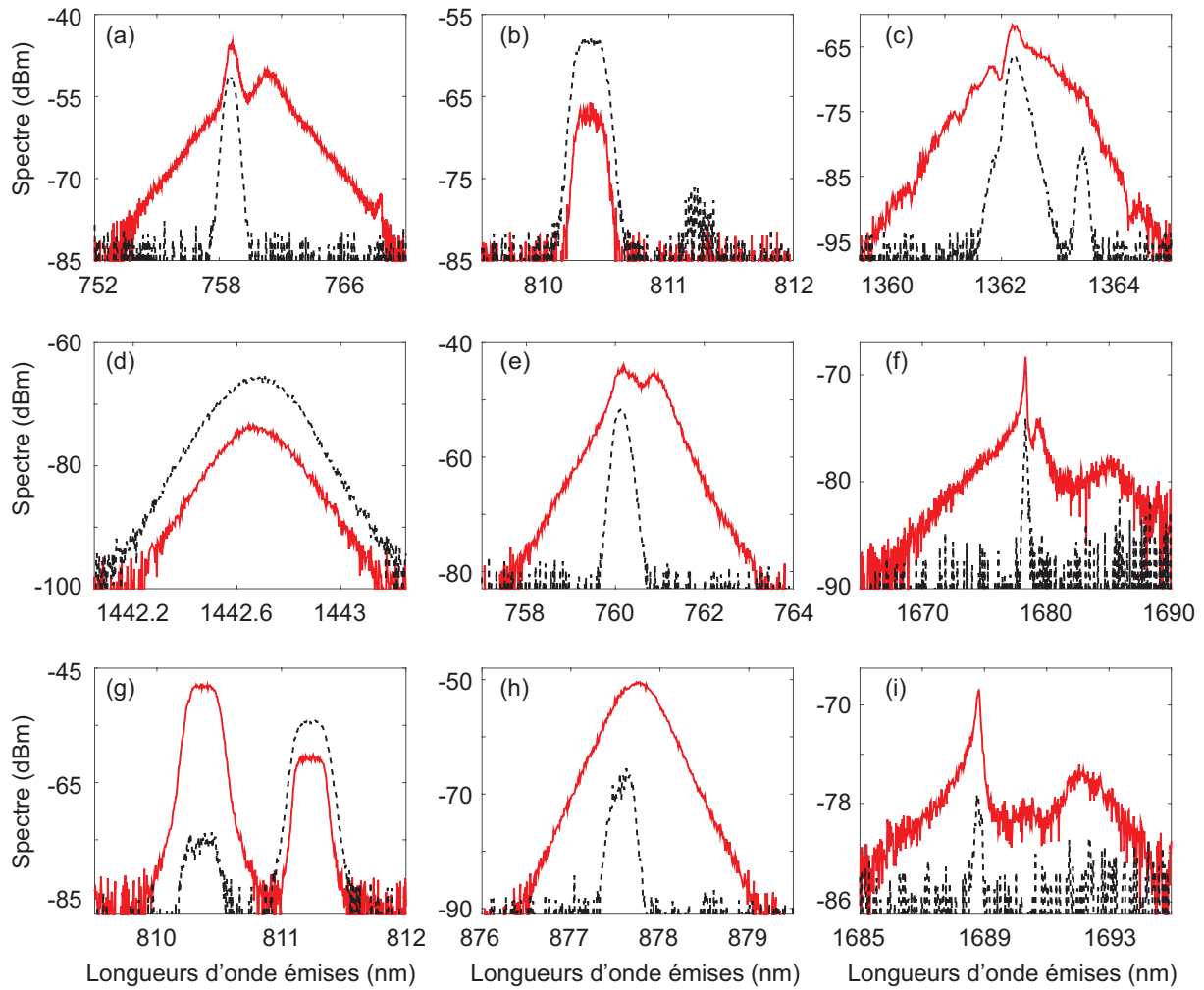


FIGURE 5.30: Comparaison des spectres de lumière se propageant vers l'avant (trait plein rouge) avec ceux de lumière se propageant vers l'arrière (traitillés noirs), pour une longueur d'onde de pompe : de 300 nm (a)-(d), de 302.5 nm (e)-(f) et de 305.9 nm (g)-(i).

---

### Polarisation des raies d'émission :

Au moyen d'un polariseur placé juste avant l'entrée de la lumière dans la fibre, et orienté soit parallèlement soit perpendiculairement à la polarisation de la pompe, une étude sur la polarisation des raies d'émission a été menée. Elle nous est utile pour apporter la preuve que les observations que nous avons faites précédemment concernent effectivement un phénomène d'émission stimulée, et non de la fluorescence. Dans ce dernier cas, la raie d'émission ne serait en effet pas polarisée. Bien sur, outre le changement d'orientation du polariseur, toutes les conditions expérimentales (énergie, pression de gaz, injection dans la fibre, ..) demeurent inchangées durant l'étude. La polarisation que nous sommes censés observer pour une raie d'émission dépend de la transition qui lui correspond, notamment au niveau de son  $\Delta J$ . En particulier, les règles de transition suivantes entrent en vigueur :

$$\Delta J = 0 \longleftrightarrow \perp \quad (5.72)$$

$$\Delta J = \pm 1 \longleftrightarrow // \quad (5.73)$$

En appliquant ces règles à toutes les raies d'émission que nous avons observées [cf figure 4.10], le tableau 5.9 peut alors être construit, et recense la polarisation attendue pour chacune des raies, classée selon la région spectrale (pour la pompe) dans laquelle (lesquelles) elles apparaissent. Commençons par le premier étage de l'effet laser. La polarisation des raies d'émission qui lui correspondent dépend du  $\Delta J$  associé à la transition en question, mais également du pompage. En effet, pour un pompage à trois photons amenant l'électron dans un état<sup>4</sup> de  $J = 2$  ( $J = 0 \rightarrow J = 1$ , puis  $J = 1 \rightarrow J = 1 \rightarrow J = 2$  ou  $J = 1 \rightarrow J = 2 \rightarrow J = 2$ ), on dénombre une fois  $\Delta J = 0$  (il n'y a aucune autre possibilité) et donc la raie d'émission, associée à la transition qui partira ensuite de cet état, sera polarisée perpendiculairement à la pompe – sauf si elle-même est associée à un  $\Delta J = 0$  –.

Ce cas particulier n'est applicable qu'à une seule raie d'émission observée : à 1363.79 nm, dont nous attendons alors qu'elle soit polarisée perpendiculairement à la pompe. Une autre raie du premier étage de l'effet laser est également présumée polarisée de cette manière : à 1443.07 nm, puisque associée à une transition  $J = 1 \rightarrow J = 1$  faisant suite au pompage d'un état de  $J = 1$ . Toutes les autres raies d'émission du premier étage de l'effet laser étant originaires d'états de  $J \neq 2$  d'une part, et associées à des transitions de  $\Delta J = \pm 1$  d'autre part, leur polarisation est présumée parallèle à celle de la pompe.

---

4. Pour toutes les autres valeurs possibles pour le moment cinétique total de l'état final du pompage à trois photons, le pompage ne jouera aucun rôle sur la polarisation. Pour un état final de  $J = 1$ , les possibilités sont :  $J = 0 \rightarrow J = 1 \rightarrow J = 1 \rightarrow J = 1$  et  $J = 0 \rightarrow J = 1 \rightarrow J = 2 \rightarrow J = 1$  (deux fois  $\Delta J = 0$  ou aucune fois, donc parallèle dans les deux cas). Pour un état final de  $J = 3$ , une seule possibilité :  $J = 0 \rightarrow J = 1 \rightarrow J = 2 \rightarrow J = 3$  (aucune fois  $\Delta J = 0$ , donc parallèle). Aucun état de  $J = 0$  n'est mis en jeu parmi les états de départ des transitions associées aux raies d'émission du premier étage de l'effet laser.

| Raies                          | 1362.61 | 1363.79 | 1443.07 | 1476.27 | 1678.97 | 1689.51 | 1800.72 |
|--------------------------------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|
| $\lambda_0 = 300 \text{ nm}$   | //      | $\perp$ | $\perp$ |         |         |         | //      |
| $\lambda_0 = 302.5 \text{ nm}$ |         |         |         | //      | //      |         |         |
| $\lambda_0 = 305.3 \text{ nm}$ |         |         |         |         |         | //      |         |
| Raies                          | 758.95  | 760.36  | 768.52  | 810.66  | 811.51  | 877.92  |         |
| $\lambda_0 = 300 \text{ nm}$   | //      |         | //      | $\perp$ | $\perp$ |         |         |
| $\lambda_0 = 302.5 \text{ nm}$ |         | $\perp$ |         | $\perp$ |         |         |         |
| $\lambda_0 = 305.3 \text{ nm}$ |         |         |         | $\perp$ | $\perp$ | //      |         |

TABLE 5.9: Polarisation des raies d'émission selon les règles de sélection (5.72) et (5.73) pour les différentes longueurs d'onde de pompage  $\lambda_0$ . Les cases vides correspondent : à des raies d'émissions non-observables dans la région spectrale en question pour le premier étage, et à des raies d'émissions non-observées dans la région spectrale en question pour le deuxième.

La polarisation des raies d'émission du second étage de l'effet laser, quant à elle, dépend de la polarisation des raies d'émission qui les précèdent au niveau du premier étage, ainsi bien sur que du  $\Delta J$  associé à leur propre transition. Par conséquent, les raies d'émission à 760.36 nm et 810.66 nm, toutes les deux associées à des transitions  $J = 2 \rightarrow J = 2$  (et prenant la suite de raies d'émission du premier étage polarisées parallèlement à la pompe), sont attendues comme étant polarisées perpendiculairement à la pompe.

De plus, la raie d'émission à 811.51 nm, bien qu'associée à une transition  $J = 3 \rightarrow J = 2$ , est également présumée polarisée perpendiculairement à la pompe, quelque soit la région spectrale étudiée. En effet, pour  $\lambda_0 = 300 \text{ nm}$ , seule la transition à 1363.79 nm, identifiée ci-avant comme étant polarisée perpendiculairement à la pompe, est en mesure d'amener de la population dans l'état de départ de la transition associée à cette raie (de  $J = 3$ ). Pour les deux autres régions spectrales, les transitions (non-observées) pouvant potentiellement peupler ce même état sont associées à une variation  $\Delta J = 0$  (et donc, entraînent une polarisation perpendiculaire). Enfin, dans l'hypothèse où c'est la radiation à 810.66 nm qui peuple cet état, ceci étant rendu possible par la très grande proximité en longueur d'onde de ces deux transitions ainsi que par leur état commun d'arrivée, celle-ci étant polarisée perpendiculairement à la pompe, la raie à 811.51 nm le serait par suite.

La polarisation de toutes les autres raies d'émission de ce deuxième étage de l'effet laser sont attendues parallèles à celle de la pompe.

La figure 5.31 présente les résultats obtenus pour différentes raies. Certaines manquent à l'appel, soit qu'elles n'avaient pas été « découvertes » au moment de l'étude, soit qu'il nous était impossible de statuer sur la nature de leur polarisation. De nouvelles mesures pourront être envisagées à ce propos. Quoiqu'il en soit, les résultats expérimentaux sont en très bon accord avec les prévisions théoriques, notamment pour les raies d'émission à 1443.07 nm, à 811.51 nm, à 1678.97 nm et à 877.92 nm, pour lesquelles peu de doutes subsistent quant à leur polarisation. Pour les raies à 760.36 nm et à 810.66 nm, les résultats peuvent paraître moins nets que pour les raies précédentes car le spectre relevé, lorsque le polariseur est orienté parallèlement à la polarisation de la pompe, semble relativement intense. Cependant, cette intensité apparente est davantage dû à l'échelle employée – c'est-à-dire l'échelle logarithmique qui a tendance à rapprocher nos valeurs – qu'au fait que la polarisation serait effectivement parallèle à celle de la pompe.

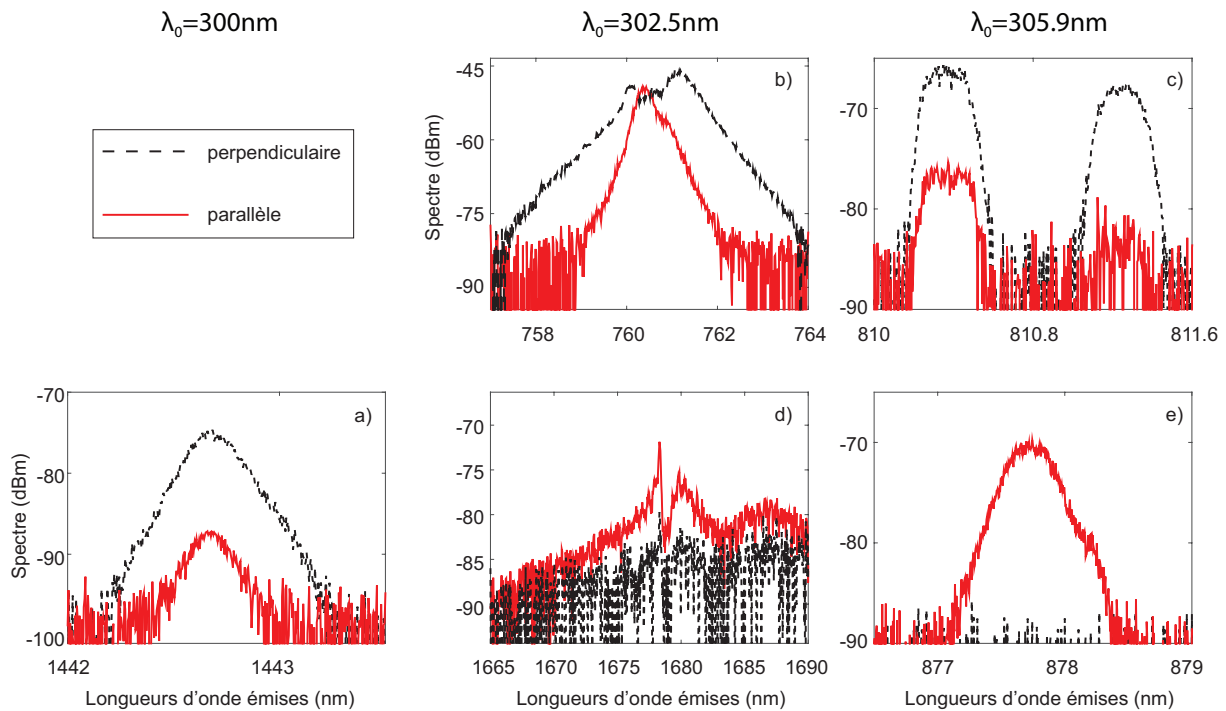


FIGURE 5.31: Polarisation des raies d'émission : à 1443.07 nm (a), à 760.36 nm (b), à 810.66 nm et à 811.51 nm (c), à 1678.97 nm (d) et à 877.92 nm (e). En rouge, lorsque le polariseur est orienté parallèle à la polarisation de la pompe ; en noir, lorsqu'il lui est perpendiculaire. La pompe est polarisée horizontalement.

### Ajout d'une impulsion sonde centrée à $\lambda_0 = 800$ nm :

La présence de deux raies d'émission à proximité de 800 nm nous a incité à mettre en place une expérience de type pompe-sonde, dont la longueur d'onde de l'impulsion sonde était fixée à cette valeur. Une étude résolue en temps de toutes les raies d'émission a donc été effectuée. En guise de sonde, une portion du faisceau issu de notre source laser était utilisée et son énergie était fixée à  $0.45 \mu\text{J}$ . L'énergie de l'impulsion pompe était cette fois-ci fixée à environ  $11 \mu\text{J}$ , et la pression de krypton dans la cellule était de 1 bar. La longueur d'onde de la pompe prenait, quant à elle, trois valeurs distinctes, qui correspondaient aux trois zones spectrales identifiées précédemment (300 nm, 302.5 nm et 305.9 nm). Toutefois, pour cette étude également, seules les raies d'émission déjà observées auparavant ont été considérées, et nous n'avons donc pas exploré d'autres régions spectrales à la recherche de potentielles raies qui émergeraient du fait de l'utilisation d'une impulsion sonde. Les faisceaux pompe et sonde s'intersectaient dans le plan horizontal avec un faible angle, et les raies d'émission étaient observées dans la direction du faisceau pompe, une fois ce dernier rejeté au moyen d'un miroir dichroïque.

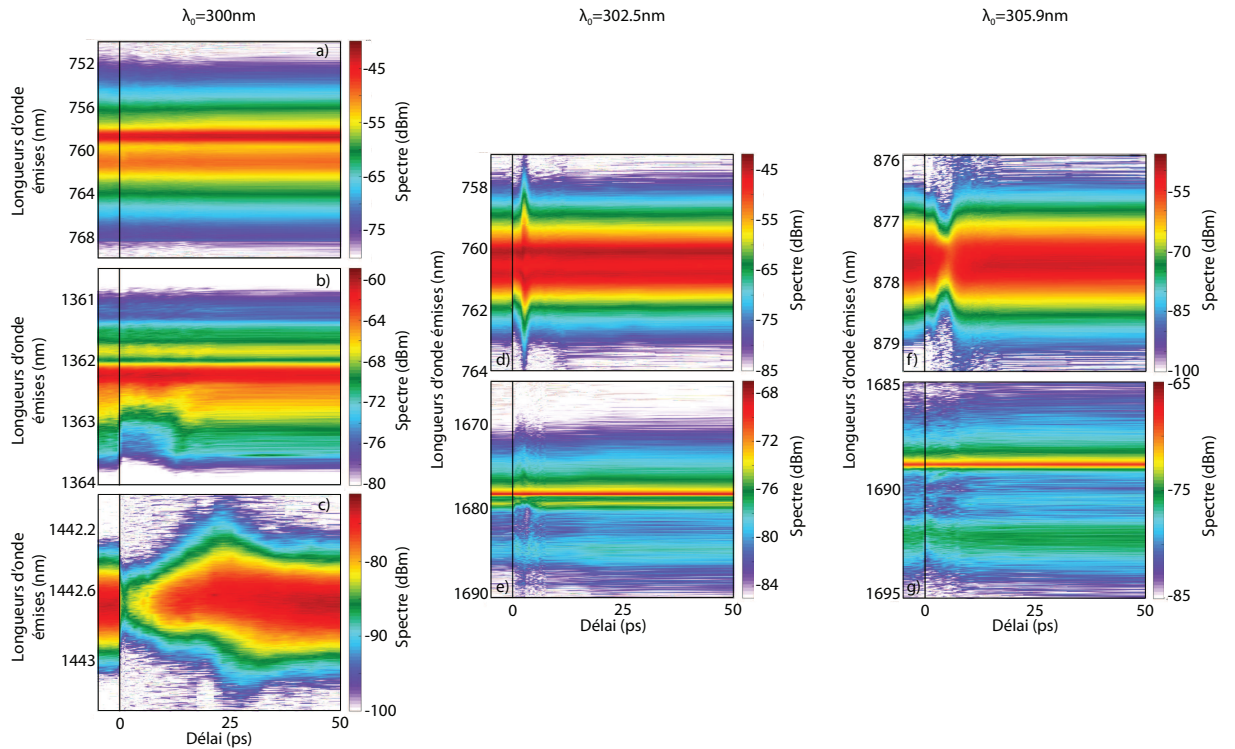


FIGURE 5.32: Spectres de raies d'émission en fonction du délai entre impulsions pompe [centrée à  $\lambda_0 = 300$  nm (a)-(c), à  $\lambda_0 = 302.5$  nm (d)-(e) et à  $\lambda_0 = 305.9$  nm (f)-(g)] et sonde.

Les résultats obtenus sont représentés en fonction du délai sur la figure 5.33 pour les raies à 810.66 nm et 811.51 nm et sur la figure 5.32 pour les autres (exceptées celles à 1476.27 nm et à 1800.72 nm, « découvertes » après cette étude). Le délai entre les deux impulsions était limité à une valeur de 190 ps par notre ligne à retard.

On peut alors constater qu'à l'exception de la raie à 758.95 nm [figure 5.32(a)], toutes les raies d'émission subissent une certaine évolution de leur profil, tant au niveau de sa largeur spectrale que de son intensité, sur une plage temporelle pouvant aller jusqu'à quelques dizaines de picosecondes. Dans chaque cas, les raies d'émission retrouvent pour les délais longs le même profil qui était le leur en l'absence de l'impulsion sonde (i.e. pour les délais négatifs), indiquant que les modifications que l'on peut observer sont dues à cette dernière.

De plus, la modification du profil spectral ne se manifeste pas de la même manière pour chaque raie d'émission. Ainsi, certaines raies peuvent voir ce dernier être « creusé », comme la raie à 1362.61 nm depuis le délai-zéro jusqu'à environ 12 ps [figure 5.32(b)], ou même disparaître entièrement, comme la raie à 1443.07 nm au moment du délai-zéro [figure 5.32(c)]. Cette dernière exhibe ensuite un comportement singulier, puisqu'elle réapparaît progressivement en s'intensifiant et en s'élargissant spectralement. Au moment où ces deux caractéristiques retrouvent des proportions semblables à celles initiales, le spectre est en fait lé-

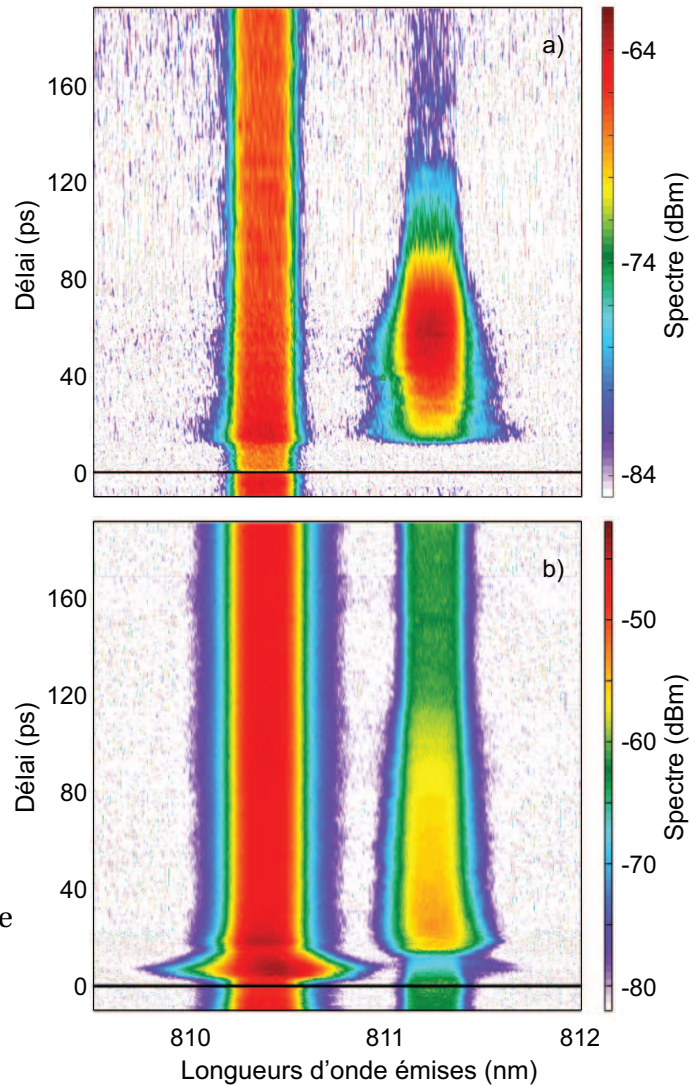


FIGURE 5.33: Spectres des raies d'émission à 810.66 nm et 811.51 nm en fonction du délai entre impulsions pompe [centrée à  $\lambda_0 = 300$  nm (a) et à  $\lambda_0 = 305.9$  nm (b)] et sonde.

---

gèrement « décalé vers la gauche », l'est ensuite « vers la droite » avant de coïncider parfaitement avec le spectre initial (i.e. sans la sonde) pour un délai d'environ 40 ps.

La modification du profil spectral peut également se traduire par l'élargissement de ce dernier, comme pour la raie à 760.36 nm [figure 5.32(d)]. Dans ce cas, la raie s'élargit de manière progressive depuis le délai-zéro jusqu'à un délai de 3 ps, pour lequel elle est plus large d'un facteur d'environ 1.5. Ce comportement peut être mis en corrélation avec celui de la raie « de l'étage supérieur » de l'effet laser [cf figure 4.10], à savoir la raie à 1678.97 nm [figure 5.32(e)]. En effet, celle-ci subit aussi un élargissement spectral (plus léger cependant) pour la même valeur de délai. On notera également que celui-ci est accompagné d'une forte atténuation des ailettes associées à cette raie.

Plutôt qu'un élargissement, la raie à 877.92 nm [figure 5.32(f)] subit pour sa part un rétrécissement spectral. Celui-ci se produit de manière progressive depuis le délai-zéro, pour atteindre son maximum à un délai d'environ 5 ps, après que la raie se soit sensiblement élargie à un délai d'environ 2 ps. Cette fois-ci, aucune corrélation ne peut être faite avec la raie « de l'étage supérieur » de l'effet laser [cf figure 5.32(g)], à savoir la raie à 1689.51 nm. Cette dernière ne semble pas affectée, tandis que ses ailettes sont très légèrement impactées, sur la même gamme de délais sur laquelle la raie précédente était modifiée.

Venons-en enfin aux raies à 810.66 nm et à 811.51 nm qui, comme nous l'avons déjà vu précédemment, sont présentes dans deux des trois zones spectrales, à savoir à 300 nm et à 305.9 nm. La première prend également (faiblement) place à 302.5 nm [cf figure 4.12(b)], mais la dépendance temporelle n'a pas été étudiée pour cette longueur d'onde de pompe.

L'étude en délai de ces deux raies correspond à une situation particulière, parce que les transitions associées partagent le même état d'arrivée et que leurs états de départ sont extrêmement proches en énergie d'une part, et d'autre part du fait que la longueur d'onde centrale de la sonde est également à proximité des longueurs d'onde de ces transitions.

La conséquence de ceci est que la dépendance temporelle de ces deux raies d'émission diffère, sur certains points, de celles des autres raies. La manifestation la plus impressionnante de cette différence concerne la raie à 811.51 nm, lorsque la longueur d'onde de pompe est centrée à 300 nm [figure 5.33(a)] : absente – ou tout du moins, non-observable – au délai-zéro, elle commence à apparaître une douzaine de picosecondes après qu'impulsions pompe et sonde aient été temporellement synchrones. Le temps avançant, cette raie s'intensifie pour atteindre son maximum à un délai d'environ 60 ps (à ce moment, elle est même plus intense que celle à 810.66 nm). L'intensité de cette raie entame ensuite une lente diminution pour finalement, au niveau de notre valeur maximale du délai, ne plus subsister que faiblement.

Ce comportement vis-à-vis du délai peut être mis en relation avec celui de sa raie « rivale », à

---

savoir celle à 810.66 nm : en effet, celle-ci est initialement (i.e. pour les délais négatifs) présente, et voit son intensité diminuer brusquement au niveau du délai-zéro – et sa largeur spectrale être également légèrement réduite –, puis rester constante sur une plage temporelle d’une douzaine de picosecondes. A la fin de celle-ci – c’est-à-dire à l’exact même moment que dans le cas de celle à 811.51 nm –, la raie s’intensifie et s’élargit, dépassant alors sensiblement le niveau de son profil initial. Par la suite, la raie y retombera progressivement, et n’évoluera plus. On notera également que la plage temporelle partant du délai-zéro jusqu’à un délai de 12 ps, que nous avons identifié au niveau de ces raies, correspond parfaitement à la plage temporelle sur laquelle la raie à 1362.61 nm (i.e. le « premier étage » correspondant à la raie à 810.66 nm) subit une modification de son profil.

Nous pouvons alors être amenés à penser, ici, que des transferts de population prennent place sur des échelles de temps bien supérieures à celle de la durée des impulsions impliquées.

L’étude menée lorsque la longueur d’onde de pompe est, cette fois-ci, centrée à  $\lambda_0 = 305.9$  nm [figure 5.33(b)] apporte des éléments qui tendent à confirmer ceci. Néanmoins, quelques différences peuvent être notées entre les résultats obtenus dans les deux situations.

Pour commencer, là où son équivalente de la zone spectrale à  $\lambda_0 = 300$  nm voyait son intensité décroître, la raie à 810.66 nm subit ici une augmentation de cette dernière en même temps qu’elle s’élargit spectralement, atteignant son maximum à un délai d’environ 7 ps. En parallèle, la raie à 811.51 nm, initialement présente cette fois-ci, voit son intensité diminuer tandis que son spectre subit pour sa part un léger élargissement, dont on notera qu’il s’effectue uniquement « vers la droite ». A un délai d’environ 14 ps, cette raie d’émission, à l’image de son équivalente de la zone spectrale à  $\lambda_0 = 300$  nm, s’intensifie fortement et dépasse largement son niveau initial. Le maximum est atteint pour un délai d’environ 26 ps, avant que ce comportement ne s’inverse et que la raie ne tende lentement à retrouver son profil initial autour d’un délai d’une valeur de 125 ps. Un léger élargissement spectral accompagne cette intensification de la raie d’émission, de manière proportionnelle à celle-ci. Dans le même temps, la raie à 810.66 nm, après son élargissement spectral à 7 ps, revient bien plus rapidement à son profil initial, avec tout de même un léger « rebond » à un délai d’environ 19 ps.

Les observations que nous faisons ici paraissent donc indiquer, comme pouvaient le suggérer leur état commun et leur très grande proximité en énergie, que ces deux transitions sont très « connectées » l’une à l’autre, mais qu’elles ne semblent toutefois pas l’être de la même manière en fonction de la valeur que prend la longueur d’onde de pompe, en accord avec les conclusions issues de l’étude de la lumière rétro-propagée.



## **ANNEXE $\mathcal{M}$ : INDICES DE RÉFRACTION NON-LINÉAIRES À $\lambda_0 = 400\text{ nm}$ DANS LE KRYPTON :**

Les coefficients présentés dans le tableau 5.10, et publiés dans [16], ont été ajustés lors de la dernière étude du Chapitre 4, et permettent l'évaluation numérique de la polarisation associée à l'interaction d'un champ fondamental centré à  $\lambda_0 = 400\text{ nm}$  et de sa troisième harmonique avec du krypton.

| $k \backslash n_i$ | $n_{2\text{SPM}, \omega_0}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{TW}^{-1})$                       | $n_{4\text{SPM}}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^4 \cdot \text{TW}^{-2})$  | $n_{2\text{R}}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{TW}^{-1})$       | $n_{4\text{R}_1}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^4 \cdot \text{TW}^{-2})$     |
|--------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|
| 0                  | $2.92 \cdot 10^{-7} - 4.88i \cdot 10^{-10}$                                                                   | $3.45 \cdot 10^{-9} + 7.27i \cdot 10^{-12}$                                    | $1.82 \cdot 10^{-6} - 2.37i \cdot 10^{-9}$                                        | $-8.84 \cdot 10^{-8} - 1.33i \cdot 10^{-9}$                                       |
| 1                  | $2.23 \cdot 10^{-8}$                                                                                          | $2.05 \cdot 10^{-8}$                                                           | $1.12 \cdot 10^{-6} + 1.77i \cdot 10^{-8}$                                        | $-2.69 \cdot 10^{-8} + 1.70i \cdot 10^{-9}$                                       |
| 2                  | $9.66 \cdot 10^{-9} - 3.92i \cdot 10^{-9}$                                                                    | $-3.17 \cdot 10^{-10}$                                                         | $1.35 \cdot 10^{-6} + 2.83i \cdot 10^{-7}$                                        | $-7.83 \cdot 10^{-8} - 3.01i \cdot 10^{-8}$                                       |
| 3                  | 0                                                                                                             | 0                                                                              | $-6.07 \cdot 10^{-8} - 5.67i \cdot 10^{-9}$                                       | $9.52 \cdot 10^{-8} + 1.26i \cdot 10^{-8}$                                        |
| $k \backslash n_i$ | $n_{4\text{R}_2}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^4 \cdot \text{TW}^{-2})$                                 | $n_{6\text{R}_1}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^6 \cdot \text{TW}^{-3})$  | $n_{6\text{R}_2}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^6 \cdot \text{TW}^{-3})$     | $n_{2\text{XPM}}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{TW}^{-1})$     |
| 0                  | $-8.91 \cdot 10^{-8} - 8.99i \cdot 10^{-10}$                                                                  | $1.14 \cdot 10^{-9} + 2.48i \cdot 10^{-10}$                                    | $1.09 \cdot 10^{-9} + 2.14i \cdot 10^{-10}$                                       | $-1.07 \cdot 10^{-5} + 9.61i \cdot 10^{-7}$                                       |
| 1                  | $4.81 \cdot 10^{-8} + 1.77i \cdot 10^{-9}$                                                                    | $6.81 \cdot 10^{-10} - 7.26i \cdot 10^{-10}$                                   | $-7.06 \cdot 10^{-10} - 6.10i \cdot 10^{-10}$                                     | $8.42 \cdot 10^{-6} + 1.70i \cdot 10^{-6}$                                        |
| 2                  | $-4.33 \cdot 10^{-8} + 1.19i \cdot 10^{-8}$                                                                   | $1.76 \cdot 10^{-9} + 1.32i \cdot 10^{-9}$                                     | $9.60 \cdot 10^{-10} + 1.77i \cdot 10^{-11}$                                      | $-4.13 \cdot 10^{-6} + 8.36i \cdot 10^{-6}$                                       |
| 3                  | $5.59 \cdot 10^{-8} + 1.31i \cdot 10^{-9}$                                                                    | $-3.38 \cdot 10^{-9} + 2.16i \cdot 10^{-10}$                                   | $1.90 \cdot 10^{-10} + 1.13i \cdot 10^{-9}$                                       | $2.86 \cdot 10^{-6} + 1.15i \cdot 10^{-5}$                                        |
| $k \backslash n_i$ | $n_{4\text{SXPM}}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^4 \cdot \text{TW}^{-2})$                                | $n_{6\text{SXPM}}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^6 \cdot \text{TW}^{-3})$ | $n_{2\text{THG}}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{TW}^{-1})$     | $n_{4\text{THG}}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^4 \cdot \text{TW}^{-2})$     |
| 0                  | $1.27 \cdot 10^{-7} - 4.64i \cdot 10^{-8}$                                                                    | $1.72 \cdot 10^{-9} + 1.28i \cdot 10^{-9}$                                     | $1.74 \cdot 10^{-6} + 2.89i \cdot 10^{-9}$                                        | $-7.80 \cdot 10^{-8} + 3.54i \cdot 10^{-10}$                                      |
| 1                  | $-7.35 \cdot 10^{-8} - 1.74i \cdot 10^{-7}$                                                                   | $9.51 \cdot 10^{-12} + 3.10i \cdot 10^{-9}$                                    | $1.41 \cdot 10^{-6} - 1.00i \cdot 10^{-7}$                                        | $-4.68 \cdot 10^{-8} + 3.31i \cdot 10^{-8}$                                       |
| 2                  | $5.69 \cdot 10^{-8} - 1.51i \cdot 10^{-7}$                                                                    | $-1.07 \cdot 10^{-11} + 2.13i \cdot 10^{-9}$                                   | $3.39 \cdot 10^{-6} - 1.78i \cdot 10^{-7}$                                        | $-1.90 \cdot 10^{-7} - 1.30i \cdot 10^{-8}$                                       |
| 3                  | $-1.79 \cdot 10^{-7} + 5.32i \cdot 10^{-10}$                                                                  | $9.32 \cdot 10^{-10} - 7.48i \cdot 10^{-9}$                                    | $-1.54 \cdot 10^{-5}$                                                             | $6.43 \cdot 10^{-7}$                                                              |
| $k \backslash n_i$ | $n_{6\text{THG}}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^6 \cdot \text{TW}^{-3})$                                 | $n_{8\text{THG}}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^8 \cdot \text{TW}^{-4})$  | $n_{10\text{THG}}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^{10} \cdot \text{TW}^{-5})$ | $n_{12\text{THG}}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^{12} \cdot \text{TW}^{-6})$ |
| 0                  | $6.70 \cdot 10^{-10} - 1.78i \cdot 10^{-10}$                                                                  | $7.36 \cdot 10^{-12} + 2.55i \cdot 10^{-11}$                                   | $-1.05 \cdot 10^{-13} - 4.54i \cdot 10^{-13}$                                     | $2.40 \cdot 10^{-16} + 2.24i \cdot 10^{-15}$                                      |
| 1                  | $3.04 \cdot 10^{-9} - 3.39i \cdot 10^{-9}$                                                                    | $-1.02 \cdot 10^{-10} + 8.46i \cdot 10^{-11}$                                  | $1.31 \cdot 10^{-12} - 8.19i \cdot 10^{-13}$                                      | $-5.61 \cdot 10^{-15} + 2.81i \cdot 10^{-15}$                                     |
| 2                  | $7.00 \cdot 10^{-9} + 3.30i \cdot 10^{-9}$                                                                    | $-1.16 \cdot 10^{-10} - 1.21i \cdot 10^{-10}$                                  | $8.25 \cdot 10^{-13} + 1.51i \cdot 10^{-12}$                                      | $-2.03 \cdot 10^{-15} - 6.27i \cdot 10^{-15}$                                     |
| 3                  | $-1.03 \cdot 10^{-8}$                                                                                         | $-4.73 \cdot 10^{-14}$                                                         | $1.20 \cdot 10^{-12}$                                                             | $-6.89 \cdot 10^{-15}$                                                            |
|                    | $n_{2\text{SPM}, 3\omega_0}^{(k)} \text{ (fs}^k \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{TW}^{-1}) = 7.92 \cdot 10^{-7}$ |                                                                                |                                                                                   |                                                                                   |

TABLE 5.10: Indices de réfraction non-linéaires du krypton à  $\lambda_0 = 400 \text{ nm}$ , obtenus grâce à des calculs *ab initio*.

- 
- 
- [1] P. Febvre, R. Taillet and L. Villain,  
*Dictionnaire de physique* (2013). Cité p.[189](#).
- [2] P. Béjot, C. Bonnet, V. Boutou, and J.-P. Wolf,  
*Opt. Express* **15**, 13295 (2007), *Laser noise compression by filamentation at 400 nm in argon*. Cité p.[191](#).
- [3] A.M. Perelomov, V.S. Popov, and M.V. Terent'ev,  
*JETP* **50**, 1393 (1966), *IONIZATION OF ATOMS IN AN ALTERNATING ELECTRIC FIELD*. Cité p.[193](#).
- [4] A.M. Perelomov, V.S. Popov, and M.V. Terent'ev,  
*JETP* **51**, 309 (1967), *IONIZATION OF ATOMS IN AN ALTERNATING ELECTRIC FIELD : II*. Cité p.[193](#).
- [5] L.V. Keldysh,  
*JETP* **20**, 1307 (1965), *IONIZATION IN THE FIELD OF A STRONG ELECTROMAGNETIC WAVE*.  
Cité p.[193](#).
- [6] H.G. Muller, and F.C. Kooiman,  
*Phys. Rev. Lett.* **81**, 1207 (1998), *Bunching and Focusing of Tunneling Wave Packets in Enhancement of High-Order Above-Threshold Ionization*. Cité p.[205](#).
- [7] F. Cloux, B. Fabre, and B. Pons,  
*Phys. Rev. A* **91**, 023415 (2015), *Semiclassical description of high-order-harmonic spectroscopy of the Cooper minimum in krypton*. Cité p.[206](#).
- [8] G.A. Mourou, T. Tajima, and S.V. Bulanov,  
*Rev. Mod. Phys.* **78**, 309 (2006), *Optics in the relativistic regime*. Cité p.[207](#).
- [9] J. Doussot, P. Béjot, G. Karras, F. Billard, and O. Faucher,  
*J. Phys. B* **48**, 184005 (2015), *Phase control of two-color filamentation*. Cité p.[209](#).
- [10] K.J. Schafer, and K.C. Kulander,  
*Phys. Rev. A* **45**, 8026 (1992), *Phase-dependent effects in multiphoton ionization induced by a laser field and its second harmonic*. Cité p.[213](#).
- [11] K. Kosma, S.A. Trushin, W.E. Schmid, and W. Fuss,  
*Opt. Lett.* **33**, 723 (2008), *Vacuum ultraviolet pulses of 11 fs from fifth-harmonic generation of a Ti:sapphire laser*. Cité p.[218](#).
- [12] M. Kolesik, E.M. Wright, and J.V. Moloney,  
*Opt. Lett.* **35**, 2550 (2010), *Femtosecond filamentation in air and higher-order nonlinearities*.  
Cité p.[218](#).

- 
- [13] P. Béjot, E. Hertz, B. Lavorel, J. Kasparian, J.-P. Wolf, and O. Faucher, *Opt. Lett.* **36**, 828 (2011), *From higher-order Kerr nonlinearities to quantitative modeling of third and fifth harmonic generation in argon*. Cité p.[218](#).
- [14] J. Ni, J. Yao, B. Zeng, W. Chu, G. Li, H. Zhang, C. Jing, S.L. Chin, Y. Cheng, and Z. Xu, *Phys. Rev. A* **84**, 063846 (2011), *Comparative investigation of third- and fifth-harmonic generation in atomic and molecular gases driven by midinfrared ultrafast laser pulses*. Cité p.[218](#).
- [15] G. Racah, *Phys. Rev.* **61**, 537 (1942), *On a New Type of Vector Coupling in Complex Spectra*. Cité p.[221](#).
- [16] J. Doussot, P. Béjot, and O. Faucher, *Phys. Rev. A* **94**, 013805 (2016), *Two-color resonant filamentation in gases*. Cité p.[235](#).
-

---

---

**SUR L'ETUDE DU PROCESSUS DE FILAMENTATION LASER  
DANS LES GAZ RARES EN MODELE DE CHAMP FORT :  
DES INFLUENCES DE LA GENERATION DE TROISIEME HARMONIQUE  
ET DE LA PROXIMITE DE RESONANCES DANS L'ULTRAVIOLET**

**Résumé :** Le processus de filamentation découle de la balance dynamique de plusieurs effets linéaires et non-linéaires, permettant l'auto-stabilisation du faisceau laser sur des distances de propagation significativement supérieures à celles prédites par la théorie des faisceaux gaussiens. Cette thèse s'attache à décrire ce phénomène dans les gaz rares en modèle dit de champ fort, par opposition au modèle usuel, utilisé dans le cadre de la théorie des perturbations et s'appuyant sur l'approximation du champ faible. L'influence des harmoniques, jusqu'ici négligée, est alors revisitée tant au niveau microscopique qu'à l'échelle d'une propagation. Il est montré, expérimentalement et par l'appui de simulations numériques, qu'il suffit d'une faible proportion de troisième harmonique pour que la dynamique de la filamentation soit fortement impactée, notamment à travers le processus d'ionisation. Egalement, la proximité d'une résonance peut mener à de fortes modifications du mécanisme d'auto-guidage : lorsqu'un champ fondamental centré à 400 nm et sa troisième harmonique interagissent avec du krypton, il est montré que le processus de modulation de phase croisée est renforcé et qu'il peut alors endosser un rôle défocalisant de manière non-négligeable. Une autre situation – à 300 nm dans le krypton – amène à un renforcement résonant de la filamentation, se traduisant par l'allongement de la longueur du filament par rapport au cas hors-résonance.

**Mots-clés :** champ fort, troisième harmonique, résonance, modulation de phase croisée, effet laser.

---

**ABOUT THE STUDY OF THE LASER FILAMENTATION PROCESS  
ON RARE GASES UNDER THE STRONG FIELD MODEL :  
ON THE INFLUENCES OF THE THIRD HARMONIC GENERATION  
AND OF THE VICINITY OF RESONANCES IN THE ULTRAVIOLET**

**Abstract :** Filamentation originates from the dynamic balance between linear and nonlinear effects, allowing the laser beam autostabilization over distances significantly greater than those predicted by linear optics laws. The aim of this thesis is to describe this phenomenon on rare gases under the strong field model, contrary to the commonly used perturbation model based on the weak field approximation. The influence of harmonics, so far neglected, is then revisited both at the microscopic level and at the propagation scale. It is shown, experimentally and with the support of numerical simulations, that a weak proportion of third harmonic is sufficient to strongly impact the filamentation dynamics, especially through the ionization process. Also, the vicinity of a resonance can lead to strong modifications of the self-guiding mechanism : when a fundamental field centered at 400 nm and its third harmonic interact together with krypton, it is shown that the cross-phase modulation process is enhanced and can participate to the beam defocusing. Another situation – at 300 nm in krypton – leads to resonantly enhanced filamentation, i.e. to longer filaments compared to the non-resonant case.

**Keywords :** strong field, third harmonic, resonance, cross-phase modulation, lasing.