

Propagation non-linéaire d'impulsions laser ultrabrèves dans l'atmosphère et applications Des filaments blancs pour sonder l'atmosphère

Jérôme Kasparian

► To cite this version:

Jérôme Kasparian. Propagation non-linéaire d'impulsions laser ultrabrèves dans l'atmosphère et applicationsDes filaments blancs pour sonder l'atmosphère. Physique [physics]. Université Claude Bernard - Lyon I, 2005. tel-00011448

HAL Id: tel-00011448 https://theses.hal.science/tel-00011448

Submitted on 23 Jan 2006 $\,$

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. N° d'ordre : 19-2005

Année 2005

Habilitation à Diriger les Recherches

présentée

devant l'UNIVERSITÉ CLAUDE BERNARD - LYON I

Propagation non-linéaire d'impulsions laser ultrabrèves dans l'atmosphère et applications

Des filaments blancs pour sonder l'atmosphère

par

M. Jérôme Kasparian

soutenue le 30 mai 2005

JURY : M. Claude Guet, rapporteur

- M. Arnold Migus, rapporteur
- M. Roland Sauerbrey
- M. Ludger Wöste, rapporteur
- M. Jean-Pierre Wolf

Lorsqu'elles se propagent dans l'air les impulsions laser ultrabrèves (fs) et de forte puissance forment des filaments ionisés sur de longues distances, où est produit un continuum de lumière blanche qui s'étend de l'ultraviolet (230 nm) à l'infrarouge (4,5 μ m). Ce processus fortement non-linéaire résulte d'un équilibre dynamique entre deux effets dus au profil spatial du faisceau : la focalisation par effet Kerr, et la défocalisation par le plasma issu de l'ionisation multiphotonique de l'air. Mon travail de ces dernières années, présenté ici, est consacré à l'étude de cette propagation nonlinéaire, et à ses applications pour la physique de l'atmosphère.

Une première catégorie d'applications, comme le Lidar à lumière blanche, repose sur l'exploitation du continuum de lumière blanche, par exemple pour réaliser une télédétection multi-composants dans l'air. Une seconde famille repose sur la capacité des filaments de délivrer à grande distance des intensités suffisantes pour induire *in situ* des effets non-linéaires à distance. Nous avons utilisé cette propriété pour identifier à distance des simulants d'aérosols biologiques ou des cibles solides. Enfin, l'ionisation de l'air dans le filament nous a permis de contrôler des décharges électriques de haute tension, ouvrant la voie vers un paratonnerre laser.

Abstract

When ultrashort (fs), high-power laser pulses propagate through the atmosphere, extended plasma filaments form and emit white light in a spectral range spanning from the ultraviolet (230 nm) to the infrared (4,5 μ m). This strongly non-linear optical phenomenon results from a dynamical balance between respectively focusing and defocusing Kerr- and plasma-lenses, which are formed by a non-uniform, intensity-dependent refractive index across the laser beam profile. My recent work presented here has mainly been dedicated to the study of this non-linear propagation and its applications to atmospheric sciences.

Some applications such as white-light LIDAR rely on the white light continuum, which can be observed up to high altitudes and allows multicomponent remote sensing. Other techniques rely on the ability of the filaments to deliver high-intensities and induce non-linear optical effects at remote locations. This property allowed us to remotely identify bioaerosols or solid targets. Furthermore, the ionization of the fs-laser-induced filaments permits to control high-voltage discharges, opening the way to laser lightning rods.

La recherche n'est un exercice solitaire que dans les films de série B. Dans la réalité, il s'agit toujours d'un travail d'équipe. Mon travail de ces dernières années ne fait pas exception à cette règle, bien au contraire. Je voudrais ici chaleureusement remercier tous ceux qui y ont contribué de près ou de loin, de jour ou de nuit, voire les deux.

Merci !

Mes premiers remerciements vont à Jean-Pierre, dont l'enthousiasme ne s'est pas démenti depuis plus de dix ans, et dont les idées continuent de pleuvoir à 180 bpm. Et il est peu probable que l'intrication entre la France et la Suisse puisse freeeeiner ceeee ryyythme... Jean-Pierre, un grand merci aussi pour ta grande confiance et ta disponibilité !

Je voudrais aussi remercier Roland Sauerbrey, Ludger Wöste, Claude Guet et Arnold Migus, qui m'ont fait l'amitié de participer à mon jury d'habilitation malgré des agendas que je sais surchargés.

Ma reconnaissance va aussi à Michel Broyer et Christian Bordas, directeurs du LASIM, pour leur soutien et leurs encouragements depuis de nombreuses années. Je salue aussi André Mysyrowicz, directeur de l'équipe parisienne du Téramobile, pour les nombreuses occasions que nous avons eu d'interagir et de collaborer.

Merci !

Merci également à toute l'équipe du Téramobile, à commencer par les Lyonnais. Le premier par ordre d'entrée en scène est Jin, infatigable roi des longues séries de points. Puis viennent Didier, expert en seuil de dommages, et Nicolas, à qui nous avons peut être fait un peu peur... Estelle, merci pour ta mémoire que seule égale ton acharnement au travail devant un laser récalcitrant... et pour les visites de Murphy jusque sur les routes du Nouveau Mexique. Merci et bravo Guillaume pour ton enthousiasme et ton efficacité à tester les idées les plus étranges, et parfois les transformer en résultats ! Dernier Lyonnais en date, Roland a déjà montré sa ténacité pour sortir « quelque chose » de résultats toulousains forts bruités...

Je voudrais aussi saluer l'ensemble des Téramobilistes de Jena, Berlin et Palaiseau. Le *Téramobile* n'aurait pas existé sans les efforts d'Holger ni de Miguel à Berlin, Bremerhaven, Guyancourt et ailleurs. Merci aussi à Miguel pour son souci du détail dans l'analyse des résultats. Une mention spéciale pour Riad, le Jenaer de Berlin (le Berliner de Jena ?), en souvenir d'un cambriolage nocturne à la recherche d'azote. Toute ma reconnaissance va également à Kamil, qui au péril de notre vie a accepté de reculer la cible LIBS avant que l'aube ne nous chasse vers l'aéroport, et pour Philipp que nous n'avons pas réussi à effrayer après six mois de nuits blanches. Sans oublier Grégoire, Stelios, Yves-Bernard, Bernard, Michel... ni Stefan bien sûr.

Merci !

Merci Véronique pour ton aide si fréquente, pour ta contribution à l'ambiance du groupe... et bienvenue au club des « couches-culottes ». Mes remerciements vont aussi à François (L'optique géométrique donnerait-elle le même résultat dans des cavités mouillées ?), à Sylvain le créateur d'algorithme transgénique, à Jérôme et Vincent qui mesurent l'eau à la cave pendant que nous la mesurons dans les nuages, et à Patrick le lidariste blanc. Je salue aussi la grande contribution de toute l'équipe technique du LASIM : Marc, Marc et Michel, comment oublier cette si belle remorque partie en fumée ? Francisco, comment mettre un 3ème écran et une 8ème carte PCI dans mon PC ? Anne, Aurélie, Yvette, peut-on faire un ordre de mission pour avant-hier ?

Merci !

De nombreuses parties de ce travail sont issues de collaborations avec le CEA (Luc dont les propositions de manips sont aussi variées et réalistes que nos idées de calculs, Stéphanie, Rachel, Stefan), avec l'université technique de Berlin (Kay, Lars, et le si charmant Professor Kalkner), avec le CEAT (Christian Davoise), le New Mexico Tech (Bill & Bill, Graydon, Sandy...), l'AFRL (Vern, I call you tomorrow), l'observatoire de Tautenburg (Artie, Aleks, Jochen, Holger, Brigfried, Uwe...). Que tous soient remerciés de leur accueil, de leur aide et de leur collaboration. Un grand merci également à Ingo et Wilfried d'Impres GmbH, qui ont assuré l'ingénierie du conteneur, et à Luc d'Amplitude, dont la première intervention a ressuscité notre laser. Tous trois sont bien plus que des fournisseurs.

Mercí ?

Je voudrais enfin remercier Christelle pour son soutien et sa patience lorsque le Téramobile est trop prenant ou que les manips se prolongent plus tard que prévu. Merci aussi à Dimitri, qui apprend la géographie au hasard des campagnes du Téramobile, et à Mathis qui découvrira bientôt que le téléphone sert aussi à parler.

Résumé	1
Abstract	1
Remerciements	3
Table des matières	5
I. Introduction : pourquoi envoyer des impulsions laser femtosecondes dans l'atmosphère ?	9
I.1 Le Lidar classique	
La technique Lidar	10
I.2 Diffusion non-linéaire par des aérosols	13
I.3 Propagation d'impulsions non-linéaires dans l'air	15
Autofocalisation par effet Kerr	17
Ionisation multiphotonique et génération de plasma	
Filamentation d'impulsions laser de forte puissance	
Modélisation de la filamentation	19
Génération de lumière blanche et auto-modulation de phase	20
Propagation à très haute puissance	
Conclusion	23
I.4 Le projet Téramobile	23
II. Le laser <i>Téramobile</i>	25
II.1 Le système laser	25
Compensation de la dispersion de la vitesse de groupe	27
L'optique d'émission	28
II.2 Le laboratoire mobile « Téramobile »	30
II.3 Systèmes de détection	
Détection Lidar interne	
Laboratoire mobile de caractérisation du faisceau	
II.4 Conclusion	33
III. Propagation d'impulsions laser fs-TW dans l'atmosphère	35

III.1 Propagation d'impulsions fs-TW en régime de multifilamentation	36
III.2 Filamentation verticale à longue distance	39
Dispositif expériemental	39
Imagerie à longue distance et à haute résolution de la propagation non-linéai	re
d'impulsions laser térawatt	41
Filamentation à haute altitude	43
Focalisation et divergence du faisceau	45
Efficacité de génération de la lumière blanche	47
Conclusion	48
III.3 Le spectre de la lumière blanche	49
Composante visible et infrarouge du continuum de lumière blanche	49
Mesure par Lidar de la composante infrarouge du continuum de lumière blan	che 51
Composante ultraviolette du continuum de lumière blanche	54
Conclusion	56
III.4 Un « laser perce-nuages »	57
Interaction d'un filament avec une goutte isolée	57
Interaction d'un filament avec un nuage	61
Influence d'un brouillard sur la filamentation multiple	62
Conclusion	65
III.5 Perspectives : vers un modèle phénoménologique ?	65
IV. Télédétection laser non-linéaire : Lidar et LIBS	. 69
IV.1 Mesure Lidar multi-paramètres par Lidar basé sur la lumière blanche	. 69
Dispositif expérimental	71
Mesure de la distribution de taille des particules par la figure de diffusion mul	tiple 72
Mesure de l'humidité relative	77
Conclusion	82
IV.2 Télédétection de simulants biologiques par Lidar non-linéaire	83
Mesure expérimentale à 45 m	84
Comparaison du Lidar non-linéaire avec la fluorescence linéaire	86
Conclusion	88
IV.3 Au-delà du Lidar non-linéaire : le R-FIBS	89
Dispositif expérimental	90
Résultats et discussion	91
Conclusion	94
IV.4 Conclusion	95

V. Contrôle de décharges de haute tension par laser	
V.1 Introduction	97
V.2 Contrôle de décharges électriques par des filaments	100
V.3 Influence de la pluie sur le guidage de décharges de haute tens laser femtoseconde	ion par 104
V.4 Conclusion et perspectives	108
Conclusion et perspectives	111
Bibliographie	113

I. Introduction : pourquoi envoyer des impulsions laser femtosecondes dans l'atmosphère ?

L'essentiel de mes travaux de recherche des cinq dernières années est sous-tendu par le développement d'applications atmosphériques des impulsions laser femtosecondetérawatt dans l'atmosphère, et en particulier le Lidar non-linéaire et le contrôle de décharges de haute tension. Ce type d'applications nécessite de caractériser au mieux la propagation non-linéaire des impulsions laser de forte puissance sur de longues distances, et de réaliser de nombreuses expériences sur le terrain, parfois en conditions difficiles : températures extrêmes, humidité, poussières voire boue... Autant de conditions hostiles pour un laser femtoseconde, ce qui avait jusqu'ici cantonné au laboratoire les lasers de cette classe. Par ailleurs, l'encombrement d'un laser femtoseconde s'accomode généralement mal d'un transport et d'une remise en service rapide.

Devant cette difficulté - réelle¹ - de déplacer sur le terrain un laser femtoseconde, et de le faire fonctionner en extérieur, on peut s'interroger sur la nécessité d'un tel effort, au-delà de l'exploit technique qu'a représenté la réalisation de notre système femtoseconde-térawatt, le Téramobile. Notons à cet égard que, malgré le grand intérêt que le Téramobile a suscité, et les efforts de plusieurs groupes pour réaliser un système semblable, il est toujours le seul laser mobile au monde dans cette classe de puissance. Là encore, l'impact du coût et de la difficulté d'une telle réalisation sont patents.

Le but de ce chapitre introductif est de montrer que, si le lancement du projet Téramobile était un pari risqué pour les équipes impliquées comme pour les financeurs (CNRS et DFG), les bénéfices potentiels étaient à la hauteur. En m'appuyant en particulier sur des résultats que j'ai obtenus avant le lancement du projet Téramobile, je passerai en revue les connaissances préalables à la description de mes résultats récents. Ces derniers seront détaillés dans les chapitres suivants. Ce faisant, je m'attacherai à montrer les forces et les limitations des techniques pré-existantes, et à éclairer la démarche qui a conduit à lancer le Téramobile. Je passerai en revue, successivement, un exemple de mesure Lidar classique, l'étude de l'interaction des impulsions laser femtoseconde avec des particules d'aérosols, et une description qualitative de la propagation non-linéaire d'impulsions ultrabrèves dans l'air ainsi que des phénomènes impliqués dans la filamentation.

¹ « Che te dis, on va mettre un Téravatt dans un containeur. C'est facile, il y en a chuste pour 15 chours »

I. Introduction : pourquoi envoyer des impulsions laser femtosecondes dans l'atmosphère ?

I.1 Le Lidar classique

La pollution atmosphérique, en particulier en milieu urbain, est une préoccupation importante de notre société. Les aérosols urbains en sont une composante majeure, dont l'impact sur la santé est établi, en particulier en ce qui concerne les particules de 0,1 à 1 μ m qui sont des vecteurs pour déposer les polluants dans le système respiratoire [1]. Mais la diversité des aérosols en taille comme en composition rend leur analyse difficile. En particulier, les analyseurs classiques donnent une mesure localement, et au mieux par intervalle de masse. À l'opposé, le Lidar (*LIght Detection And Ranging*, Détection et mesure par la lumière) fournit une carte tridimensionnelle de concentration.

La technique Lidar

Le principe du Lidar [2] est apparu quelques années seulement après l'apparition des premiers lasers [3,4]. Son principe est présenté sur la Figure 1. Une impulsion laser est émise dans l'atmosphère. La lumière rétrodiffusée est collectée sur un télescope, et détectée en fonction du temps avec une résolution de quelques nanosecondes à quelques dizaines de nanosecondes.



Figure 1. Principe du Lidar

Le signal reçu à un instant donné est donc caractéristique du coefficient de rétrodiffusion β à la distance correspondante ainsi que du coefficient d'extinction α sur le

chemin de la lumière à l'aller comme au retour. Plus précisément, si l'on néglige la diffusion multiple, le retour lidar linéaire est donné dans le cas général par l'équation *Lidar* [5,6] :

$$E(\lambda, R) = E_L \cdot \xi(\lambda, R) \cdot e^{-\int_0^R (\lambda_L, R') dR'} \cdot e^{-\int_0^R (\lambda, R') dR'} \cdot \frac{A_0}{R^2} \cdot \beta(\lambda_L, \lambda, R) \cdot \frac{c \cdot \tau_d}{2}$$
(1.1)

où $E(\lambda,R)$ est le signal provenant de la distance R, en fonction de la puissance laser E_L , du coefficient de rétrodiffusion $\beta(\lambda_L,\lambda,R)$ pour le processus étudié, produit une radiation à la longueur d'onde λ sous une longueur d'onde incidente λ_L , et des coefficients d'extinction à la longueur d'onde incidente $\alpha(\lambda_L,R)$ et à la longueur d'onde diffusée $\alpha(\lambda,R)$. Le facteur géométrique $\xi(\lambda,R)$ tient en particulier compte du recouvrement entre le faisceau laser et le cône de détection du télescope, ainsi que de la réponse spectrale du détecteur. A_0 / R^2 est l'angle solide de collection du dispositif de collecte, tandis que c et τ_d sont respectivement la vitesse de la lumière et la durée d'impulsion.

Le principal avantage du Lidar sur d'autres techniques optiques de mesure de traces dans l'atmosphère tient à la résolution spatiale, qui tient à la résolution temporelle du signal reçu, *via* le temps de vol de la lumière jusqu'à une distance donnée. Cette résolution spatiale permet d'effectuer des cartographies bi- et tridimensionnelles [7] de différentes espèces atmosphériques. Le Lidar peut ainsi fournir des cartes d'émission ou de transport de gaz traces dans l'atmosphère.

La méthode la plus usuelle pour la mesure de ces gaz traces dans l'atmosphère par Lidar est la technique dite DIAL (*DIfferential Absorbtion Lidar*, lidar à absorption différentielle). Elle permet de mesurer sélectivement la concentration de polluants gazeux. Pour cela, elle compare les signaux lidar à deux longueurs d'onde très proches l'une de l'autre, situées l'une sur une raie d'absorption du polluant étudié, et l'autre à côté de cette raie. Mais cette méthode est limitée à des polluants qui présentent une raie d'absorption étroite, et exempte d'interférences avec les spectres d'autres composés atmosphériques. Par ailleurs, la nécessité d'ajuster la longueur d'onde laser sur la raie d'absorption interdit la mesure simultanée de plusieurs polluants, ainsi que l'identification d'un polluant inconnu. Nous verrons plus loin que l'utilisation du « laser blanc » que constituent les filaments autoguidés produits par les lasers ultrabrefs dans l'atmosphère pourrait apporter une réponse à ces limitations.

Interpréter le signal lidar revient à inverser l'équation lidar (I.1). Dans le cas de la mesure d'aérosols, le problème inverse est ardu à cause de la forme intégrale de l'expression à inverser. De plus, le problème est mal posé puisque l'on se trouve en présence de deux quantités à déterminer, les coefficients d'extinction et de rétrodiffusion

à chaque distance. Or, chacun de ces deux coefficients dépend de la composition et de la distribution de taille des aérosols en présence. Il est donc indispensable d'effectuer des hypothèses sur α et β afin de permettre un traitement du signal lidar.



Figure 2. Distribution spatiale de la concentration d'aérosols au-dessus de Lyon. Les aérosols sont stratifiés en deux couches et la couche limite est homogène, à cause d'une situation météorologique exceptionnellement stable. Les directions des trois profils verticaux correspondent respectivement à une zone périphérique, au centre-ville, et à un parc boisé [7].

Ces informations sont habituellement postulées *a priori*. Pour éviter ce type d'hypothèse et réaliser une mesure quantitative de la concentration d'aérosols, nous avons combiné le lidar à une analyse poussée de particules prélevées par des analyseurs ponctuels au cours d'une grande campagne de mesures à Lyon durant l'été 1996. Les

méthodes employées incluent l'utilisation de la microscopie électronique à balayage et de la microfluorescence X. Cette analyse nous a permis de déterminer la distribution de taille de chaque type de particules présentes dans l'atmosphère ainsi que leur abondance relative. De la sorte, nous avons pu calculer leurs coefficients d'extinction et de rétrodiffusion, autorisant pour la première fois une inversion *quantitative* par l'algorithme de Klett [8].

Profitant de la résolution spatiale du Lidar, nous avons ainsi pu réaliser des cartographies quantitatives de la concentration d'aérosols au-dessus de Lyon un aprèsmidi d'été (Figure 2) [7]. Ce type de cartes met en évidence la stratification des aérosols ainsi que l'altitude de la couche limite, marquée par la forte chute de la concentration d'aérosols vers 1500 m. En répétant la mesure à intervalles réguliers, on met en évidence les variations temporelles de la couche limite : élévation le jour, descente la nuit.

La combinaison du Lidar et des techniques d'analyse microscopiques permet ainsi de suivre la dynamique spatiale et temporelle de la pollution urbaine par les aérosols. Les résultats obtenus constituent alors un outil pour appréhender les causes et les effets sur la santé. C'est ce que nous avons fait au cours de cette première campagne, en lien avec une étude épidémiologique effectuée simultanément par le Département d'Écologie Urbaine de la Ville de Lyon. Cependant, ce type de mesure couplée n'est qu'indirecte, car les particules ne sont caractérisées que ponctuellement dans l'espace et dans le temps, ce qui nécessite de supposer que nous sommes en présence d'une atmosphère homogène et stable temporellement. On néglige ainsi la sédimentation des particules, tout comme les variations temporelles des sources d'aérosols, ainsi que les particules volatiles (parmi lesquelles les gouttelettes d'eau), non imagées au microscope électronique. Ces méthodes ne peuvent donc être utilisées que dans des conditions assez exceptionnelles. Pour développer des méthodes tout-optiques de télédétection des aérosols, il est donc nécessaire de disposer d'un canal d'information supplémentaire. À cet égard, les processus non-linéaires à l'intérieur des particules constituent un bon candidat. Le paragraphe suivant en donne un exemple.

I.2 Diffusion non-linéaire par des aérosols

En vue de disposer d'informations complémentaires pour les mesures des aérosols par Lidar, nous nous sommes intéressés à la diffusion non-linéaire, et en particulier la génération de troisième harmonique *in situ* dans des particules d'aérosols. En effet, les microparticules sphériques constituent des microcavités optiques qui favorisent les phénomènes non-linéaires en localisant la lumière incidente dans des modes de grand facteur de qualité. De plus, la diffusion non-linéaire par des particules de taille de l'ordre du micron est maintenant accessible aux calculs théoriques, appelant des vérifications expérimentales. Outre leur intérêt théorique, ces résultats ouvrent la voie vers des applications pour l'analyse de distributions d'aérosols et à terme vers un Lidar fournissant simultanément des informations sur la taille et la composition des particules rencontrées.

Ainsi, lors de ma thèse, en collaboration avec l'équipe de L. Wöste de la *Freie* Universität de Berlin, nous avons pour la première fois étudié la diffusion non-linéaire par des microgouttes d'eau excitées par un laser femtoseconde. Le laser d'excitation produit des impulsions de 100 fs à 810 nm, avec une puissance crête de l'ordre de 10^{13} W·cm⁻².

L'étude angulaire de la génération de troisième harmonique fait apparaître un contraste important avec la diffusion linéaire [9,10]. En particulier, le profil est très lisse et dépend peu de la taille des particules (Figure 3). Ces observations sont en assez bon accord avec des calculs basés sur une extension non-linéaire de la théorie de Mie, réalisés par le groupe de K. Bennemann à la *Freie Universität* de Berlin. Par ailleurs, la génération de troisième harmonique vers l'arrière a une efficacité suffisante pour envisager une application au Lidar.



Figure 3. Distribution angulaire selon l'angle polaire de la génération de troisième harmonique par des gouttes d'eau excitées par des impulsions laser femtoseconde (100 fs, 810 nm), en fonction du diamètre des gouttes

L'analyse spectrale fait pour sa part apparaître que la génération de troisième harmonique à 270 nm est 1000 fois plus efficace que l'émission de continuum de lumière blanche produit dans la goutte. Ainsi, la génération de troisième harmonique vers l'arrière a une efficacité suffisante pour envisager une application au Lidar.

De plus, contrairement à ce qui se passe en régime picoseconde, la diffusion Raman stimulée, pompée par la troisième harmonique, n'est pas détectable. Nous avons également prédit une transition entre un régime où l'émission de troisième harmonique I. Introduction : pourquoi envoyer des impulsions laser femtosecondes dans l'atmosphère ?

domine, pour des impulsions plus courtes que le périmètre des particules, et un régime où l'émission Raman stimulée domine dans les particules suffisamment petites pour que les modes soient entièrement recouverts par l'extension spatiale des impulsions du laser, permettant la stimulation de l'effet Raman [11]. Cette transition pourrait être exploitée, dans un schéma pompe-sonde, pour mesurer à distance le diamètre de gouttes transparentes. Ce type de comportement dépendant de la taille des particules a d'ailleurs été observé depuis, dans le cas de la fluorescence excitée à deux photons à l'intérieur des modes de galerie de gouttes sphériques [12].

Ainsi, les effets optiques non-linéaires dans les particules d'aérosols semblaient, dès cette époque, constituer un canal d'information utilisable pour perfectionner les mesures Lidar. Il était alors extrêmement tentant de réaliser un Lidar non-linéaire basé sur l'utilisation d'un laser à impulsions ultrabrèves



I.3 Propagation d'impulsions non-linéaires dans l'air

Figure 4. Filament de lumière blanche généré dans l'atmosphère par un laser femtosecondetérawatt émis à 800 nm (Photo K. Wedekind)

La première tentative en ce sens a été réalisée par L. Wöste et R. Sauerbrey, qui ont tenté de produire à distance une "lampe blanche" en générant à distance un plasma, grâce à des impulsions laser de 100 fs, avec une puissance-crête de 3 TW, légèrement focalisées dans l'atmosphère. Au lieu d'un plasma localisé au foyer, ils ont observé un long filament de lumière blanche (Figure 4), similaire à des observations à plus courte échelle au laboratoire. Le faisceau était clairement visible à l'oeil nu [13,14] bien que le

laser utilisé émette dans l'infrarouge, autour de 800 nm. Ce filament de lumière blanche était visible même lorsque le laser n'était pas focalisé. Le signal rétrodiffusé dans la bande spectrale bleu-vert de la lumière blanche a pu être détecté depuis des altitudes dépassant 10 km. Ils ont ainsi observé pour la première fois la filamentation à l'échelle de l'atmosphère.



Figure 5. Principe de la filamentation. Le faisceau s'autofocalise d'abord par effet Kerr et s'effondre sur lui-même. L'ionisation au foyer non-linéaire défocalise alors le faisceau. Un équilibre dynamique s'établit entre les deux processus sur des distances très supérieures à la longueur de Rayleigh.

La formation de filaments autoguidés était en fait déjà un phénomène connu à l'échelle du laboratoire [15,16,17,18]. Elle se produit lors de la propagation fortement non-linéaire d'impulsions laser de forte puissance dans les milieux transparents (Figure 5). Cette forte non-linéarité induit une auto-action qui modifie l'impulsion tant spatialement que spectralement et temporellement. Dans le domaine spatial, on peut citer l'auto-focalisation [19], l'auto-guidage [15], ou l'auto-réflexion [20]. Les principaux phénomènes spectraux sont le mélange à 4 ondes [21] et l'automodulation de phase [22,23,24]. Les effets temporels sont l'auto-raidissement [25,26,27] et le dédoublement de l'impulsion [28]. De plus, le milieu de propagation est fortement affecté, puisqu'il est le siège d'un ionisation multiphotonique [29,30,31,32,33] conduisant à la formation d'un plasma.

Ces phénomènes ont été étudiés depuis le début des années 1970, du point de vue théorique comme du point de vue expérimental. Depuis 1985 et le développement de l'amplification à dérive de fréquences (CPA) [34,35], qui a permis de produire des impulsions laser ultrabrèves et d'atteindre de très hautes intensités (jusqu'à 10²¹ W/cm²),

ces phénomènes peuvent être observés même dans des matériaux usuels, tels que des gaz à pression ambiante, malgré leur faible non-linéarité. Dans ce qui suit, nous nous concentrerons sur la propagation non-linéaire dans l'air et les processus liés à la génération d'un continuum cohérent de lumière blanche, et à la filamentation.

Autofocalisation par effet Kerr

Le premier effet non-linéaire intervenant dans la propagation d'impulsions de forte puissance est l'auto-focalisation par effet Kerr [36,37]. En effet, à haute puissance, l'indice de réfraction de l'air dépend de l'intensité laser incidente :

$$n(I) = n_0 + n_2 I \tag{1.2}$$

où $n_2 \approx 3 \ge 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$ [38] est l'indice de réfraction non-linéaire de l'air. Le profil d'intensité dans le faisceau n'étant pas uniforme, l'effet Kerr génère un profil d'indice (Figure 5, à gauche) qui se comporte comme une lentille convergente ou « *lentille de Kerr* » dont la distance focale dépend de l'intensité. Le faisceau est focalisé par cette lentille, ce qui génère une augmentation de l'intensité, et en retour un raccourcissement de la distance focale, etc., jusqu'à ce que le faisceau s'effondre sur luimême. L'effet Kerr devrait donc empêcher la propagation d'impulsions laser de haute puissance dans l'air. Pour que la lentille de Kerr compense la diffraction et permette l'autofocalisation du faisceau, la puissance doit être supérieure à la *puissance critique* :

$$P_{crit} = I \cdot \pi \cdot w^2 = \frac{\pi}{k^2 \cdot n_2} = \frac{\lambda^2}{4\pi \cdot n_2}$$
(1.3)

où w est le diamètre du faisceau. Pour un laser titane:saphir ($\lambda = 800$ nm) dans l'air, $P_{crit} \sim 3$ GW.

Bien que l'effet Kerr soit fonction de l'intensité, c'est la *puissance* et non pas l'*intensité* qui détermine la survenue de l'autofocalisation. Par contre, si l'autofocalisation se produit, la distance à laquelle le faisceau s'autofocalisera dépend du diamètre du faisceau, donc de l'intensité. La position z_f du foyer non-linéaire est en effet donnée pour une puissance P par la formule empirique de Marburger [39] :

$$\frac{1}{z_f(P)} = -\frac{1}{R} \pm \frac{\sqrt{\left(\sqrt{P/P_{crit}} - 0.852\right)^2 - 0.0219}}{0.367 \cdot k \cdot a^2}$$
(I.4)

où R est la courbure initiale du front d'onde, k est le nombre d'onde et a le rayon du faisceau, pris à 1/e.

I. Introduction : pourquoi envoyer des impulsions laser femtosecondes dans l'atmosphère ?

Ionisation multiphotonique et génération de plasma

La forte focalisation d'un faisceau de grande puissance conduit à une haute intensité locale. Lorsque cette intensité atteint 10^{13} à 10^{14} W/cm², des processus nonlinéaires d'ordre supérieur interviennent, en particulier l'ionisation multiphotonique (MPI). À 800 nm, 8 à 10 photons sont nécessaires pour ioniser les molécules d'azote et d'oxygène et produire un plasma [40]. L'ionisation par effet tunnel peut également intervenir grâce aux très grands champs électriques portés par l'impulsion laser. Cependant, selon la théorie de Keldysh [41], l'ionisation multiphotonique domine pour des intensités inférieures ou égales à 10^{14} W/cm². Au contraire des impulsions plus longues, les impulsions ultrabrèves combinent une forte efficacité d'ionisation due à leur très haute intensité, avec une énergie totale limitée, de sorte que les densités moyennes d'électrons générées $(10^{15}-10^{17} \text{ cm}^{-3})$ [42] sont largement au-dessous de la saturation. Les pertes par Bremsstrahlung inverse sont donc négligeables, ce qui permet une propagation à longue distance. Cependant, la densité d'électrons ρ a une contribution négative à l'indice de réfraction. À cause du profil radial d'intensité dans le laser, apparaît un gradient négatif d'indice de réfraction, qui se comporte comme une lentille divergence et défocalise le faisceau, comme symbolisé sur la Figure 5.

Filamentation d'impulsions laser de forte puissance

Pris séparément, l'effondrement du faisceau à cause de l'autofocalisation par effet Kerr et la défocalisation induite par le plasma, devraient chacun interdire toute propagation à longue distance d'impulsions laser de forte puissance dans l'air. Or, ces deux processus peuvent se compenser et donner lieu à une propagation auto-guidée, quasi-solitonique [43]. Le faisceau laser s'auto-focalise d'abord par effet Kerr. Puis, lorsque l'intensité est suffisamment élevée, un plasma est généré par MPI, ce qui défocalise le faisceau. L'intensité décroît alors et la génération de plasma s'arrête, permettant à l'auto-focalisation de reprendre le dessus. Cet équilibre dynamique entre effet Kerr et MPI conduit à la formation de structures stables ou filaments (Figure 5). Ces filaments ont été observés dès 1995 par A. Braun et al. [15], qui a découvert que des miroirs pouvaient être endommagés par des impulsions laser ultrabrèves de forte puissance, même à grande distance de la source laser. L'intensité dans les filaments est pratiquement constante (typiquement 10^{14} W/cm²) [44], de même que l'énergie qu'ils transportent (quelques mJ), leur diamètre, et leur densité d'électrons (typ. 10^{16} cm⁻³) [42]. Ces propriétés mettent en évidence le caractère schématique, voire simpliste, de la description intuitive de la filamentation, telle que représentée sur la Figure 5.

L'équilibre dynamique peut ainsi guider la lumière sur des distances pouvant dépasser la centaine de mètres [45,46,47], soit plusieurs ordres de grandeur au-delà de

la distance de Rayleigh, à l'issue de laquelle la diffraction élargit un faisceau se propageant linéairement.

Modélisation de la filamentation

De nombreux groupes se sont intéressés à simuler la propagation non-linéaire d'impulsions laser de forte puissance dans l'air, tant dans un régime de mono-filamentation à basse énergie [voir par exemple 18,48,49,50,51,52,53,54] qu'à haute énergie dans un régime de multi-filamentation [47,55,56,57,58]. Le lecteur pourra s'y reporter pour plus de détails. Le principe en est le suivant. La propagation des impulsions laser est décrite par les équations de Maxwell :

$$\nabla^{2}E - \frac{1}{c^{2}} \cdot \frac{\partial^{2}E}{\partial t^{2}} = \mu_{0} \cdot \sigma \cdot \frac{\partial E}{\partial t} + \mu_{0} \cdot \frac{\partial^{2}P}{\partial t^{2}}$$
(1.5)

où σ est la conductivité et représente les pertes, et *P* est la polarisation du milieu. Contrairement au cas de la propagation linéaire, *P* comporte un terme non-linéaire correspondant à l'effet Kerr et à la génération de plasma :

$$P = P_L + P_{NL} = \varepsilon_0 \cdot \left(\chi_L + \chi_{NL}\right) \cdot E \tag{1.6}$$

où χ_L et χ_{NL} sont respectivement les susceptibilités linéaire et non-linéaire. Si l'on considère une impulsion de symétrie radiale, se propageant selon l'axe z dans un référentiel se déplaçant à la vitesse de groupe v_g , et que l'on ne considère que les effets dominants, on obtient l'équation de Schrödinger non-linéaire (NLSE, non-linear Schrödinger equation) suivante [43] :

$$\nabla_{\perp}^{2} \varepsilon + 2i \left(k \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} \right) + 2k^{2} n_{2} \cdot \left| \varepsilon \right|^{2} \cdot \varepsilon - k^{2} \frac{\rho}{\rho_{c}} \cdot \varepsilon = 0$$
(1.7)

où $\varepsilon = \varepsilon (r, z, t)$ est l'enveloppe de l'impulsion du champ électrique et ρ_c est la densité critique d'électrons (1,8 10²¹ cm⁻³ à 800 nm [43]). ε est supposé varier lentement par rapport à la fréquence de la porteuse et avoir une décroissance radiale lente. Au premier ordre, la dispersion de la vitesse de groupe (DVG), l'auto-raidissement de l'impulsion, l'effet Kerr retardé, l'effet Raman, sont négligés, de même que les pertes dues à l'ionisation multiphotonique et à l'absorption du plasma ($\sigma = 0$). Dans l'équation (I.7), le Laplacien correspond à la diffraction dans le plan transverse, tandis que les deux derniers termes représentent les contributions non-linéaires à la propagation : l'auto-focalisation par effet Kerr et la défocalisation sur la plasma, qui ont des signes opposés.

La densité électronique $\rho(r, z, t)$ est calculée à partir d'une équation cinétique (I.8), dans un schéma autocohérent avec l'équation (I.7) :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} - \gamma \left| \varepsilon \right|^{2\alpha} (\rho_n - \rho) = 0 \tag{1.8}$$

Dans cette équation, ρ_c est la concentration de molécules dans l'air, γ l'efficacité de l'ionisation multiphotonique, et α le nombre de photons nécessaires pour ioniser une molécule d'air, soit typiquement 8 à 10 [40]. En intégrant numériquement la NLSE, on obtient l'évolution de l'intensité de l'impulsion $I = |\varepsilon|^2$ en fonction de la distance de propagation, comme le montre la Figure 6. L'auto-focalisation initiale de l'impulsion par l'effet Kerr, de même que le plasma généré par MPI sont bien reproduits par ce type de simulation. On notera que la structure filamentaire du faisceau, bien que d'un diamètre de seulement 100 μ m, se maintient sur plus de 60 m, la simulation étant ici limitée par les capacités de calcul.



Figure 6. Simulation numérique de la filamentation [51]

Génération de lumière blanche et auto-modulation de phase

La haute intensité dans les filaments (4 à 6 x 10^{13} W/cm²) [44] génère une importante automodulation de phase (Figure 7), et donc l'émission d'un large continuum de lumière blanche. En effet, l'intensité *I*(*t*) étant dépendante du temps au cours de l'impulsion, il en est de même de l'indice de réfraction, selon l'équation (I.2) réécrite dans le domaine temporel :

$$n(t) = n_0 + n_2 I(t) \tag{1.9}$$



Figure 7. Effet de l'automodulation de phase. L'impulsion initiale (en haut) est déformée au cours de la propagation. Le centre de l'impulsion, plus intense, est retardé par rapport aux ailes par l'indice non-linéaire. La déformation de l'enveloppe qui s'ensuit génère des basses fréquences sur le front montant de l'impulsion et des hautes fréquences sur son front descendant.

Cet effet induit un déphasage dépendant du temps. Il décale donc la fréquence $\omega(t)$ donné par :

$$\omega(t) = \frac{d\Phi(t)}{dt} = \omega_0 - \frac{n_2\omega_0}{c} z \frac{dI(t)}{dt}$$
(1.10)

où $\Phi(t)$ est la phase instantanée, c la vitesse de la lumière, z la distance de propagation et ω_0 est la fréquence initiale de l'impulsion laser. L'enveloppe temporelle lentement variable par rapport à la porteuse conduit ainsi à un fort élargissement spectral de l'impulsion autour de ω_0 . La lumière blanche ainsi générée est cohérente. Elle est émise essentiellement vers l'avant, pour partie colinéaire avec le filament sous forme d'un « laser blanc » [59], et pour partie sous forme d'émission conique [16,60,61] formant des anneaux dont l'ouverture est fonction de la longueur d'onde, avec un sens de variation inverse à celui de la diffraction (Figure 8a). L'interprétation de cette émission conique est encore l'objet de controverses. Selon les auteurs, elle est attribuée soit à l'émission Cerenkov [16], soit à la réfraction de la lumière blanche émise à l'arrière de l'impulsion, par le plasma généré à l'avant de la même impulsion [60].

Nous avons également montré qu'une part significative de la lumière blanche est émise vers l'arrière [62]. À 179°, l'intensité relative de la rétrodiffusion est déjà un ordre de grandeur plus élevé dans le cas non-linéaire. Un effet encore plus grand est attendu à 180°, bien que le dispositif expérimental n'ait pas permis de le mesurer. Cette émission piquée vers l'arrière peut être interprétée comme provenant d'un gradient longitudinal d'indice de réfraction, dû à un plasma généré par l'impulsion laser elle-même, et sur lequel le laser est réfléchi. Il est également possible que des processus de couplage Raman y soient associés. Une telle auto-réflexion, combinée avec l'autoguidage qui réduit fortement la divergence du faisceau, est un grand avantage pour le Lidar : contrairement à ce qui se passe avec des sources de lumière blanche de faible luminance telles que les lampes à décharges, une part importante de la lumière blanche générée à une distance donnée peut être collectée par le détecteur Lidar.



Figure 8. (a) Figure d'émission conique visualisée sur un écran ; (b) figure de filamentation multiple visualisée sur un écran

Propagation à très haute puissance

À très forte puissance ($P >> P_{crit}$), le faisceau se divise en plusieurs filaments localisés. L'intensité dans chaque filament est limitée à environ 10^{14} W/cm² soit quelques mJ. Ainsi, augmenter la puissance du faisceau augmente le nombre de filaments sans influer notablement sur leur intensité ou leur énergie individuelle. La Figure 8 montre le profil de faisceaux lasers subissant la filamentation, à basse (Figure 8a, 5 mJ) et à haute énergie (Figure 8b, 400 mJ), ce qui conduit respectivement à un filament unique et à la multi-filamentation. I. Introduction : pourquoi envoyer des impulsions laser femtosecondes dans l'atmosphère ?

Conclusion

Les lasers femtoseconde-térawatt apparaissent donc comme des candidats crédibles pour le développement de systèmes Lidars plus puissants que les Lidars linéaires, basés sur des lasers nanoseconde. Ils constituent une source lumineuse unique pour des expériences Lidar multispectrales : une source cohérente de lumière blanche (« laser blanc » [59]), confinée dans un faisceau auto-guidé, et dont une part importante est rétrodiffusée directement vers l'émetteur. Ces propriétés exceptionnelles du continuum de lumière blanche permettent d'attendre une mesure simultanée multi-composants, la caractérisation de polluants inconnus, et une meilleure détermination à distance des aérosols atmosphériques.

Par ailleurs, la formation de filaments ionisés sur de longues distances ouvre la voie au contrôle de décharges électriques, voire de la foudre. Les applications prévisibles des lasers ultrabrefs dans l'atmosphère [63] ont motivé le lancement du projet *Téramobile*, afin de mettre au point un laser mobile dédié à ces applications.

I.4 Le projet Téramobile [64]

Le projet Téramobile est un projet franco-allemand de grande envergure, qui fédère quatre laboratoires : LOA-ENSTA-Ecole Polytechnique (A. Mysyrowicz), Institut für Quantenelektronik à l'Université de Jena (R. Sauerbrey), Institut für Experimentalphysik à l'Université Libre de Berlin (L. Wöste) et LASIM à l'Université Lyon 1 (J.-P. Wolf). Cofinancé initialement par le CNRS et la DFG, pour 2 M€, et désormais également par les Ministères des affaires étrangères français et allemand, le projet Téramobile visait dès son démarrage, en 1999, à construire puis à exploiter un laser femtoseconde-térawatt mobile dédié aux applications à l'atmosphère. J'en assure la coordination depuis le début de l'année 2000, d'abord depuis Jena, et aujourd'hui depuis Lyon.

L'essentiel des résultats présentés ici a été obtenu dans le cadre du Téramobile, en collaboration avec tout ou partie de l'équipe impliquée dans le projet. Dans le prochain chapitre, je présenterai le système Téramobile, premier laser femtoseconde-térawatt au monde. Je détaillerai ensuite quelques résultats marquants que nous avons obtenus concernant la propagation non-linéaire d'impulsions laser ultrabrèves dans l'atmosphère, en particulier à grande distance et dans le régime de multifilamentation. Les chapitres suivants s'attarderont successivement sur les applications à la télédétection, et sur les expériences de contrôle de foudre réalisées grâce au Téramobile. Enfin, le dernier chapitre sera consacré aux perspectives de ce travail.

Les raisons exposées dans le chapitre précédent montrent la pertinence d'un système laser mobile capable de produire sur le terrain des impulsions laser ultrabrèves (femtoseconde) et de forte puissance (Térawatt). Au sein de la collaboration Téramobile, nous avons donc développé le premier système de ce type. Il s'agit d'un laser fs-TW autonome, intégré dans un laboratoire mobile réalisé dans un conteneur maritime standard. Ce laboratoire mobile fournit l'infrastructure nécessaire pour le laser et ses optiques d'émission, ainsi qu'un système de détection Lidar. Il a été complété par un second laboratoire mobile de caractérisation du faisceau, installé dans une remorque et destiné à être déplacé continûment le long du faisceau sur de grandes distances. Malheureusement, cette remorque a été détruite dans un incendie lors de son premier transport.

Le laser Téramobile a été le premier, et est aujourd'hui encore le seul laser femtoseconde-térawatt mobile au monde. Cette mobilité a imposé une conception particulièrement compacte du laser. De plus, les contraintes d'environnement imposées par un tel laser sont draconiennes, et ont présidé à la conception du Téramobile. Nous l'avons conçu comme un système autonome contenant toutes les optiques d'émission et de réception nécessaires pour émettre le faisceau dans l'atmosphère et caractériser sa propagation horizontale ou verticale, ou détecter le signal Lidar dans diverses configurations. Nous avons également cherché à construire un outil le plus ouvert possible afin de permettre son utilisation dans les diverses conditions expérimentales nécessaires aux expériences de physique appliquée à l'atmosphère. Nous disposons ainsi d'un système ouvert pour des évolutions futures ou des applications non prévues lors de la conception.

II.1 Le système laser

Le laser Téramobile repose sur la technique désormais classique de l'amplification à dérive de fréquences, (CPA, chirped pulse amplification, Figure 9) [34,35]. Cette technique permet de produire des impulsions laser dont l'intensité est plus élevée que le seuil de dommage des matériaux amplificateurs. Pour cela, la puissance crête des impulsions est artificiellement réduite en étirant temporellement l'impulsion laser pendant son amplification, en lui imprimant un glissement de fréquence ou *chirp* dans un élément dispersif, l'étireur. En fin de chaîne, les impulsions sont recomprimées dans un élément dispersif symétrique de l'étireur, le compresseur, et retrouvent leur durée initiale.

Si la technique CPA en elle-même est classique, son intégration dans l'espace réduit du conteneur, où le laser dispose de seulement 7 m², a nécessité un agencement particulièrement compact des composants et une réduction de la taille du compresseur.

Nous avons mis au point ces adaptations en collaboration avec le constructeur, Thales Laser. Les caractéristiques obtenues sont résumées dans le Tableau 1.



Figure 9. Principe de l'amplification à dérive de fréquences (CPA). Les valeurs données sont des ordres de grandeur donnés à titre d'illustration.

Longueur d'onde centrale	793 nm
Largeur de bande	16 nm
Énergie par impulsion	350 mJ
Durée d'impulsion	70 fs sech ²
Puissance crête	5 TW
Fréquence de répétition	10 Hz
Diamètre du faisceau en sortie	30 à 50 mm
Réglage du <i>chirp</i>	70 fs à 2 ps, (positif ou négatif)
Stabilité de l'énergie	2,5 % RMS sur 400 tirs
Dimensions	3,5 x 2,2 m

Tableau 1. Caractéristiques du laser Téramobile

Le principe de notre laser CPA et son agencement dans le laboratoire mobile sont résumés sur la Figure 10. Les impulsions ultrabrèves sont produites dans un oscillateur Ti:saphir (Compact Pro, Femtosource), puis allongées temporellement dans un étireur et amplifiées dans une chaîne composée successivement d'un amplificateur régénératif et

II. Le laser Téramobile

de deux amplificateurs multipassages. L'impulsion est ensuite recomprimée temporellement dans un compresseur avant d'être émise dans l'atmosphère. À ce stade, tous les composants optiques sont réflectifs pour éviter les dommages dus à la très forte intensité des impulsions. Les diagnostics sont installés au-dessus de la table, où de l'espace est réservé pour des instruments supplémentaires nécessaires ponctuellement pour des expériences spécifiques.



Figure 10: Schéma d'implantation du Téramobile. Le système laser est composé d'un oscillateur (Femtosource Compact Pro) pompé par un laser YAG (Verdi, Coherent) (L1), un étireur (L2), un amplificateur régénératif et un préamplificateur multipassage (L3) pompés par un YAG (Compact, Thales) (L4), un second amplificateur multipassages (L5) pompé par deux lasers YAG (SAGA, Thales) (L6), et un compresseur (L7). Les alimentations électriques des lasers et leurs échangeurs de chaleurs sont installés sous la table dans un compartiment isolant (C). L'optique d'émission (S) (voir Figure 12) et l'électronique de contrôle sont placées au-dessus de la table. Le système de détection (D) est détaillé sur la Figure 14.

Compensation de la dispersion de la vitesse de groupe

S'il sert, comme dans toute chaîne CPA, à recomprimer les impulsions laser une fois amplifiées, le compresseur du Téramobile a également un rôle spécifique lié aux expériences à longue distance. En effet, les applications atmosphériques des impulsions laser ultrabrèves impliquent de longues distances de propagation, parfois de l'ordre de plusieurs kilomètres. À cette échelle, la dispersion de la vitesse de groupe (DVG) dans l'air ne peut pas être négligée. Sur 1 km de propagation, la DVG dans l'air étire les impulsions émises par le Téramobile. D'une durée initiale de 70 fs et d'une largeur de bande intrinsèque de 16 mm, on obtient des impulsions fortement *chirpées*, d'une durée

de 1 ps. Ce *chirp* réduit d'un facteur 10 la puissance de l'impulsion. La production d'effets non-linéaires est donc fortement handicapée.

Cependant, ce handicap peut être tourné à notre avantage. En effet, il est possible de dérégler le compresseur de manière à émettre des impulsions dont le *chirp*, dit *négatif*, sera compensé au premier ordre par la DVG de l'air sur une distance prédéterminée (Figure 11) [11,14]. Dans ce but, l'un des réseaux du compresseur du Téramobile est monté sur une platine motorisée, dont la course de 50 mm permet, à raison d'un *chirp* nominal de 43 fs/mm, de précompenser la DVG sur des distances allant jusqu'à 1,5 km. Il est ainsi possible de contrôler la distance à laquelle la filamentation pourra se produire. Cependant, un autre paramètre doit être pris en compte lorsque l'on souhaite contrôler la position du début de la filamentation : malgré le chirp qui réduit sa puissance, il se peut que l'impulsion atteigne la puissance critique et commence à s'autofocaliser. Dans ce cas, la filamentation se produira avant que l'impulsion ne soit refocalisée temporellement, mais à une distance plus grande que celle nécessaire à filamenter une impulsion non *chirpée*.



Figure 11. Principe de la précompensation de la dispersion de la vitesse de groupe

L'optique d'émission

Les impulsions laser sont transportées de la sortie du compresseur aux hublots d'émission du laboratoire mobile par un système optique entièrement réflectif, de manière à éviter toute dégradation du faisceau à la traversée de milieux transparents. Ce système d'émission permet également de régler le diamètre initial du faisceau et sa focalisation. En effet, ces paramètres ont une grande influence sur la distance à laquelle la filamentation se produit. Ainsi, étendre le faisceau réduit son intensité, et permet d'éviter que le faisceau ne s'auto-focalise à courte distance, voire endommage la fenêtre de sortie du laboratoire mobile. De même, comme nous l'avons vu au chapitre

précédent, la focalisation et le diamètre initial du faisceau sont essentiels pour contrôler	la
distance de filamentation, via la formule de Marburger (I.4).	

Distance focale	10 m à légèrement divergent
Grandissement	2,7
Diamètre maximum du faisceau	15 cm
Stabilité de pointé	0,1 mrad sur tout l'intervalle de focales accessibles
Angle hors-axe	6°
Longueur	2,5 m
Précision du mouvement de translation	12,5 µm

Tableau 2. Caractéristiques du télescope d'émission



Figure 12. Télescope d'émission. En haut : configuration fortement focalisée (< 10 m). cx: miroir convexe, f = 75mm, cc: Miroir concave, f = 200mm. l'ensemble composé de cx et du miroir de renvoi est monté sur une table de translation motorisée à longue course.

 - - : Axe optique entre les miroirs sphériques, correspondant à l'axe de la translation. En bas : configuration légèrement divergente. - - - : chemin d'émission directe du faisceau

Pour contrôler ces paramètres, nous avons construit un télescope hors-axe (Figure 12 et Tableau 2), avec un grandissement de 3, soit un diamètre du faisceau de 10 cm en en sortie. Il est basé uniquement sur des optiques réflectives équipées de traitements diélectriques, de manière à éviter tant les dommages aux optiques que la distorsion du

front d'onde. Pour minimiser les aberrations, le télescope s'étend sur toute la longueur de la salle laser. Il est installé au-dessus de la table du laser, à laquelle il est rigidement lié (Figure 10, S). Sa géométrie en Z permet de régler la focalisation grâce à un unique mouvement de translation. Le télescope peut également être court-circuité pour émettre directement un faisceau d'environ 3 cm de diamètre. Le faisceau peut être émis soit verticalement pour des mesures dans l'atmosphère, soit horizontalement afin de le suivre continûment tout au long de sa propagation. Il peut également être émis au travers du système de détection Lidar de manière à réaliser des mesures coaxiales. Le faisceau peut être balayé sur $\pm 10^{\circ}$ à chacune de ces fenêtres d'émission. Nous avons également construit un système externe de balayage tridimensionnel qui permet d'émettre le faisceau laser dans une direction arbitraire.



II.2 Le laboratoire mobile « Téramobile »

Figure 13. Le Téramobile à Tautenburg

Le laser Téramobile et son équipement sont installés dans un conteneur maritime standard, dont les caractéristiques sont détaillées dans le Tableau 3. Les lasers fs-TW étant particulièrement sensibles aux vibrations mécaniques et aux chocs, nous avons conçu l'ensemble du système optique, y compris les télescopes d'émission et de réception, comme une seule unité rigide, liée à la structure extérieure du conteneur par des systèmes d'amortisseurs en caoutchouc. Cette suspension permet de transporter le Téramobile partout dans le monde et de l'utiliser dans pratiquement n'importe quelles conditions météorologiques. Depuis cinq ans, nous avons ainsi utilisé le Téramobile dans des conditions d'altitude, de température, d'humidité et de précipitations très diverses, de la neige de Tautenburg (Figure 13) aux sommets du Nouveau Mexique à 3200 m d'altitude.

Nous avons conçu le laboratoire mobile lui-même en partenariat avec Impres GmbH (Bremen, Allemagne). Sa construction a été assurée par TSU (Bremerhaven, Allemagne). La Figure 10 présente une vue schématique de son aménagement. Le laboratoire est divisé en deux pièces, le mur de séparation assurant l'isolation thermique et électromagnétique. La première pièce est réservée au laser, ainsi que l'alimentation électrique des lasers de pompe, les électroniques de contrôle, les diagnostics et le télescope d'émission. La seconde pièce accueille la détection Lidar ainsi que les fonctions d'infrastructure telles que la distribution électrique, le conditionnement d'air, la distribution d'eau de refroidissement et un espace de stockage. Cette pièce sert également de salle de contrôle pendant les expériences.

Dimensions extérieures	Conteneur ISO 20 pieds
Dimensions intérieures	5,70 m x 2,15 m x 2,20 m
Poids total, équipement compris	10 t
Puissance électrique	25 kW
Stabilité en température (salle laser)	±1°C
Température extérieure	-20°C à +35°C
Humidité extérieure	0 à 100%
Hublots	2x Ø 25 cm, 2x Ø 45 cm
Certifications	din, IEC, VDE, CEE, NEMKO, CSC

Tableau 3. Caractéristiques du laboratoire mobile Téramobile

Pour assurer un fonctionnement stable du laser femtoseconde, le contrôle de la température est séparé en trois volumes découplés :

- la salle de contrôle, qui joue un rôle de sas
- la salle laser, où la stabilité de la température est la plus critique
- un caisson étanche et isolé sous la table laser, refroidi par un échangeur de chaleur air-eau dédié, et qui regroupe l'ensemble des alimentations des lasers de pompe, gros producteurs de chaleur.

Grâce à son dimensionnement généreux, le conditionnement d'air permet par tous les temps d'ouvrir complètement les hublots d'émission du laser, de manière à éviter les effets non-linéaires dans la vitre elle-même. La sécurité oculaire est toujours une question essentielle dans les applications des lasers. Un laser térawatt dans le proche infrarouge, comme le Téramobile, ne peut par définition pas respecter les normes en la matière. Un Lidar auxiliaire est donc nécessaire pour détecter les aéronefs qui pourraient passer dans le faisceau, et arrêter le laser afin d'éviter tout accident.

II.3 Systèmes de détection

Détection Lidar interne



Figure 14. Détection Lidar du système Téramobile. Miroir primaire (40 cm, D1) ; spectromètre (Chromex 500ism, f = 500 mm) monté verticalement (D2) et équipé de deux détecteurs : ICCD (Princeton) et photomultiplicateur (Hamamatsu) / photodiode à avalanche (Licel) (D3) ; canal de dépolarisation (D4) ; miroirs d'émission coaxiale (D5) ; télescope horizontal pour les mesures de propagation (D6)

Le système interne de détection (Figure 14) est principalement conçu pour des mesures Lidar. Il peut fonctionner dans une configuration coaxiale ou bistatique. Le télescope de réception, de type Newton, est monté verticalement. Son miroir primaire a un diamètre de 40 cm. La détection est assurée par un spectrographe équipé au choix d'un CCD intensifié permettant des mesures résolues temporellement (donc

spatialement) et spectralement, ou d'un photomultiplicateur ou d'une photodiode à avalanche fournissant une haute résolution spatiale. Un canal de dépolarisation est également disponible.

Un second télescope, horizontal, est également disponible pour des mesures de rétrodiffusion de la lumière blanche produite dans le faisceau laser, en lien avec des mesures in-situ visant à caractériser le faisceau au cours de sa propagation. Chaque télescope peut être relié à chaque canal de détection par fibre optique. Les détecteurs disponibles (ICCD entre 190 et 950 nm, photomultiplicateur Hamamatsu de 350 à 1700 nm, photodiode à avalanche au silicium de 700 à 1100 nm et InSb de 1,5 à 2,5 μ m), et les réseaux installés dans le spectrographe assurent une sensibilité de 190 nm à 2,5 μ m. Le canal de dépolarisation permet pour sa part des mesures jusqu'à 5 μ m.

Laboratoire mobile de caractérisation du faisceau

Afin d'observer le faisceau laser après sa propagation sur une distance arbitraire, nous avons développé un laboratoire mobile de caractérisation, intégré dans une remorque pouvant être déplacée continûment le long du faisceau. Cette remorque contenait un laboratoire d'optique autonome équipé d'un conditionnement d'air, d'une table optique, d'une table de travail et de son propre groupe électrogène.

Pour assurer la sécurité des opérateurs lorsqu'il est placé dans le faisceau, le laboratoire n'avait pas de fenêtre. La seule ouverture sur l'extérieur était constituée d'un échantillonneur mécanique constitué d'un bras articulé de 1,5 m, au bout duquel une fibre optique collectait la lumière diffusée sur un écran de téflon. Le bras permettait d'échantillonner la lumière à travers le faisceau à chaque distance de propagation. On obtenait ainsi une image tridimensionnelle du faisceau au cours de sa propagation. Malheureusement, ce laboratoire mobile de caractérisation n'a jamais pu fournir de résultats au-delà de ses premiers tests. Il a en effet été détruit par un incendie lors de son transport vers le lieu de sa première campagne opérationnelle.

II.4 Conclusion

Intégrer un laser femtoseconde-térawatt dans un conteneur était un pari risqué, compte tenu des contraintes d'espace et les précautions nécessaires quant à l'environnement tant mécanique que thermique d'un tel laser, sans parler des conditions de propreté lors de campagnes sur le terrain. L'équipe du Téramobile a relevé ce défi, et a ainsi ouvert la porte à des applications des lasers de cette classe hors du laboratoire, y compris dans des conditions difficiles.
II. Le laser Téramobile

Le Téramobile est réellement opérationnel depuis 2001, après deux ans de conception, de mise au point et d'apprentissage. Il est, encore aujourd'hui, un outil unique au monde qui suscite beaucoup d'intérêt dans la communauté des lasers ultrabrefs de forte puissance, et qui nous a permis de réaliser de nombreuses campagnes sur des sujets très variés, décrites dans les chapitres suivants.

En autorisant des expériences de terrain, le Téramobile permet d'étudier les applications atmosphériques des lasers ultrabrefs de forte puissance. En préalable à ces études, il est nécessaire de caractériser la propagation des impulsions femtosecondetérawatt dans l'atmosphère, dans des conditions aussi proches que possible de la réalité. Ces conditions impliquent bien sûr de longues distances de propagation (de l'ordre de quelques kilomètres), mais aussi l'influence de gradients de pression ou de température. Elles impliquent aussi de mieux caractériser la propagation perturbée par des intempéries, par exemple la pluie ou un brouillard.

La propagation à grande distance implique également des puissances élevées, très supérieures à la puissance critique, qui vaut 3 GW dans l'air à 800 nm. Dans ces conditions, le faisceau ne s'autofocalise pas dans son ensemble, mais se divise en cellules contenant chacune quelques puissances critiques, et qui donnent chacune naissance à un filament. Lorsqu'une cellule donnée a dissipé trop d'énergie, le filament concerné finit et rend son énergie au « bain de photons » qui l'entoure. Des cellules peuvent alors se réarranger pour former de nouvelles structures [18], de sorte que la filamentation se poursuit de manière dynamique.

Or, la modélisation de tels processus implique de fortes énergies, des diamètres de faisceau importants et de longues distances de propagation, le tout avec une résolution élevée tant transversalement (quelques microns, afin de résoudre les filaments) que temporellement et longitudinalement (à cause en particulier du caractère catastrophique de l'effet Kerr). Les temps de calculs deviennent donc déraisonnables pour des distances d'intérêt atmosphériques [55,54,66,67], ce qui interdit de se reposer sur une description théorique issue de modèles numériques.

De même, la forte non-linéarité des processus mis en jeu interdit toute extrapolation rapide des résultats obtenus à puissance réduite à l'échelle du laboratoire. L'étude expérimentale de la propagation d'impulsions laser femtoseconde-térawatt dans des conditions atmosphériques réelles, que permet le Téramobile, est donc bien indispensable en vue de développer les applications souhaitées.

Dans ce chapitre, je m'intéresserai à la caractérisation de la filamentation multiple, à la mise en évidence de la filamentation à très grande distance (quelques kilomètres), à l'étude du contenu spectral de la lumière blanche, ainsi qu'à l'interaction des filaments avec des nuages de gouttes d'eau. Ces trois quatre feront l'objet des quatre paragraphes suivants. Je ne détaillerai pas des résultats plus spécifiques, concernant en particulier la dépendance en pression de la filamentation [68]. Le lecteur intéressé pourra se reporter aux publications correspondantes.

III.1 Propagation d'impulsions fs-TW en régime de multifilamentation [58,69]

Nous nous sommes intéressés dans un premier temps à caractériser la filamentation multiple. Pour cela, il est nécessaire de suivre un faisceau de forte puissance (quelques TW) sur des distances de plusieurs dizaines à quelques centaines de mètres : en autorisant les mesures en champ libre en extérieur, le Téramobile a rendu possible ce type d'expériences. L'objectif de nos mesures était double. D'une part, par cette première observation de la filamentation sur de longues distances, il s'agissait de tester le modèle de l'instabilité modulationnelle proposé par Mlejnek *et al.* [55]. Selon ce modèle issu de simulations numériques à courte distance, la filamentation est un processus dynamique au cours duquel des cellules locales dans le profil transverse du faisceau donnent naissance à des filaments qui se propagent sur de faibles distances avant de disparaître et de « rendre » leur énergie au « bain de photons » que constitue le faisceau. Cette énergie est alors disponible pour contribuer à la formation d'autres filaments dans de nouvelles cellules. Dans cette description, la longueur macroscopique de filamentation n'est pas liée à celle, microscopique, des filaments individuels.

D'autre part, ces mesures visaient à valider des schémas de simulation numérique mis au point par l'équipe de Luc Bergé au Département de Physique Théorique Appliquée du CEA. En effet, les limitations des calculs numériques complets, dits 3D+1, c'est-à-dire modélisant la propagation d'une impulsion selon ses trois dimensions spatiales et le temps, interdisent d'utiliser ce type de technique pour simuler la propagation de faisceaux de plusieurs centimètres de diamètre, sur plusieurs dizaines de mètres. L. Bergé et ses collaborateurs ont donc proposé d'abandonner une dimension, en moyennant le faisceau selon l'axe temporel, de manière à se limiter à un calcul 2D+1. Il est alors possible de conserver sur les dimensions restantes une résolution suffisante : en particulier, résoudre les filaments nécessite une résolution transverse de l'ordre de 10 μ m, soit 1000 x 1000 cellules pour un faisceau de plusieurs centimètres. Cependant l'abandon d'une dimension constitue une hypothèse forte qu'il s'agit de valider.

Afin d'atteindre ces objectifs, nous avons suivi l'évolution du profil du faisceau issu du Téramobile au cours de sa propagation sur 50 mètres. Le profil du faisceau était observé sur un écran que nous avons déplacé le long du faisceau. Nous l'avons enregistré grâce à un appareil photographique numérique équipé d'un filtre coupant les longueurs d'onde visibles et ne laissant passer que l'infrarouge, de manière à ne pas laisser perturber le profil enregistré par le continuum de lumière blanche. Le temps d'ouverture de l'appareil était ajusté de manière à n'enregistrer qu'une impulsion laser par image. La comparaison des images pour des impulsions laser successives à une distance de propagation donnée montre que, si la position des filaments individuels varie de tir à tir, l'aspect global de leur répartition reste constant.

La Figure 15 présente deux profils de faisceau ainsi obtenus, comparés aux résultats des simulations correspondantes, réalisées grâce au modèle numérique 2D+1 en utilisant le profil initial du faisceau (z = 1 m) pour conditions initiales des calculs. Les mesures à chaque distance étant réalisées pour des tirs différents, les fluctuations du laser et de l'atmosphère entre deux mesures interdisent d'espérer un accord exact entre les simulations et les mesures. Cependant l'accord est qualitativement excellent, puisque les simulations reproduisent l'aspect du profil du faisceau, et en particulier la densité des filaments, mais aussi les motifs qu'ils forment. De tels motifs incluent en particulier la nucléation des premiers filaments sur un anneau situé en périphérie du faisceau, là où le gradient d'intensité donc d'indice de réfraction non-linéaire est le plus important. Un tel accord permet donc de valider le code de simulation numérique à 2D+1 : ce code a été ainsi pu être employé pour interpréter d'autres mesures, en particulier concernant le spectre du supercontinuum dans l'ultraviolet (paragraphe III.2) et la propagation de filaments dans le brouillard (paragraphe III.4).



Figure 15. Profil spatial mesuré (en haut) et simulé (en bas) d'impulsions laser transportant 700 puissances critiques, pour deux distances de propagation. Les zones indiquées de 1 à 3 mettent en valeur les similitudes qualitatives des profils. Le diamètre du faisceau est de 5 cm environ.

Cependant, l'observation du profil du faisceau sur un écran ne donne pas d'indication sur la validité du modèle de l'instabilité modulationnelle. En effet, cette technique de mesure ne donne aucune information sur la longueur des filaments individuels observés à une distance donnée. Pour cela, il est nécessaire d'observer le faisceau dans son ensemble, et pour une impulsion unique. Nous avons pu réaliser cette mesure grâce à un générateur d'aérosols placé sous le vent du faisceau, de manière à générer un brouillard homogène sur presque 10 m le long du faisceau. Ce brouillard était suffisamment léger pour ne pas perturber la propagation des impulsions laser, mais suffisamment dense pour permettre de visualiser le faisceau. Le faisceau était alors observé impulsion par impulsion depuis l'avant, avec une légère parallaxe. Le résultat est présenté sur la Figure 16 dans le cas d'un faisceau légèrement focalisé (f ~ 40 m). Trois structures filamentaires longues de plus de 8 m apparaissent clairement. Les simulations numériques réalisées par L. Bergé et son équipe montrent que, si l'instabilité modulationnelle prévaut dans le régime « libre » de propagation en amont du foyer, ce dernier induit un « forçage » suffisant pour réorganiser le faisceau à son voisinage, et donner naissance à des piliers optiques se propageant de manière stable sur plusieurs mètres.



Figure 16. Piliers optiques générés au-delà du foyer par la propagation d'impulsions laser transportant 760 puissances critiques, légèrement focalisées (f ~ 40 m). Les discontinuités des piliers optiques sont dues à des inhomogénéités du brouillard. L'échelle de distance non-linéaire est due à la faible parallaxe de l'observation

Cette série d'expériences illustre les possibilités ouvertes par un système comme le Téramobile. Ce dernier autorise en effet des expériences relativement simples, mais impossibles à réaliser sans disposer d'un laser femtoseconde pour une expérience de terrain. Or, de telles expériences, même simples, sont riches d'enseignements. Ainsi, la caractérisation horizontale de la filamentation multiple sur une distance de 50 m nous a permis de valider une approche nouvelle pour les simulations numériques. Elle nous a également permis d'observer indirectement l'instabilité modulationnelle et de caractériser comment l'influence d'une légère focalisation du faisceau permet d'y mettre fin en générant un régime de propagation non décrit jusqu'ici, dans lequel quelques filaments stables ou *piliers optiques* se forment à partir du bain de photons issu de l'instabilité modulationnelle.

III.2 Filamentation verticale à longue distance [46]

Pour mieux connaître le comportement des impulsions femtoseconde-térawatt lors d'expériences où le faisceau est émis verticalement, nous nous sommes intéressés à la propagation verticale du Téramobile dans l'atmosphère. La propagation verticale permet d'étudier comment les variations de température et de pression avec l'altitude modifient les processus de propagation non-linéaire [70]. Malgré la difficulté des calculs à cette échelle de distance, un modèle numérique prévoît un effondrement du faisceau sur luimême à une altitude de 20 km pour des paramètres laser bien choisis [54]. Cependant, ce calcul étant basé sur une approche variationnelle, fortement simplifiée, la vérification expérimentale est nécessaire. De plus, par rapport à des expériences de propagation horizontale, la propagation verticale nous affranchit de la turbulence observée au voisinage du sol.

Cependant, la caractérisation des filaments en altitude est techniquement difficile. Les techniques classiques sont toutes basées sur une mesure locale : conductivité électrique [29,30,32] fluorescence de l'azote [71], sonométrie [72] ou détection hétérodyne d'un rayonnement sub-térahertz [73]. Elles ne peuvent donc pas être utilisées pour caractériser la propagation verticale d'impulsions laser ultrabrèves et de forte puissance dans l'air sur une distance de plus de 20 km. Nous avons donc observé le faisceau à distance grâce à un télescope astronomique de 2 m. Ces mesures constituent les premières données expérimentales sur la propagation non-linéaire dans un milieu dilué avec un gradient connu de pression et de température. Nous nous sommes également intéressés à l'influence des paramètres du laser, en particulier du *chirp* et de la focalisation du faisceau, sur la génération de lumière blanche : ces données sont utiles pour l'optimisation des mesures Lidar.

Dispositif expériemental

Les expériences ont été réalisées en plaçant le Téramobile à une distance de 30 m du grand télescope de l'observatoire de Tautenburg (Thüringer Landessternwarte), près de Jena [74]. Nous avons utilisé ce télescope de 2 m de diamètre, et de 4 m de focale, en configuration d'imagerie (Schmidt). Les images étaient enregistrées par un CCD de 2048 x 2048 pixels, avec une résolution angulaire de 6 μ rad/pixel. Le capteur CCD était sensible de 350 à 1000 nm. Le temps d'intégration s'échelonnait entre 1 s et 360 s, voire 1 h exceptionnellement. La bonne linéarité du CCD et sa dynamique sur 16 bits nous ont permis d'intercalibrer en intensité des images acquises avec des temps d'intégration différents.

Dans la plupart des expériences, le Téramobile était émis sous forme d'un faisceau collimaté avec un diamètre initial typique de 3 cm à $1/e^2$. Quelques mesures ont

également été réalisées avec un faisceau focalisé. Par ailleurs, trois valeurs de chirp ont été utilisées, correspondant d'une part à des impulsions courtes légèrement précompensées pour la DVG, avec une durée initiale de 150 fs ; et d'autre part à des impulsions longues, soit fortement compensées, soit fortement anticompensées pour la DVG (600 fs dans les deux cas). Nous avons vérifié que le désalignement occasionné par un changement de *chirp* ou de focalisation est inférieur à \pm 0,3 mrad



Figure 17. Principe de l'imagerie du faisceau. (a). Profil du faisceau sur un nuage ou une couche de brume ; (b) image latérale du faisceau. Les images réelles (voir aussi la Figure 18) combinent ces deux composantes.

Le Téramobile étant situé à 30 m de l'axe du télescope, ce dernier peut simultanément observer

- une image d'une section du faisceau, projetée sur la base d'un nuage ou d'une couche de brume, qui se comportent comme un écran
- une image latérale du faisceau sur une large gamme d'altitudes, grâce à la diffusion Rayleigh de la lumière transportée. Dans ce dernier cas, l'altitude peut être déterminée par triangulation, et vérifiée par en mesurant indépendamment l'altitude des nuages grâce au système de détection Lidar installé dans le Téramobile.

Les images réellement observées sont une combinaison de ces deux composantes (Figure 17). Avant analyse, les images sont déconvoluées de la fonction de flou induite par la profondeur de champ limitée du télescope, qui est par construction mis au point sur l'infini.

Des images ont été enregistrées dans plusieurs bandes de longueur d'onde, au moyen de filtres en verre coloré, décrits dans le Tableau 1. Afin de tenir compte de la forte dynamique du spectre de lumière blanche (voir le paragraphe III.2), qui s'étend sur plusieurs ordres de grandeur [75,76], nous avons évalué la contribution de la longueur d'onde fondamentale au signal total détecté à travers chaque filtre. Cette évaluation est basée sur une intégration du spectre mesuré en laboratoire [75]. Les filtres B et BG, dont la réjection à 800 nm est meilleure que 10⁻¹⁵, peuvent être considérés comme bloquant complètement la longueur d'onde fondamentale.

Symbole	Filtre	Bande de transmission, associée à l'efficacité du détecteur CCD (nm)		Contribution de la fondamentale	Description
		10% de T_{max}	50 % de T_{max}	au signal transmis	
В	Johnson B+BG39, 8+2 mm	370 - 510	390 - 480	-	Lumière blanche (bleu)
BG	BG39, 3 mm	340 - 610	370 – 580	-	Lumière blanche (visible : bleu-vert)
Ι	Johnson I, 8 mm	750 – 1000	770 – 950	50 %	Fondamentale
RG	RG850, 3 mm	830–1000	840 - 970	15 %	Lumière blanche (infrarouge)

Imagerie à longue distance et à haute résolution de la propagation non-linéaire d'impulsions laser térawatt

La Figure 18a présente une image du faisceau émis collimaté avec un diamètre initial de 3 cm, acquise dans le canal de la longueur d'onde fondamentale. La diffusion élastique est détectée jusqu'à une altitude de 25 km avec un temps d'intégration de 1 s, le plus court permis par l'instrument utilisé. Des mesures similaires dans la bande bleuvert (filtre BG, Figure 18b) montrent la grande efficacité de génération du continuum de lumière blanche par automodulation de phase. En l'absence de la couche d'aérosols à haute altitude, nous avons pu détecter la lumière blanche rétrodiffusée depuis des altitudes supérieures à 18 km, avec un temps d'intégration de 360 s.



Figure 18. Image typique du faisceau, acquise par la caméra CCD du télescope de l'observatoire de Tautenburg. (a) Longueur d'onde fondamentale, temps d'exposition 1 s. (b) Bande bleue-verte (filtre BG), temps d'exposition 180 s. L'échelle de couleur indique l'intensité normalisée par le temps d'exposition. Les deux échelles sont donc comparables. Les bandes horizontales sont les étoiles traversant le champ de vue du télescope. La non-linéarité de l'échelle d'altitude provient de la triangulation. Les deux images correspondent à une légère précompensation de la DVG.

L'image du faisceau sur la base d'un nuage tel qu'un cirrus, ou d'une couche d'aérosols, peut être utilisée comme une mesure à distance du profil du faisceau. La profondeur de pénétration du faisceau dans cet écran peut générer de légères distorsions, de même que la diffusion multiple. Comme nous le verrons au chapitre suivant, ces distorsions constituent une source d'information très riche sur la couche d'aérosols en cause. Cependant, dans nos conditions expérimentales, des simulations numériques nous ont permis de vérifier que l'influence de la diffusion multiple est nettement inférieure à 10 %. Par ailleurs, les fluctuations dues aux inhomogénéités du nuage sont lissées par le moyennage sur le temps d'intégration. La Figure 19 montre un exemple d'un tel profil sur une fine couche de cirrus à une altitude de 9,6 km, mesuré dans la bande RG (proche infrarouge) pour un faisceau initialement focalisé (f = 25 m). Une double structure y est clairement visible. Cette structure est très similaire à celle observée à la sortie du laser présenté en médaillon sur la Figure 19. Malgré la propagation non-linéaire du faisceau, celui-ci conserve donc une mémoire à long terme de son profil initial, dont la structure globale survit à l'instabilité modulationnelle.



Figure 19. (a) Profil du faisceau sur une couche d'aérosols (cirrus) à 9,6 km d'altitude. La double structure du faisceau (focalisé avec f = 25 m) est clairement visible. Elle correspond au profil initial du faisceau montré en médaillon. La réglette sur la gauche donne l'échelle d'intensité. (b) Coupe d'intensité selon la ligne en pointillée portée sur l'image (a).

Filamentation à haute altitude

Comme nous l'avons vu plus haut, deux paramètres du laser jouent un rôle clé pour contrôler la propagation non-linéaire et la filamentation : la compensation de la DVG, qui joue un rôle équivalent à une focalisation temporelle, d'une part, et d'autre part la focalisation spatiale, ajustée par le télescope d'émission. La Figure 20 montre le profil du continuum de lumière blanche (filtré spectralement selon la bande B) à une altitude de 6 km, produit par un faisceau collimaté avec une légère précompensation de la DVG, soit une durée d'impulsion initiale de 150 fs. Un anneau de 32 m de diamètre (soit 5,4 mrad, ou 2,7 mrad de demi-angle au sommet) et de 6 m de largeur (1 mrad) est clairement visible sur l'image, autour de l'impact du faisceau proprement dit (Figure 20 a). Il s'agit de la projection de l'émission conique issue de filaments dans le faisceau. L'ouverture du cône vu du sol correspond à l'angle d'émission de l'émission conique à la longueur d'onde considérée [15,60,61]. On peut donc en conclure que les filaments à l'origine de cette émission conique sont localisés au voisinage du sol (voir Figure 20b). Ce résultat est cohérent avec des mesures horizontales dans les mêmes conditions, où la filamentation démarrait à 8 m et finissait à 35 m [65].



Figure 20. (a) Profil et coupe du faisceau, sur un nuage à 6 km, dans la bande B, avec une légère précompensation de la DVG. L'émission conique apparaît comme un anneau clairement visible. (b) Principe de l'imagerie de l'anneau d'émission conique, par un filament à basse altitude. (c) Coupe du profil (a) et simulation de l'émission conique (voir le texte pour les détails). (d) et (e) Mêmes données que (a) et (b) pour une plus importante précompensation de la DVG, qui pousse les filaments à haute altitude (2 km) et réduit le diamètre de l'anneau sur la base du nuage.

La Figure 20c présente une coupe du profil d'intensité du faisceau, passant à travers le maximum d'intensité de la Figure 20a. Afin de simuler cette courbe, on néglige la dépendance spectrale de la lumière blanche sur l'intervalle de longueurs d'onde où le filtre B est ouvert. Le spectre mesuré est alors assimilé à la courbe de transmission du

filtre B. On considère alors les variations de l'angle de l'émission conique en fonction de la longueur d'onde provenant de la littérature [60,60,61]. Cette relation de dispersion, convoluée avec le spectre, fournit un profil spatial de l'émission conique, que l'on superpose à la tache centrale correspondant au profil initial (gaussien) du faisceau. Le profil ainsi obtenu est en bon accord avec le profil expérimental, mis à part un contraste légèrement dégradé dans le dernier cas, à cause d'un léger flou de l'image. En intégrant radialement les deux composantes du profil simulé, on estime en outre que l'émission conique contient 65 % du total de la lumière blanche émise, contre 35 % pour la tâche centrale. Il s'agit là de la première estimation du poids relatif de l'émission conique dans le continuum de lumière blanche.

En répétant la même démarche avec des impulsions davantages *chirpées*, soit une durée initiale de 600 fs, on compense la DVG sur de plus grandes distances. Dans ce cas, l'anneau se réduit, et vient former un épaulement au pic central, qui, lui, est indépendant du *chirp* (Figure 20d). En considérant que l'angle de l'émission conique ne dépend pas non plus du *chirp* [60], cette réduction du diamètre de l'anneau projeté sur la base du nuage est la signature d'un filament plus proche du nuage, c'est à dire à plus haute altitude (Figure 20e). L'ajustement sur les courbes expérimentales donne une altitude des filaments à $2 \pm 0,5$ km, l'incertitude étant essentiellement due à l'étroitesse de l'épaulement. Des résultats similaires sont obtenus dans l'intervalle spectral bleu-vert de la lumière blanche (filtre BG). Cette estimation est la première preuve de la possibilité de générer des filaments à une altitude de l'ordre du kilomètre.

Focalisation et divergence du faisceau

Hors de la couche d'aérosols, la diffusion Rayleigh fournit une image latérale du faisceau. En mesurant le diamètre du faisceau en fonction de l'altitude, on a ainsi accès depuis le sol à la divergence globale du faisceau. Nous avons observé le faisceau entre 600 m et 20 km d'altitude grâce à un assemblage de 8 images obtenues en balayant le télescope le long du faisceau. À la longueur d'onde fondamentale et pour un faisceau émis collimaté, la divergence observée est presque constante sur l'intervalle d'altitude considéré. Elle vaut 0,16 mrad (demi-angle à $1/e^2$), soit trois fois la divergence initiale du faisceau. Cette divergence est sensiblement indépendante du *chirp*. Elle pourrait être liée à une focalisation globale du faisceau au foyer non-linéaire. Par contre, lorsque l'on focalise le faisceau, ce dernier est moins divergent que l'on ne l'attendrait d'après l'optique géométrique (Figure 21). La différence est de l'ordre de 0,6 mrad. Autrement dit, le faisceau dans son ensemble se parallélise partiellement au voisinage du foyer. La propagation non-linéaire ne concerne donc pas uniquement les filaments, mais également le faisceau dans son ensemble comme l'ont prédit Mlejnek *et al.* [55]. Cependant, aucune propagation non-linéaire du faisceau dans son ensemble comme l'ont prédit Mlejnek *et al.*

observée à haute altitude, en contradiction avec le modèle de Sprangle *et al.* [54] qui prévoit un effondrement du faisceau sur lui-même à environ 20 km d'altitude.



Figure 21. Divergence du faisceau (filtres I et B) à 4,8 km d'altitude, pour une légère précompensation de la DVG. Les deux échelles verticales s'appliquent indifféremment à toutes les données. Pour un faisceau parallèle, le point gris correspond à la limite de diffraction.

Nous avons également observé que le continuum de lumière blanche généré par l'automodulation de phase est plus divergent que la longueur d'onde fondamentale. Pour un faisceau émis collimaté, le demi-angle de divergence est de 0,7 mrad dans la bande du filtre B, contre seulement 0,16 mrad dans la fondamentale. Cette divergence est plus grande que la limite de diffraction du faisceau dans son ensemble, mais reste inférieure à ce que donnerait la diffraction de la lumière blanche à la sortie d'un filament de 100 µm. On peut donc penser que les filaments disparaissent en s'évasant progressivement, et finissent avec un diamètre d'environ 300 μ m. Ce diamètre a d'ailleurs été observé en laboratoire par Lange et al. [77]. La faible divergence de la lumière blanche pourrait aussi être liée à sa recollimation par effet Kerr après la fin du filament, ou à une émission cohérente de lumière blanche (Chin et al. parlent à ce propos de « laser blanc » [59]) par plusieurs filaments se comportant comme des sources ponctuelles en phase, dont l'interférence génèrerait un lobe d'émission étroit. Quoi qu'il en soit, cette faible divergence est favorable au Lidar, puisqu'un demi-angle de divergence de 0,7 mrad est du même ordre de grandeur que le champ de vue de la plupart des systèmes de détection Lidar.

Lorsque le faisceau est émis focalisé, la lumière blanche reste plus divergente que la fondamentale. Plus précisément, la divergence de la lumière blanche est égale à la convolution de la divergence du faisceau dans la longueur d'onde fondamentale, avec l'angle de l'émission conique issue d'un filament [60,60,61]. Elle correspond donc à un schéma où les filaments sont également répartis dans le faisceau et forment un « bouquet » dont la divergence est celle du faisceau lui-même. À l'intérieur de ce bouquet, l'émission conique est identique à celle que le filament émettrait s'il était seul (Figure 22).



Figure 22. Représentation schématique de la structure du faisceau telle que le suggèrent les mesures de divergence

Efficacité de génération de la lumière blanche

Outre la divergence de la lumière blanche, l'efficacité de sa génération est un paramètre clé pour les applications Lidar. Pour estimer cette efficacité, nous avons comparé les intensités avec les filtres I (fondamentale) et B (lumière blanche). L'intensité était estimée en intégrant l'ensemble du profil du laser rétrodiffusé sur la base d'un nuage à une altitude de 4750 m, soit bien au-delà de l'altitude où est générée la lumière blanche. Comme le montre la Figure 23, l'efficacité de conversion de la longueur d'onde fondamentale en lumière blanche est d'autant plus grande que le faisceau est focalisé. Ainsi, malgré un diamètre trois fois plus petit et donc une intensité initiale 10 fois plus élevée, le faisceau collimaté génère un signal 50 fois plus faible qu'avec une distance focale de 16 m. L'intensité au foyer est donc le paramètre crucial pour obtenir une automodulation de phase efficace. Comme on peut s'y attendre, la précompensation de la DVG influence fortement l'efficacité de conversion. Ainsi, dans la bande BG, deux

impulsions d'une durée initiale de 600 fs mais de *chirps* ont des efficacités de génération de la lumière blanche dans un facteur de 1 à 6.



Figure 23. Efficacité de conversion du laser vers la lumière blanche à 4,8 km dans la bande du filtre B. Le signal pour f = 30 m est en-dessous de la limite de détection, soit 2 x10⁻⁴.

Ces résultats montrent qu'il est possible, en jouant sur le *chirp* et la focalisation du laser, de contrôler les processus non-linéaires afin d'optimiser la génération de lumière blanche. Cependant, la « luminosité » de la source, exprimée en W/sr/nm, est une combinaison de l'intensité émise et de la divergence du faisceau. Focaliser davantage n'est donc pas toujours la solution la plus favorable au Lidar. Toutefois, dans notre cas, il est possible de maximiser la génération de lumière blanche en focalisant le faisceau sans que la divergence ainsi obtenue ne dépasse le champ de vue typique d'un détecteur Lidar : toute la lumière blanche produite peut alors effectivement être détectée. Des résultats semblables ont également été obtenus récemment dans l'ultraviolet [76].

Conclusion

En conclusion, l'observation directe de la propagation verticale d'impulsions laser femtoseconde-térawatt dans l'atmosphère nous a permis de démontrer un comportement non-linéaire non seulement des filaments, mais également du faisceau dans son ensemble [55]. En effet, le faisceau est partiellement recollimaté après le foyer non-linéaire. Nous avons également montré que la filamentation peut se produire à une altitude de 2 km, ce qui est essentiel pour la plupart des applications envisagées.

Nos résultats sont par ailleurs utiles pour optimiser la génération de lumière blanche afin de maximiser les signaux Lidar. Cependant, pour compléter les informations obtenues grâce aux images acquises depuis le sol, des mesures *in situ*, éventuellement horizontales, sont nécessaires pour caractériser plus précisément la propagation nonlinéaire, en particulier à des échelles de distance de l'ordre de 500 m à 5 km. Des résultats dans ce sens ont d'ailleurs été obtenus depuis par nos collègues Téramobilistes de Palaiseau qui ont pu confirmer l'observation de filaments à grande distance [47]. Par ailleurs, nos résultats étant limités au domaine visible, des expériences analogues dans l'infrarouge permettraient de déterminer si les comportements sont identiques des deux côtés du spectre.

III.3 Le spectre de la lumière blanche

Le spectre du continuum de lumière blanche est source d'intérêt depuis sa découverte dans les années 1970 [21,78,79]. Cependant, ce n'est qu'avec les puissances crêtes très élevées autorisées par la technique CPA que ce type d'étude a pu être étendu aux milieux dilués. Ainsi, la génération d'harmoniques élevées jusqu'à 150 nm, ou de lumière blanche dans le proche infrarouge (900 nm) ont été observées dans les gaz rares sous pression [80]. Pour notre part, nous nous sommes intéressés à caractériser le spectre du continuum généré à pression atmosphérique dans l'air. Ces mesures sont cruciales pour les applications au Lidar, puisqu'elles permettent de caractériser la source de lumière blanche utilisée dans les mesures multipolluants à distance.

Composante visible et infrarouge du continuum de lumière blanche [75]

Dans un premier temps, nous avons mesuré le spectre de la lumière blanche, en particulier dans l'infrarouge jusqu'à 4,5 μ m. Cette région spectrale couvre la bande d'absorption des composés organiques volatils (COVs) entre 3 et 3,5 μ m. Or, le fort recouvrement entre les spectres des nombreuses espèces composant le cocktail des COVs nécessite des mesures à large bande spectrale afin de déconvoluer les spectres des différentes espèces. Les expériences ayant été réalisées avant la construction du laser Téramobile, nous avons utilisé un laser du LOA à Palaiseau (« *salle jaune* ») fournissant des impulsions 60 mJ, dont la durée minimale de 35 fs (soit 2 TW à 800 nm) est allongée à 86 fs par la dispersion dans une lentille de focalisation.

Nous avons caractérisé la lumière blanche du visible à l'infrarouge moyen grâce à un jeu de détecteurs. Dans le visible, un analyseur optique multicanaux (Chromex 500 IS, f/8; gamme spectrale : 400 nm –1000 nm ; réseau de 150 traits/mm équipé d'un capteur CCD intensifié Princeton Instruments 576, offrant 576x394 pixels) fournissait une résolution de 1,28 cm⁻¹. Dans l'infrarouge, nous avons utilisé un spectromètre à prisme Zeiss, avec une résolution de 5 nm entre 400 nm et 2,7 μ m, ainsi q'un

spectromètre à prisme à double passage (Perkin-Elmer) de 27 cm de focale équipé d'un prisme en LiF offrant une transmission jusqu'à 10 μ m. Ces deux spectromètres étaient équipés d'une photodiode au germanium (600 nm – 1800 nm) ou d'un détecteur InSb refroidi à l'azote liquide (1,5 μ m – 5,6 μ m, Hamamatsu). Dans tous les cas, des filtres (Corion) nous ont permis de couper la longueur d'onde fondamentale du laser.

Dans des expériences à l'échelle du laboratoire, les filaments sont produits en focalisant légèrement le faisceau, avec des lentilles de 8 et 10 m de distance focale. Nous avons vérifié que grâce à la faible épaisseur des lentilles (3 mm) et au grand diamètre du faisceau (25 mm à mi-hauteur) la génération de lumière blanche n'a pas lieu dans l'optique elle-même, mais au voisinage du foyer. Nous avons vérifié au moyen de mesures d'énergie qu'aucune perte significative ne se produit au voisinage du foyer au cours de la génération du continuum de lumière blanche.



Figure 24. Spectre de la lumière blanche générée au centre d'un faisceau laser fournissant des impulsions de 2 TW. La courbe est obtenue par l'assemblage des résultats de 4 détecteurs, représentés par des symboles différents. Les flèches marquent les principales bandes d'absorption d'intérêt atmosphérique

Afin de ne pas endommager les détecteurs, nous avons mesuré le spectre de la lumière blanche à environ 30 m de la lentille, soit 20 m après la formation des filaments. La Figure 24 montre le spectre de la lumière blanche, issu de l'assemblage de quatre spectres acquis avec les différents détecteurs sur les intervalles spectraux (300-900 nm, 700-1800 nm, 1,5-2,7 μ m et 1,5-4,5 μ m) dont les recouvrements ont permis l'intercalibration.

Le continuum est très large, puisque nous avons pu le détecter jusqu'à 4,5 μ m. La très rapide décroissance du spectre jusqu'à 2,5 μ m (4 ordres de grandeur entre 800 nm et 2,5 μ m) ralentit au-delà, avec une baisse de seulement un ordre de grandeur entre 2,5 et 4,5 μ m. Au-delà, le rapport signal sur bruit est trop faible pour permettre la mesure. La bande d'absorption de l'eau entre 1,8 et 2,5 μ m est visible sur le spectre, démontrant que le continuum de lumière blanche peut effectivement être utilisé pour la télédétection optique dans l'atmosphère.

Ces mesures nous ont également permis de vérifier la contribution dominante de l'automodulation de phase dans la génération du continuum de lumière blanche [27,80,21,78,79]. En considérant que le profil temporel des impulsions est gaussien, on peut estimer l'élargissement spectral grâce à la formule (I.10) pour la puissance considérée et 20 m de propagation : le spectre obtenu s'étend alors de quelques centaines de nanomètres à 5 μ m. Par ailleurs, on observe effectivement un rétrécissement du spectre lorsque la puissance crête du laser est réduite. Notons que les mesures présentées ici sont limitées à la partie visible et ultraviolette du spectre. Des mesures dans l'ultraviolet seront présentées plus loin dans ce chapitre.

Le continuum de lumière blanche s'étend donc dans l'infrarouge jusqu'à 4,5 μ m, laissant envisager des applications au Lidar. Cependant, les résultats présentés ici concernent un faisceau focalisé se propageant sur de courtes distances. Afin de mieux le caractériser à l'échelle de l'atmosphère, nous avons donc réalisé des mesures Lidar verticales du continuum de lumière blanche dans l'atmosphère.

Mesure par Lidar de la composante infrarouge du continuum de lumière blanche [81]

Ces mesures ont été réalisées dans l'infrarouge jusqu'à 1,7 μ m. En comparant la dépendance spectrale avec celle de la Figure 24, nous avons observé que la conversion de la fondamentale vers l'infrarouge est plus efficace sur une longue distance que celle mesurée en laboratoire.

Dispositif expérimental

Les résultats présentés ici ont été obtenus avec le Téramobile, le faisceau étant émis avec un diamètre initial de 9 cm. Le signal infrarouge rétrodiffusé était collecté par le télescope de 2 m de l'obervatoire de Tautenburg décrit plus haut (Paragraphe III.2), en configuration Coudé avec un champ de vue de 1,2 mrad. Le télescope était pointé vers l'impact du laser sur la base d'un nuage à une altitude de 4 km au-dessus du sol. La lumière collectée était imagée avec une ouverture numérique apparente de f/92 sur un photomultiplicateur infrarouge refroidi à l'azote liquide (Hamamatsu R 5509-72), sensible de 300 nm à 1,7 μ m. L'analyse spectrale du signal rétrodiffusé était assurée par l'utilisation de quatre jeux de filtres :

- Aucun filtre : intervalle spectral 300 nm 1,7 μ m
- Filtre passe-haut (Corion) $: 1-1,7 \, \mu m$
- Filtres en verre coloré Schott UG1 et VG12, d'épaisseur 1 mm chacun : 1,2-1,7 $\mu {\rm m}$
- Filtre passe-haut (Corion) $: 1,5-1,7 \, \mu m$

Le signal était intégré sur 16 tirs laser seulement (1,6 s) sur un oscilloscope numérique synchronisé avec le laser. Le *chirp* et la focalisation du laser ont été optimisés pour maximiser le signal à haute altitude dans l'infrarouge. Ces conditions optimales correspondent à une durée initiale de 200 fs et une focalisation à une distance de quelques dizaines de mètres.

Résultats et discussion

Comme le montre la Figure 25, le signal rétrodiffusé est détectable pour tous les jeux de filtres utilisés, même dans la bande spectrale de 1,5 à 1,7 μ m. Il s'agit là du premier enregistrement d'un signal Lidar dans l'infrarouge, obtenu grâce au continuum de lumière blanche.

Le très faible nombre de filtres à notre disposition ne permet pas une comparaison directe de ces résultats avec ceux obtenus au laboratoire et décrits au paragraphe précédant [75]. Nous avons donc considéré le problème inverse, à savoir la simulation du signal Lidar infrarouge dans les bandes spectrales considérées, en fonction de ce spectre de référence. Pour cela, nous avons considéré que la partie infrarouge du continuum était générée à basse altitude et propagée sur 8 km, soit 4 km jusqu'à la base du nuage, comme au retour. Nous avons pris en compte la courbe de transmission de chaque filtre ainsi que la réponse spectrale du photomultiplicateur. L'atmosphère étant particulièrement claire pendant la mesure, nous avons négligé toute présence d'aérosols à basse altitude, et considéré uniquement l'extinction du faisceau par la diffusion moléculaire (Rayleigh). La transmission atmosphérique a alors été calculée grâce à la base de données HITRAN [82] en considérant une humidité relative de 80 % et une température de 270 K, moyenne sur la colonne d'air entre 0 et 4 km telle qu'elle a été mesurée par radiosondage. Nous avons estimé l'efficacité de rétrodiffusion sur le nuage grâce à la théorie de la diffusion de Mie, en traitant la contribution de la diffusion multiple grâce à l'équation Lidar à diffusion multiple de Bissonnette [83]. Ce modèle prend seulement en compte les lobes avant et arrière de la diffusion de Mie et les approxime par des gaussiennes, ce qui permet un calcul semi-analytique. Cependant, afin de prendre en compte les rebonds dans la structure angulaire des grosses particules vers l'arrière, nous avons préféré modéliser le lobe arrière par un polynôme. D'après l'altitude et la densité du nuage, mesurées grâce au détecteur Lidar du Téramobile, nous avons considéré que le nuage était un altocumulus et nous l'avons modélisé par un nuage de gouttes d'eau sphériques suivant la distribution C.1 de Deirmendjian [5] :

$$dN/dr = C \cdot N_0 / r_0 \cdot (r/r_0)^6 \cdot \exp(-6r/r_0)$$
 (III.1)

où *r* est le rayon des particules, N(r) leur densité, $r_0 = 4 \ \mu m$ est le mode de la distribution de taille, et C = 388,8 est un facteur de normalisation.



Figure 25. Signal Lidar infrarouge pour les quatre jeux de filtres utilisés. Le signal attendu correspond au signal extrapolé d'après le spectre mesuré en laboratoire [75, Figure 24] pour une distribution normalisée C.1 centrée sur $r_0 = 4 \mu m$. Le signal ajusté est obtenu pour une décroissance exponentielle du spectre infrarouge, comme décrit dans le texte. Chaque courbe est normalisée à 1 pour la longueur d'onde fondamentale.

Nous avons déterminé la densité globale de particules N_0 par un algorithme autocohérent. Plus précisément, nous avons déterminé une première estimation de $N_0^{(1)}$ à partir du signal Lidar, en négligeant la diffusion multiple. $N_0^{(1)}$ est alors utilisé pour calculer la contribution de la diffusion multiple, cette contribution étant utilisé pour déterminer une seconde estimation, $N_0^{(2)}$ à partir du signal Lidar. La procédure est ensuite itérée. L'algorithme converge, après 4 itérations, vers une densité de particules $N_0 = 1,2$ cm⁻³, soit une extinction de 16,3 km⁻¹ à 800 nm dans le nuage. La contribution relative de la diffusion multiple est alors de 30 % à 800 nm et de 15 % à $\lambda = 2 \mu$ m. Cette valeur correspond effectivement à un altocumulus dense. Notons que seule la partie réelle de l'indice de réfraction a été prise en compte dans le calcul. Cependant, nous avons vérifié que le coefficient de rétrodiffusion, comme la diffusion multiple ne sont que très faiblement affectées par l'absorption dans les particules.

Or, les simulations ainsi conduites sous-estiment nettement le signal mesuré (voir la Figure 25). On atteint ainsi une différence d'un ordre de grandeur au-dessus de $1,5 \mu m$. Nous avons vérifié numériquement que ce résultat n'est pas un artéfact dû à un choix erroné du mode r_0 de la distribution. En effet, le résultat global n'est pas significativement affecté par des variations de r_0 au-delà de 2 μ m, c'est-à-dire pour la taille des modes que l'on peut s'attendre à trouver dans un nuage d'altitude.

Ce désaccord entre mesure et simulation est donc la signature d'une génération de lumière blanche dans la région spectrale considérée (1 - 1,7 μ m) plus efficace qu'à courte distance en laboratoire. Plus précisément, si on modélise la décroissance du spectre par une exponentielle comme c'est approximativement le cas dans les résultats de la Figure 24, cette décroissance est d'une décade par micron dans l'atmosphère, contre 3 décades par micron au laboratoire. L'efficacité de conversion vers la bande spectrale entre 1 et 1,7 μ m passe ainsi de 0,5 % à 7 %. On obtient ainsi une production de lumière blanche très efficace dans l'infrarouge, favorable à son utilisation pour la télédétection par Lidar.

Une telle augmentation de l'efficacité de conversion vers le continuum de lumière blanche pour de plus longues distances de propagation avait d'ailleurs déjà été observée dans la partie visible du continuum : alors qu'un plateau est observé dans le visible lorsque le laser est faiblement focalisé [14,16], une décroissance brutale est observée lorsque le faisceau est davantage focalisé [75].

Conclusion

Nous avons donc observé un signal Lidar dans l'infrarouge, jusqu'à 1,5 μ m, en provenance d'une altitude de 4 km. Grâce à la plus grande distance d'interaction dans l'atmosphère, le signal mesuré est environ 10 fois plus intense que les mesures en laboratoire ne le laissaient espérer. Si ces résultats peuvent être étendus à la bande des 3-3,5 μ m, où se situent les bandes d'absorption des COVs, ils pourraient ouvrir la voie vers un Lidar multipolluants dans l'infrarouge moyen, permettant une mesure individualisée des différents COVs grâce à un système de détection résolu spectralement.

Composante ultraviolette du continuum de lumière blanche [76]

Si l'infrarouge est la principale bande spectrale utile pour la mesure des polluants organiques, de nombreux autres polluants absorbent dans l'ultraviolet. C'est par exemple le cas de l'ozone, du dioxyde de soufre, des oxydes d'azote ou des aromatiques. Nous nous sommes donc également intéressés à la génération de continuum dans l'ultraviolet, et en particulier à sa formation au cours de la propagation des impulsions.

Dans ce but, nous avons réalisé des mesures résolues spatialement du spectre de la lumière blanche dans l'ultraviolet. Nous nous sommes intéressés à deux échelles : à l'échelle de quelques mètres sur un filament unique en laboratoire, et à l'échelle de quelques centaines de mètres dans l'atmosphère, dans un régime de multifilamentation. Pour les mesures en laboratoire, nous avons légèrement focalisé (f = 5 m) des

impulsions de 9 mJ pour 150 fs, soit 60 GW grâce à un miroir convexe. Le faisceau, d'un diamètre initial de 12 mm, produit un filament unique qui débute à une distance de 3,3 m du miroir. La partie UV-visible du continuum de lumière blanche était partiellement réfléchi sur une lame de verre, vers l'entrée d'un monochromateur équipé d'un photomultiplicateur. La résolution de ce dispositif est de 7 nm. Nous avons vérifié qu'aucune lumière blanche n'était générée dans la lame de verre. Pour les mesures à grande distance, nous avons utilisé le faisceau du Téramobile, émis verticalement, et légèrement focalisé (f = 10 m). Le continuum de lumière blanche était enregistré en fonction de la distance de propagation grâce à la détection Lidar du Téramobile, avec une résolution spectrale de 230 nm et une résolution spatiale de 10 m.

Le résultat à l'échelle du laboratoire est présenté sur la Figure 26. Peu après le foyer non-linéaire, l'automodulation de phase élargit fortement le spectre du laser. 1,26 m après le début des filaments, une bande de troisième harmonique, de 20 nm de largeur, apparaît autour de 270 nm. Deux mètres plus loin, l'intensité de la troisième harmonique se réduit et un plateau apparaît dans l'ultraviolet et le visible entre 300 et 500 nm. Ce plateau est par la suite conservé, y compris après la fin du filament. Le même comportement a lieu à grande échelle (Figure 27). À 105 m, la troisième harmonique apparaît sous la forme d'une bande de 50 nm de large autour de 270 nm. À partir de 135 m, le spectre évolue vers un spectre continu, extrêmement large de l'ultraviolet au visible. Ce spectre se propage ensuite à grande distance, tandis que la troisième harmonique s'atténue.

Le fait que la formation puis la réduction de la troisième harmonique suive la même dynamique à l'échelle du filament unique sur quelques mètres, et sur quelques centaines de mètres dans un faisceau en régime de multifilamentarion suggère que l'on observe dans ce dernier cas un effet cumulatif dans lequel la troisième harmonique puis le plateau ultraviolet-visible se développent au fur et à mesure de la propagation des filaments. Au cours de la propagation, la troisième harmonique d'abord générée dans le filament interagit ensuite avec la fondamentale par un mélange à quatre onde qui donne naissance au plateau ultraviolet-visible. Outre une génération de lumière blanche dans l'ultraviolet jusqu'à 230 nm, nous avons donc mis en évidence un mécanisme d'élargissement spectral du continuum de lumière blanche. Des simulations numériques réalisées par l'équipe de L. Bergé au CEA ont permis de confirmer cette interaction [76], et parallèlement de montrer que la troisième harmonique agit comme un processus de saturation qui se comporte comme une non-linéarité d'ordre 5 qui stabilise les filaments sans dissipation d'énergie, et leur permet donc de se propager sur une plus grande distance.



Figure 26. Évolution à courte distance du spectre du continuum de lumière blanche entre 200 et 500 nm. Les filaments débutent à 3,3 m de propagation



Figure 27. Évolution à longue distance du spectre du continuum de lumière blanche entre 200 et 500 nm

Conclusion

Les résultats ci-dessus montrent l'étendue du spectre de la lumière blanche. Générée par automodulation de phase, élargie encore par la génération de troisième harmonique et le mélange à quatre ondes entre cette troisième harmonique et le continuum, elle s'étend au moins de 230 nm à 4,5 μ m. Ce large spectre contitue la motivation d'origine pour développer les applications Lidar femtosecondes. Néanmoins, le Lidar, comme d'autres applications atmosphériques, nécessitent de propager les impulsions laser non pas dans un milieu idéal, mais dans l'atmosphère réelle. En particulier, pour les applications au contrôle de foudre, la pluie peut constituer un obstacle sérieux pour l'équilibre dynamique à l'origine de la filamentation. Le paragraphe suivant décrit les résultats que nous avons obtenu à ce sujet.

III.4 Un « laser perce-nuages »²

La transmission d'un faisceau laser à travers des nuages ou le brouillard est une question essentielle pour des domaines aussi variés que les télécommunication en espace libre, la détection des polluants atmosphériques par Lidar [14,63,101], la télémétrie, l'imagerie active, le contrôle de décharges électriques [84,85,86,87,88,89,90], voire pour mettre en évidence des effets de relativité générale dans le champ gravitationnel de la terre [91]. Un moyen prometteur pour remédier aux limites de la transmission optique à travers l'atmosphère (turbulence, dispersion et diffusion), pourrait être l'utilisation de la filamentation. Les filaments se propagent en effet comme des quasi-solitons [43] formant des structures localisées dans le faisceau, avec un diamètre typique de 100 μ m. La forte intensité (~10¹⁴ W/cm²) [92] et la densité d'électrons (~10¹⁵ à 10¹⁷ cm⁻³) [42] dans le filament, ainsi que la modification du milieu traversé qui en résulte, pourraient conduire à une moindre sensibilité aux fluctuations locales du milieu. Ainsi, la contribution non-linéaire à l'indice de réfraction induite par l'effet Kerr ($\Delta n ~ 10^{-5}$) est plus grande que celle produite par les fluctuations thermiques.

Les fluctuations thermiques ne sont pourtant pas le seul processus susceptible de perturber la propagation d'impulsions laser ultrabrèves dans l'atmosphère. Les particules d'aérosol, qu'il s'agisse de gouttelettes d'eau ou de poussières, peuvent atteindre une taille de plusieurs dizaines de microns, comparable au diamètre des filaments autoguidés, et sérieusement perturber l'équilibre dynamique qui préside à la propagation des filaments. Nous nous sommes donc intéressés à l'interaction de ces filaments avec des gouttes d'eau, tant isolées qu'en brouillard.

Interaction d'un filament avec une goutte isolée [93]

Dans une première série d'expériences, nous avons étudié en laboratoire l'interaction d'un filament avec une goutte d'eau isolée. Pour cela, nous avons légèrement focalisé des impulsions laser ultrabrèves (7 mJ par impulsion, une durée d'impulsion de 120 fs à 810 nm) à l'aide d'un miroir sphérique de 5 m de distance focale. Nous avons ainsi produit un filament d'environ 150 μ m de diamètre, se propageant sur une distance de plus de 3 mètres, soit 30 fois la longueur de Rayleigh. Pour une puissance laser donnée, le point de démarrage de la filamentation est stable à quelques centimètres près. Cette stabilité nous a permis de définir ce point comme origine pour définir la distance de propagation *d*.

² L'expression est de Cyrille Vanlerberghe, journaliste au Figaro, dans un article du 28 août 2003



Figure 28. Interaction d'un filament autoguidé avec une goutte d'eau de 50 µm de diamètre. (a) et (b) : énergie contenue dans le filament en fonction de la distance de propagation *d*, comptée à partir du début du filament, sans goutte (a), et en présence d'une goutte (b). Les inserts montrent le profil d'intensité du filament à deux distances, dans le cas d'une propagation libre. La courbe agrandie (x 10, en pointillés) montre la contribution du « bain de photons » entourant le filament. (c) : énergie perdue par le filament à cause de l'interaction avec la goutte (soit la différence (a) - (b)) : le filament regagne de l'énergie du bain au cours de sa propagation après l'interaction avec la goutte.

À d = 1 m, le filament interagit avec une goutte d'eau micrométrique calibrée. Cette goutte, de diamètre a, est générée par une buse piézoélectrique synchronisée avec le laser à un taux de répétition de 20 Hz, de manière à produire une goutte nouvelle à chaque impulsion laser. Le diamètre des gouttes est réglable de 30 à 100 μ m, pour reproduire une distribution de taille typique des nuages, en variant la tension et la durée du créneau appliqué sur le cristal piézoélectrique. On définit le paramètre d'impact *b* comme la distance entre l'axe du filament et le centre de la goutte. L'observation directe au microscope et la diffusion élastique aux petits angles nous ont permis de vérifier que *a* et *b* sont très bien reproductibles : $\Delta b/a < 0,1$, $\Delta a/a < 0,05$. Ce dispositif est le même que celui utilisé précédemment au laboratoire pour observer, avec des impulsions laser de moindre énergie, la génération de plasma nanométrique dans des microgouttes d'eau [94].

Nous avons tout d'abord mesuré le profil d'intensité du faisceau laser en propagation libre, en l'absence de goutte. Comme le montrent les inserts de la Figure 28, seule une fraction de l'énergie du faisceau se trouve dans le filament, tandis que le reste de l'énergie l'entoure et se propage parallèlement à lui, formant un "bain de photons"

d'environ 2 mm de diamètre. Nous avons mesuré l'énergie contenue dans le filament à une distance de propagation d en plaçant un film d'aluminium ou de cellulose dans le faisceau. Ce film bloque le « bain de photons », mais est perforé localement par la haute intensité du filament. L'énergie transmise par la perforation est mesurée par un bolomètre. L'erreur de mesure sur l'énergie causée par les fluctuations dans l'épaisseur du film a été estimée à ± 4 % d'un film à l'autre. Mais cette erreur est limitée à 1 % pour une position donnée sur le film.

En l'absence de goutte, à d = 1 m (c'est à dire au point où sera placée la goutte), le filament contient environ 35 % de l'énergie totale du faisceau. 1 m plus loin, cette proportion tombe à 13 %. Cette énergie est rendue au « bain de photons », qui se comporte comme un « réservoir d'énergie » [18] en équilibre dynamique avec le filament. En valeur absolue, l'énergie contenue dans le filament (Figure 28) décroît de 2,7 mJ à d = 1 m, à 0,25 mJ à d = 3 m. Au-delà, l'intensité locale dans le filament ne suffit plus pour perforer le film. Ce point nous permet de définir la fin du filament.

Après ces mesures préliminaires, nous avons placé une goutte de 50 μ m de diamètre au centre du filament, à une distance d = 1 m après le début de la filamentation. De manière étonnante, le filament n'est pas apparu perturbé par la présence de la goutte, bien que l'équilibre entre l'autofocalisation par effet Kerr et la défocalisation par le plasma joue un rôle critique à cause de la forte non-linéarité du processus de filamentation. De plus, la longueur du filament n'est pas affectée par l'interaction avec la goutte. Pour mieux comprendre ce résultat étonnant, nous avons mesuré l'énergie transportée dans le filament, en fonction de la distance de propagation afin de la comparer avec le cas de la propagation libre (Figure 28). La mesure à chaque distance est réalisée avec la même perforation du film pour les mesures avec et sans goutte. Ainsi, connaissant la précision de $\pm 1\%$ sur les mesures d'énergie, on peut déterminer la précision sur la mesure de la perte d'énergie, $\Delta(E_{\text{libre}} - E_{\text{gouttes}})$ / $(E_{\text{libre}} - E_{\text{gouttes}})$. On obtient entre ±30% et ± 7%, selon la valeur relative des pertes, comme le montrent les barres d'erreur portées sur la Figure 28. Juste après l'interaction avec la goutte (d = 1 m), la perte est limitée à 130 ± 40 µJ, mais l'équilibre est immédiatement rétabli. Par la suite, le filament semble regagner de l'énergie, la différence avec le filament non perturbé tombant à $40\pm3 \mu J$ à la fin du filament (d = 3 m). Ces mesures suggèrent que le filament reçoit du bain l'énergie nécessaire pour poursuivre sa propagation. Des prédictions théoriques [67,95], ainsi que de récentes simulations reproduisant les résultats expérimentaux [96,97], confirment cette interprétation en termes d'échanges d'énergie entre le filament et le « bain de photons » qui l'entoure.



Figure 29. Rôle de la taille et de l'opacité de la goutte. Le filament survit à l'interaction avec une goutte de 95 µm de diamètre, qu'il s'agisse d'eau (b), ou d'une goutte opaque (c). Les pertes d'énergie par rapport à la propagation libre (soit (c)-(a) et (b)-(a)) sont proportionnelles à la section efficace géométrique de la goutte.

Pour tester la robustesse de cet équilibre, nous avons reproduit l'expérience avec des gouttes plus grosses et opaques. Même des gouttes de 95 μ m de diamètre, qui interceptent l'essentiel de l'énergie contenue dans le filament, ne bloquent pas sa propagation, ni ne réduisent sa longueur (Figure 29). Les résultats sont similaires pour des gouttes transparentes (eau) et opaques (encre noire). La mesure des pertes d'énergie induites par les gouttes en fonction de *d* confirme que le filament regagne de l'énergie (0,2 mJ) du "bain de photons" au cours de sa propagation. La perte immédiatement après l'interaction avec la goutte (d = 1 m) est respectivement de 300 ± 35 et 370 ± 35 μ J pour une goutte transparente et opaque de 95 μ m. Ainsi, les pertes sont approximativement proportionnelles à la section efficace géométrique de l'obstacle inséré dans le filament. L'énergie de la zone du filament qui rencontre la goutte est diffractée sur l'obstacle, les interactions en volume dans la goutte ne jouant pas de rôle significatif. Ceci est confirmé par le fait que les pertes sont pratiquement insensibles à la composition de la goutte.

Ces expériences d'interaction du filament avec une goutte isolée démontrent que le filament est en équilibre avec le reste du faisceau. Le "bain de photons" entourant le filament lui fournit l'énergie nécessaire pour poursuivre sa propagation, voire le reconstitue tant que l'énergie restant dans le "bain" est suffisante. Ce résultat confirme l'observation symétrique selon laquelle un filament ne survit pas à la traversée d'un diaphragme qui bloque le « bain » [98]. De plus, les récentes simulations de L. Bergé *et al.* [97] montrent que seule la fraction du bain de photons la plus proche du filament, sur un diamètre d'environ 350 μ m, contribuerait significativement au nourrissage du filament. Cet ensemble constitué du coeur du filament sur 100 μ m et de la couronne de « bain » qui l'entoure, constituerait ainsi un système stable. Cette description fournit une interface entre le modèle de l'instabilité dynamique dans lequel le filament échange de

l'énergie avec le reste du faisceau, et la description de la filamentation en terme de quasisoliton.

Interaction d'un filament avec un nuage [93]

Les résultats précédents montrent que la survie des filaments sur une longue distance à travers un nuage ou un brouillard sera conditionnée par l'extinction de l'énergie du "bain" par la diffusion élastique sur les gouttes d'eau du nuage. Pour caractériser cet effet, nous avons réalisé une seconde série d'expérience dans laquelle le filament se propageait dans une chambre à nuages longue de 35 cm, ouverte aux deux extrémités pour laisser passer le faisceau laser. La distribution de taille des gouttes (diamètre moyen 4 μ m, largeur à mi-hauteur de la distribution 2 μ m) était mesurée grâce à la diffusion de Mie aux petits angles d'un laser Hélium-Néon. La transmission de ce même laser donnait accès à l'épaisseur optique $\tau = \ln (1/T)$, où *T* est la transmission. Simultanément, nous avons caractérisé la transmission du filament à travers le nuage et sa capacité à poursuivre sa propagation au-delà de la sortie du nuage.



Figure 30. Transmission de filaments à travers un nuage de gouttes d'eau de diamètre moyen 4 µm. Le filament n'est pas significativement perturbé par le nuage jusqu'à une épaisseur optique $\tau = 1,2$ (10⁵ particules/cm³, repère **B**), et traverse le nuage, sans toutefois pouvoir se propager au-delà, jusqu'à $\tau = 3,2$ (soit 4 10⁵ particules/cm³, repère **A**).

La Figure 30 montre l'énergie du filament transmise à travers le nuage en fonction de τ . Le filament se propage à travers le nuage jusqu'à une épaisseur optique de 3,2 (soit une concentration de gouttes de 4 x 10⁵ cm⁻³). Cependant, sa propagation au-delà du nuage ne dépasse alors pas quelques centimètres, à cause de la trop grande perte d'énergie par diffusion élastique subie par le bain : à la sortie du nuage, son énergie ne suffit plus pour continuer à nourrir le filament. En effet, la puissance transmise, soit 2,3 GW, est inférieure à la puissance critique P_c nécessaire pour que l'effet Kerr compense la diffraction. En revanche, pour une épaisseur optique de 1,2 (10⁵)

gouttes/cm³), le filament transmis se propage normalement au-delà de la sortie du nuage, avec une longueur proche de celle observée en propagation libre.

Comme le montre la Figure 30, la transmission du filament décroît exponentiellement avec la concentration de gouttes dans le nuage, comme on l'attend pour l'extinction par la diffusion élastique. Ainsi, les pertes d'énergie dans le bain par diffusion Mie dominent le processus et constituent la principale limite pour la transmission de filaments à travers des nuages et des brouillards.

Influence d'un brouillard sur la filamentation multiple [99]

L'épaisseur optique du brouillard utilisé dans nos expériences en laboratoire est typique de nuages tels que des cumulus ou des stratocumulus [100]. Afin d'étendre les résultats précédents à des échelles comparables à celles des applications à l'atmosphère, nous avons étudié la propagation à travers un brouillard du Téramobile en régime de multifilamentation, à une distance de 50 m. Pour cela, le faisceau était émis horizontalement et se propageait librement sur 40 m, avant d'entrer dans un brouillard de gouttes d'eau produit dans une chambre à nuages ouverte (Figure 31) [101]. Le faisceau se propageait ensuite sur 10 m à travers un brouillard approximativement homogène, dont nous avons estimé la densité en mesurant la transmission d'un laser Helium:Néon de basse puissance. La distribution de taille, mesurée par un analyseur optique (Grimm G 1-108), était centrée à 1 μ m, soit bien moins que le diamètre des filaments. Le faisceau était émis parallèle, avec un diamètre initial de 3 cm, et un chirp ajusté de manière à ce que la filamentation démarre peu avant que le faisceau n'atteigne le brouillard. La durée initiale des impulsions était alors de 600 fs, soit une puissance crête de 0,3 TW pour 220 mJ.

La propagation du faisceau à travers le brouillard était caractérisée par l'enregistrement de profils du faisceau sur un écran. L'enregistrement était réalisé au moyen d'un appareil photographique numérique, avec un temps d'exposition de 1/8 s de manière à ce que chaque image corresponde à une seule impulsion. Pour obtenir une image représentative du profil du faisceau sans être perturbée par la lumière blanche, nous avons utilisé un filtre pour n'acquérir les profils que dans l'infrarouge : nous avons montré que cette technique fournit une bonne approximation du profil du laser lui-même [58].

Des filaments sont visibles dans le profil du faisceau en sortie du brouillard dès que l'énergie transmise est supérieure à 25 mJ par impulsion (45 GW). Pour un nuage de 10 m de long et une énergie incidente de 220 mJ, cela correspond à une transmission de 15 %, soit un coefficient d'extinction de 0,2 m⁻¹. Ainsi, la filamentation peut survivre dans un brouillard, sur une distance comparable à la visibilité qui y règne. Dans le

brouillard, la densité de particules est $8,6x10^4$ cm⁻³, soit un libre parcours moyen de l'ordre de 5 m pour les photons, et seulement 1,5 mm pour un filament de 100 μ m de diamètre. Un filament rencontre donc en moyenne 68 gouttes d'eau par mètre de propagation. Cependant, le rayon des gouttes est environ 100 fois plus petit que le diamètre des filaments, de sorte que, à la lumière des résultats présentés ci-dessus sur des gouttes beaucoup plus grosses, on peut s'attendre à ce que les filaments eux-mêmes ne soient pas perturbés par les gouttes. L'influence du brouillard sur la propagation des filaments est donc essentiellement due aux pertes qu'il induit dans le « bain de photons », c'est-à-dire la partie de l'énergie du faisceau qui ne se trouve pas dans les filaments.



Figure 31. Chambre à nuages ouverte. Le nuage produit s'étend au-delà de la chambre à nuage, comme le montre la diffusion du faisceau laser arrivant de la gauche

Pour confirmer l'effet de l'extinction, nous avons enregistré les profils du faisceau à la sortie de la chambre à nuages, pour deux énergies incidentes, en propagation libre et en présence d'un brouillard avec 50% de transmission (0,07 m⁻¹, soit 3,2x10⁴ cm⁻³ et un libre parcours moyen 14 m pour les photons). Comme le montre la Figure 32, l'énergie transmise détermine le motif de la filamentation, et en particulier le nombre de filaments. Ainsi, les profils de faisceau pour des énergies transmises similaires (90 mJ, et 220 mJ avec une atténuation de 50%, soit 110 mJ transmis), et en particulier le motif formé par les filaments, sont comparables, avec des filaments essentiellement concentrés sur un anneau sur le bord du faisceau. Ainsi, le nuage joue le rôle d'un atténuateur affectant la propagation *via* l'extinction élastique du bain de photons.

Énergie initiale du laser	Propagation libre	Brouillard, transmission 50%
220 mJ		
	(a) $E_T = 220 \text{ mJ}$	(b) $E_T = 110 \text{ mJ}$
90 mJ	N.D.	-20
	(c) E _T = 90 mJ	(d) $E_{T} = 45 \text{ mJ}$

Figure 32. Profil du faisceau à la sortie de la chambre à nuages, dans le cas de la propagation libre (a, b) et en présence d'un brouillard long de 10 m (b, d)

Cette interprétation est confirmée par l'étude du nombre de filaments en fonction de la puissance transmise. On sait en effet que, pour des impulsions largement au-dessus de la puissance critique, le faisceau se divise en cellules contenant chacune quelques puissances critiques, et qui donnent chacune naissance à un filament. Pour chaque condition expérimentale de la Figure 32, nous avons calculé la moyenne du nombre de filaments sur six profils enregistrés (Figure 33). Un ajustement linéaire montre qu'un filament est formé par tranche de 15 GW de puissance transmise, soit 5 puissances critiques. Cette quantité est indépendante de la présence ou non du nuage. L'effet du brouillard est donc bien causé par la chute de la puissance crête des impulsions, c'est-à-dire à l'extinction linéaire ainsi qu'à un processus comparable à une dispersion modale.

Cette dispersion modale est due au fait que, dans un contexte où le libre parcours moyen des photons est très inférieur à la longueur du brouillard, la diffusion multiple doit être prise en compte. Or, elle autorise des trajectoires de longueurs différentes à travers le nuage. Lorsque le nuage a une transmission de 50 %, on peut calculer que l'étirement dû à la dispersion modale est de l'ordre de 100 fs et peut donc être négligé pour des impulsions de 600 fs. Néanmoins, lorsque la densité du nuage correspond à une transmission de 15 %, cet effet a une contribution significative puisqu'il double approximativement la durée d'impulsion.



Figure 33. Dépendance en puissance du nombre de filaments

Conclusion

Nous avons donc montré que les filaments générés lors de la propagation d'impulsions laser ultrabrèves et de forte puissance peuvent survivre à l'interaction avec une goutte d'eau même d'un diamètre comparable à celui des filaments. Ils sont également transmis à travers un brouillard dense, tant à l'échelle du mètre en laboratoire, qu'en régime de filamentation multiple sur plusieurs dizaines de mètres. Dans ce dernier cas, la distance de propagation des filaments est comparable avec la visibilité dans le nuage. Cette survie est liée à la capacité des filaments de se régénérer en attirant à eux l'énergie stockée dans le bain de photons pour se réalimenter.

Ces résultats sont particulièrement prometteurs pour les applications à l'atmosphère réelle. Nous verrons ainsi plus loin que nous avons pu déclencher et guider des décharges de haute tension sur 1,2 m sous une pluie artificielle de 1,4 mm/min, correspondant à une forte pluie [90] : il s'agit à ce jour des simulations en laboratoire les plus réalistes pour le déclenchement de foudre par laser. De même, des applications qui utilisent les filaments afin de déposer de hautes intensités sur un échantillon à analyser devraient fonctionner même dans un nuage ou au-delà. On peut en particulier penser à l'excitation d'effets non-linéaires dans des particules d'aérosols pour des mesures Lidar non-linéaires [101] ou à la télédétection R-FIBS [102], présentées plus loin (Paragraphe IV.3)

III.5 Perspectives : vers un modèle phénoménologique ? [103]

Les résultats présentés dans ce chapitre donnent un aperçu à la fois de la richesse des phénomènes physiques offerts par la propagation non-linéaire d'impulsions laser de forte puissance dans l'air, et des possibilités expérimentales que le Téramobile offre en la matière. Néanmoins, la forte non-linéarité des processus en jeu induit une grande sensibilité de la filamentation aux conditions initiales, en particulier au profil spatial et temporel des impulsions. De plus, elle interdit d'extrapoler les résultats par un changement d'échelle par exemple. Enfin, elle constitue une contrainte importante pour les calculs numériques, qui doivent être pratiqués à une très haute résolution spatiale et temporelle et nécessitent donc des puissances et des temps de calcul très importants, voire prohibitifs pour des simulations à l'échelle de la centaine de mètre ou du kilomètre.

Ces modèles numériques basés sur la résolution de l'équation de Schrödinger nonlinéaire (I.7) [54,55,66,67] fournissent des informations sur les processus physiques en oeuvre à l'échelle microscopique des filaments. Mais les applications ont fait émerger un besoin de modèles phénoménologiques pouvant reproduire certaines des caractéristiques essentielles de la filamentation, rapidement et sur des distances de quelques kilomètres. Il s'agit par exemple d'interpréter des signaux Lidar ou d'optimiser la filamentation à distance pour des applications au contrôle de foudre. On a alors besoin de prévoir la distance de filamentation, la longueur des filaments, ou encore l'intensité maximale à travers le profil du faisceau.



Figure 34. Distance de filamentation calculée par le modèle de Marburger [39] et par l'optique géométrique

Dans ce but, j'ai proposé une nouvelle approche basée sur l'optique géométrique. Grâce à une moyenne locale dans le calcul de l'intensité, ce modèle a la particularité de ne pas diverger numériquement aux points de convergence locale du faisceau, tels que le foyer non-linéaire. De la sorte, le calcul peut être poursuivi au-delà de l'apparition des premiers filaments, contrairement aux simulations antérieures basées sur l'optique géométrique [104,105,106,107,108]. Ce modèle phénoménologique donne ainsi une description macroscopique très satisfaisante de la propagation du faisceau : distance de filamentation (Figure 34), longueur des filaments ou intensité maximale en particulier. De plus, le tracé de rayons donne une vision intuitive du comportement macroscopique du faisceau, en mettant en évidence des zones d'autofocalisation locale, mais aussi d'autodéfocalisation temporaire (Figure 35). Ce type d'observation permet par exemple de comprendre la répartition spatiale en anneau des filaments dans le faisceau. L'optique géométrique fournit donc un modèle phénoménologique adapté à la description macroscopique de la propagation non-linéaire d'impulsions ultrabrèves de forte puissance dans l'air.



Figure 35. Simulation par tracé de rayons de la propagation d'une impulsion laser (7 mJ, 140 fs, rayon 1,5 mm à 1/e). Pour faciliter la lecture, seuls 20 rayons, espacés régulièrement à travers le faisceau, ont été représentés. L'auto-focalisation (1), l'auto-défocalisation (2) et la refocalisation (3) de rayons sont clairement visibles.

L'approche par l'optique géométrique n'est certainement pas la seule possible, ni la meilleure pour toutes les conditions. Néanmoins, elle illustre une voie possible pour offrir un support nécessaire pour interpréter et optimiser des résultats des applications présentées aux paragraphes suivants. D'autres modèles phénoménologiques, adaptés à des conditions expérimentales particulières seront probablement appelés à se développer à l'avenir, en fonction des applications des lasers femtoseconde. Leur développement constituera certainement une motivation supplémentaire pour la poursuite des études expérimentales de la propagation à grande distance dans l'atmosphère, telles que les résultats présentés dans ce chapitre.

IV. Télédétection laser non-linéaire : Lidar et LIBS

L'outil exceptionnel que constitue le Téramobile nous a permis, pour la première fois, de réaliser des mesures Lidar sur le terrain. Bien que très préliminaires, ces mesures nous ont permis de tester les deux voies offertes par les impulsions femtoseconde pour étendre la technique Lidar. D'une part, la lumière blanche produite dans les filaments nous a permis de réaliser une mesure multiparamètres (humidité, température) dans l'atmosphère, la diffusion multiple nous donnant en outre accès simultanément à la distribution de taille des aérosols. D'autre part, l'intensité portée par les filaments est telle qu'elle permet de générer des effets non-linéaires in-situ sur l'objet à analyser. Ainsi, en nous appuyant sur des résultats obtenus par Véronique Boutou au laboratoire, nous avons détecté à distance des aérosols dopés par des marqueurs biologiques, dans lesquels nous avons induit un signal de fluorescence induite à deux photons. Ces deux exemples seront développés successivement dans ce chapitre. Nous terminerons ce chapitre sur une troisième approche de l'analyse à distance par laser femtosecondetérawatt, que nous avons nommée R-FIBS (Remote filament-induced breakdown spectroscopy, spectroscopie à distance de plasma excité par des filaments) et qui peut être considérée comme un hybride du Lidar et du LIBS (Laser induced breakdown spectroscopy, spectroscopie de plasma excité par laser).

IV.1 Mesure Lidar multi-paramètres par Lidar basé sur la lumière blanche [109]

Les processus de nucléation et de maturation des nuages jouent un rôle important dans la modélisation de l'atmosphère, que ce soit à l'échelle météorologique ou climatologique [110]. En particulier, la croissance des gouttes et leur densité ont une influence déterminante sur la prévision des précipitations et sur l'albédo terrestre. Leur caractérisation nécessite des mesures continues de la distribution de taille à l'intérieur des nuages à une résolution en rapport avec les vitesses d'évaporation et de croissance, soit quelques dizaines de minutes. Or, les mesures aéroportées sont trop coûteuses pour des mesures de routine, et les radiosondages ne peuvent en pratique pas être répétés à la fréquence nécessaire. Les méthodes les plus prometteuses sont donc optiques, avec les Lidars multispectraux ou multi-champ de vue [5]. Ces techniques tirent parti de la forte dépendance de la figure angulaire diffusion de Mie, et de l'efficacité correspondante d'extinction, en fonction de la taille des particules et de leur distribution de taille.

Le Lidar multispectral [111,112] est plus adapté à des nuages peu denses, où la diffusion multiple peut être négligée. Il utilise plusieurs longueurs d'onde, par exemple les harmoniques d'un laser YAG. En comparant les signaux Lidar aux différentes longueurs d'onde, on peut ajuster des paramètres tels que la taille moyenne et la largeur d'une distribution de taille prédéfinie. On doit donc connaître (ou postuler) *a priori* la forme de
la distribution de taille, ainsi que la typologie des particules, en particulier leur composition (donc leur indice de réfraction), et leur forme. Sur ce dernier paramètre, un canal de dépolarisation peut être utilisé pour distinguer les particules sphériques, généralement liquides, des autres particules.

Dans le cas de nuages denses tels que ceux qui donnent lieu à des précipitations, la diffusion multiple et le Lidar multi-champ de vue (MultiFOV, ou Multi field of view) [83,113,114,115] est plus adaptée. Dans cette technique, le signal Lidar multi-diffusé est enregistré en fonction du champ de vue du détecteur. Comme la distribution angulaire de la diffusion dépend de la taille des particules, le halo de diffusion multiple aussi, On remonte ainsi à la distribution de taille. Mais le nombre de valeurs de champ de vue fournies par les systèmes MultiFOV classiques est très limité. Ce faible nombre de canaux, de même que l'utilisation d'une seule longueur d'onde, ne permet donc d'obtenir la distribution de taille des aérosols qu'au prix d'informations préalables sur le nuage étudié, par exemple l'intervalle de taille dans lequel on s'attend à trouver des gouttelettes.

De nouvelles techniques sont donc nécessaires pour améliorer la fiabilité et la sensibilité de mesure à distance de la distribution de taille des aérosols in-situ dans les nuages. Une caractérisation complète de la microphysique et de la micrométéorologie, et donc en particulier de la croissance des gouttes d'eau, nécessiterait également de connaître avec une bonne précision verticale les paramètres thermodynamiques de l'atmosphère, en particulier l'humidité relative et la température. La résolution offerte par les ballons-sonde est limitée par le nombre de ballons disponibles ainsi que par l'absence de contrôle sur leur trajectoire. Des Lidars DIAL (Differential Absorption Lidar, Lidar à absorption différentielle), tant aéroportés [116,117,118,119] que spatiaux [112,120,121,122], fournissent depuis longtemps des données de bonne qualité. Ils mesurent la concentration de vapeur d'eau et le profil de température d'après le profil de diffusion Rayleigh sur un modèle d'atmosphère adiabatique [123]. Le Lidar Raman [124,125] a également été utilisé dans ce but. Certains groupes tentent aussi d'utiliser des lasers à large bande spectrale (quelques nanomètres) [126,127] afin de s'affranchir des gradients verticaux dans le décalage Doppler et de l'élargissement des raies d'absorption avec la pression [128]. Mais le spectre est intrinsèquement limité à quelques dizaines de nanomètres par la largeur des lasers utilisés.

Nous nous sommes donc intéressés à l'usage du très large continuum de lumière blanche généré par les filaments pour réaliser des mesures spectrales à haute résolution sur un intervalle de longueurs d'ondes de plus de 200 nm. Ces mesures nous ont fourni non seulement la concentration de vapeur d'eau dans l'air telles que démontré antérieurement [13,14], mais également la température, et donc l'humidité relative. De plus, l'observation MultiFOV de la distribution radiale de la multiple sur la base des nuages nous donne accès à la distribution de taille des gouttes à l'intérieur de celui-ci. Ces mesures, qui nécessitent la même source laser et deux détecteurs indépendants, peuvent être réalisées simultanément, de manière à fournir une caractérisation multiparamètre à distance de la microphysique des nuages.

Dispositif expérimental

Pour les expériences décrites ici, le faisceau du Téramobile était émis collimaté, avec un diamètre initial de 3 cm environ. Les impulsions laser ont été légèrement *chirpées* pour précompenser la DVG, comme décrit au paragraphe II.1. La durée initiale des impulsions était de 150 fs pour les mesures de diffusion multiple, et 300 fs pour les mesures multispectrales. Les filaments étaient ainsi confinés à de basses altitudes, afin d'éviter qu'ils ne perturbent les mesures en facilitant la condensation de gouttes d'eau sur les charges contenues dans le plasma qu'ils génèrent [63]

Contrairement aux anciennes expériences de Lidar à lumière blanche utilisant des lampes à décharge, ou à des dispositifs dans lesquels un continuum femtoseconde était généré au sol dans un milieu non-linéaire [129], notre technique repose sur l'usage de la lumière blanche générée *in situ* dans l'atmosphère par les filaments. De ce fait, le spectre de la source ne peut pas être caractérisé précisément, d'autant qu'il dépend de nombreux paramètres tels que l'efficacité de la conversion dans différentes bandes de fréquences, de la distribution angulaire de l'émission du continuum, de l'altitude et de la longueur des filaments, ou encore de l'efficacité de rétrodiffusion linéaire et non-linéaire [62] de la lumière blanche. À défaut de pouvoir caractériser tous ces paramètres directement dans l'atmosphère, nous savons que le spectre de la lumière blanche est continu et qu'il est relativement lisse. Or, les raies d'absorption auxquelles nous nous intéressons sont très fines. Nous avons donc pu les déconvoluer du spectre de la lumière blanche, comme détaillé plus loin.

La détection était assurée par le télescope de 2 mètres de l'observatoire de Tautenburg, décrit au chapitre précédent. Le télescope était pointé sur l'impact du laser sur la base de la couche nuageuse étudiée. L'imagerie de la diffusion multiple a été réalisée en configuration Schmidt, avec un champ de vue de $0,6^{\circ}$, soit 30 fois supérieur au diamètre du laser, et avec une résolution de 6 μ mrad. Les spectres ont été acquis en configuration Coudé, avec un champ de vue de 1,2 arcsec et une ouverture apparente de *f*/46. Le signal était analysé par un spectromètre Échelle [130] avec une dispersion de 0,042 à 0,073 Å par pixel (15 μ m) du CCD (EEV limited, 16 bit de dynamique) dans l'intervalle spectral considéré (538 à 927 nm). La fonction d'élargissement de l'instrument a été mesurée. Elle est gaussienne, avec une résolution typique de 0,1 Å (0,1 cm⁻¹). Le signal était moyenné pendant quelques minutes (3 000 à 12 000 impulsions laser à 10 Hz). Toutes les mesures ont été corrélées avec les signaux Lidar

mesurés sur la détection intégrée au Téramobile, qui permettait de mesurer en temps réel l'altitude et l'épaisseur des nuages.

Mesure de la distribution de taille des particules par la figure de diffusion multiple

Nous avons vu au chapitre précédent que des couches nuageuses situées à quelques kilomètres d'altitude diffusent suffisamment la lumière pour permettre de les observer par imagerie. En particulier, l'impact du laser sur la base du nuage produit un halo important (Figure 18) caractéristique de la diffusion multiple à l'intérieur de celui-ci. Une fois corrigée de la parallaxe et déconvoluée de l'émission conique pour les longueurs d'onde hors de la fondamentale, une coupe à travers ce halo fournit la distribution angulaire de cette diffusion multiple. Nous avons ainsi obtenu, pour la première fois, un signal Lidar MultiFOV de très haute résolution angulaire (Figure 36). Nous avons exploité cette information particulièrement riche pour déterminer la distribution de taille des particules dans le nuage, *via* un ajustement sur le profil angulaire de diffusion multiple réalisé grâce à un algorithme génétique.



Figure 36. Distribution angulaire de la diffusion multiple. La différence entre la coupe du halo et le profil gaussien (en pointillé) correspond à la contribution de la diffusion multiple.

En effet, un algorithme génétique permet effectuer un ajustement sur un grand nombre de paramètres simultanément, ce qui nous a permis d'exploiter nos données sans connaissance préalable du nuage hormis le fait qu'il soit composé de gouttes d'eau, considérées comme sphériques compte tenu des conditions météorologiques, et donc traitées par la diffusion de Mie [131]. Le nuage est par ailleurs supposé homogène, tant horizontalement que verticalement. Nous avons considéré 18 classes de tailles, espacées régulièrement sur une échelle logarithmique entre 0,1 et 20 μ m. La divergence du laser (de profil gaussien) est également laissée comme paramètre libre afin de s'affranchir d'éventuelles erreurs dans sa mesure préalable (voir le paragraphe III.2).

Compte tenu de ces hypothèses, et connaissant grâce à la théorie de Mie le diagramme angulaire moyen de diffusion correspondant à chaque classe de taille, on peut calculer le profil angulaire de la diffusion multiple à l'intérieur du nuage pour une distribution de taille donnée. Pour cela, la diffusion d'ordre *n* est modélisée comme *n* événements indépendants de diffusion sur des gouttes d'eau, chacun de ces événements ayant une probabilité angulaire définie par le diagramme angulaire de diffusion moyen correspondant à la distribution de taille considérée. Entre deux événements de diffusion, les rayons se propagent en ligne droite, sur une longueur égale au libre parcours moyen d'un photon dans le nuage, soit $L_{ipm} = 1/(2\pi \cdot \sum N_i \cdot r_i^2 \cdot Q_s(r_i))$, où N_i est la densité de particules de la classe *i*, r_i le rayon correspondant, et $Q_i(r_i)$ l'efficacité de diffusion correspondante.



Figure 37. Profil angulaire de diffusion multiple à 800 nm simulé pour des nuages de gouttes de diamètres homogènes, pour un coefficient d'extinction $\alpha = 3,27 \times 10^{-2} \text{ m}^{-1}$, soit une profondeur de pénétration d'environ 30 m

Après avoir vérifié que la contribution de la diffusion d'ordres 4 et au-delà contribue pour moins de 5 % au profil angulaire de diffusion sur l'ensemble de l'intervalle de fluctuation des paramètres de la distribution de taille, nous avons restreint le calcul aux ordres 1 (diffusion simple) à 3. Le temps de calcul variant exponentiellement avec l'ordre, cette restriction réduit fortement le temps de calcul, et autorise le recours à l'algorithme génétique, dont la convergence impose l'évaluation d'environ 60 000 distributions de taille. Comme le montrent la Figure 37 et la Figure 38, le profil angulaire de la diffusion multiple résultant dépend fortement de la taille et de la densité des gouttes dans le nuage : c'est cette propriété qui autorise l'utilisation de ce profil pour déterminer la distribution de taille.



Figure 38. Profil angulaire de diffusion multiple à 800 nm simulé pour des nuages de gouttes de diamètre 2 μm, en fonction du coefficient d'extinction α. Les profondeurs de pénétration sont respectivement 30, 15 et 60 m.

Comme indiqué plus haut, nous avons choisi un algorithme génétique pour réaliser l'ajustement du profil de diffusion multiple car cette technique d'optimisation est particulièrement adaptée aux optimisations d'une fonction f (ou fonction de coût), que l'on sait calculer pour tout jeu de paramètres donnés, mais dont l'inversion explicite est impossible. Cette impossibilité interdit l'usage d'une technique déterministe. Ainsi, dans notre problème, on sait calculer le profil de diffusion multiple d'une distribution de taille donnée, mais non l'inverse.

On doit alors utiliser des techniques stochastiques, dont la plus connue est la méthode de Monte-Carlo. Cette technique consiste à générer au hasard des solutions potentielles et de calculer la valeur prise par la fonction *f* pour chacune d'entre elles. Parmi les solutions testées, on choisit alors la solution qui minimise (ou maximise) la fonction de coût. Mais cette méthode est particulièrement inefficace lorsque l'espace des solutions est vaste, et en particulier lorsqu'il est de dimension élevée. On doit alors recourir à des méthodes plus sophistiquées, telles que le recuit simulé ou les algorithmes génétiques [132], dont le but est d'exploiter la capacité de la méthode de Monte-Carlo à explorer l'ensemble de l'espace des solutions, tout en « orientant » le hasard de manière à explorer plus densément les régions de cet espace qui semblent les plus prometteuses. On peut ainsi simultanément rechercher la région d'optimum global parmi plusieurs optima locaux, et localiser finement l'optimum global en y concentrant spécifiquement une part importante des ressources de calcul.

Plus précisément, le principe de l'algorithme génétique repose sur une métaphore de la théorie de l'évolution de Darwin. Partant d'un ensemble (ou « population ») de solutions potentielles ou « individus » générées aléatoirement, on choisit les meilleures d'entre elles pour les combiner au hasard. Après des « mutations » aléatoires destinées à explorer aussi complètement possible l'espace des solutions, on obtient ainsi la population de l'itération (ou « génération ») suivante. Lorsque la population commence à converger vers une solution, on réduit progressivement les mutations, de manière à convergence de l'algorithme vers une solution unique et reproductible.

Les performances de notre ajustement illustrent la puissance d'un algorithme génétique pour un problème tel que le nôtre. L'algorithme converge au bout de quelques dizaines de minutes, après avoir évalué moins de 60 000 solutions potentielles. Ce chiffre, important en valeur absolue, est en réalité modeste pour un espace de solutions à 19 dimensions : la seule évaluation systématique des 2¹⁹ combinaisons possibles de 19 paramètres binaires nécessiterait à elle seule presque 10 fois plus d'itérations. Il est donc clair qu'une évaluation systématique de 19 paramètres à valeurs continues n'est pas envisageable.

La solution obtenue est présentée sur la Figure 39, et la distribution de taille correspondante sur la Figure 40. Le maximum de cette distribution est situé autour de 5 μ m, ce qui correspond au rayon médian généralement admis pour des stratus continentaux [133,134]. La contribution des gouttes de moins de 1 μ m au signal optique étant négligeable, l'incertitude sur les classes de tailles correspondantes est trop importante. Nous les avons donc omises sur la Figure 40. Le libre parcours moyen de 700 m et le coefficient d'extinction $\alpha = 1.4 \times 10^{-3}$ m⁻¹ sont compatibles avec l'intense

signal Lidar observé sur le Lidar auxiliaire et le fait que ce signal soit encore détectable à une profondeur de 1 km dans le nuage.



Figure 39. Ajustement par l'algorithme génétique de la distribution angulaire de la diffusion multiple pour les données expérimentales de la Figure 36. Données du 6 février 2002



Figure 40. Distribution de taille dans le nuage obtenu par l'ajustement de la Figure 39. Cette distribution est compatible avec celle d'un cirrus continental [133,134]

Ainsi, nous avons pour la première fois obtenu la distribution de taille et la concentration de gouttes d'eau d'un nuage par une méthode toute optique à distance. Ce résultat a pu être obtenu grâce à la combinaison de la richesse de l'information fournie par le Lidar Multi-FOV à haute résolution angulaire qu'a fourni le télescope

astronomique en configuration d'imagerie (Schmidt), combinée à la puissance d'un algorithme génétique pour extraire cette information grâce à un ajustement à 19 variables. La distribution de taille ainsi obtenue nécessite de ce fait peu de connaissance préalable du nuage étudié. La technique pourrait encore s'enrichir d'une détection multilongueurs d'onde grâce au continuum de lumière blanche. Nous disposons en effet également d'enregistrements MultiFOV dans le continuum de lumière blanche entre 400 et 500 nm. [46]. L'analyse simultanée de figures de diffusion multiple dans plusieurs bandes de longueurs d'onde, avec des profondeurs de pénétration différentes dans le nuage, pourraient même offrir une résolution spatiale selon la profondeur du nuage. Les mesures à une longueur d'onde ne peuvent en effet pas nous fournir cette résolution verticale puisque les images de diffusion multiple à une longueur d'onde sont intrinsèquement intégrées en profondeur.

Mesure de l'humidité relative

Outre la distribution de taille et la densité du nuage, une caractérisation complète de la microphysique des nuages nécessite de mesurer les paramètres thermodynamiques de l'atmosphère à leur voisinage, tels que l'humidité relative et la température. Nous avons réalisé ces mesures dans les mêmes conditions que celles de la mesure de taille des aérosols présentée au paragraphe précédent, de manière à montrer la faisabilité d'une mesure simultanée.



Figure 41. Spectre large bande à haute résolution de la transmission atmosphérique mesurée par LIDAR, illustrant la capacité du Lidar à lumière blanche à mesurer plusieurs espèces simultanément

Notre mesure repose sur l'analyse spectrale du continuum de lumière blanche rétrodiffusée sur la base de nuages situés à 4,5 km au-dessus du sol. Outre la mesure d'altitude, Lidar auxiliaire indiquait une profondeur de pénétration de moins de 100 m, négligeable devant l'altitude du nuage. Nous avons donc traité le nuage comme une cible solide. La Figure 41 montre le spectre de la lumière blanche entre 680 et 920 nm [63], incluant dans la même mesure la bande rovibrationnelle de l'eau centrée à 820 nm et la bande A de l'oxygène autour de 762 nm. Ce large spectre, recouvrant les bandes d'absorption de plusieurs espèces, illustre la capacité du Lidar à lumière blanche à réaliser des mesures multi-polluants, voire à déconvoluer des spectres de polluants présentant des interférences.

L'étendue spectrale de la mesure recouvre des raies d'absorption d'intensités très diverses, ce qui permet de choisir celles que nous utiliserons de manière à optimiser la sensibilité tout en évitant la saturation, en fonction de la concentration des espèces à mesurer. Afin de vérifier nos résultats, nous avons utilisé deux procédures d'analyse indépendantes, appliquées à deux spectres acquis dans des conditions laser distinctes. Les ajustements sont basés sur la base de données HITRAN 2000 [82].

La résolution instrumentale (0,1 cm⁻¹) est dix fois moins bonne que celle qui serait nécessaire pour réaliser des mesures DIAL de profils de pression ou de température en utilisant les raies d'absorption de l'eau ou de la bande A de l'oxygène [128,135]. Cependant, la largeur du spectre mesuré nous a permis de l'exploiter malgré cette résolution réduite. En effet, nous avons convolué la fonction d'élargissement instrumental, préalablement mesurée, aux spectres synthétiques produits lors de la procédure d'ajustement. Nous avons vérifié numériquement sur des spectres simulés que cette technique permet d'obtenir de bons résultats, l'élargissement spectral de la mesure ne perturbant pas la détermination de la température et de l'humidité.

Le large spectre lisse du continuum de lumière blanche, associé à la finesse des raies d'absorption, permet également de contourner le fait que la source de lumière blanche et la fonction de rétrodiffusion ne soient pas complètement caractérisées. En effet, nous savons que ces fonctions ont des variations lentes. Nous les avons donc ajustées comme une ligne de base lisse sur le spectre expérimental, comme il est d'usage par exemple pour le traitement de spectres en astronomie. Cette ligne de base est ensuite utilisée pour normaliser le spectre d'absorption sur l'intervalle spectral de la mesure.

Nous avons appliqué la première procédure d'ajustement à un spectre acquis à 22 h TU le 12 mars 2002. La bande A de O_2 (dont nous connaissons le rapport de mélange de 20,9 %) nous a fourni la température, ce paramètre étant ensuite utilisé comme entrée dans la mesure du rapport de mélange de la vapeur d'eau d'après sa bande d'absroption sur le même spectre. Dans cette analyse, les conditions

météorologiques stables nous ont permis de considérer un profil standard de pression atmosphérique et une décroissance de la température de 6,6 K/km. Ces profils verticaux ont été traités avec une résolution verticale de 100 m. Les paramètres libres étaient la température au sol (T_s), et l'altitude d'émission de la lumière blanche (z_{WL}). Le filament étant nettement plus court que l'altitude du nuage dans nos conditions expérimentales [65], nous le considérons comme ponctuel. Deux ajustements dans les bandes des 761-764 nm et des 766-769 nm donnent indépendamment $T_s = 287 \pm 1$ K et $z_{WL} = 550 \pm 100$ m.

Cette dernière altitude est compatible avec celle déterminée au paragraphe III.2 dans des conditions similaires (300 fs de durée initiale) par une méthode géométrique [46]. La température au sol est légèrement plus élevée que celle mesurée par la station météorologique de l'observatoire de Tautenburg pendant l'expérience (282 K). Mais le plus proche radiosondage disponible (12 mars 2002 à 23 h TU, Meiningen, à une distance de 100 km, Figure 42) montre que cette différence est due à un fort gradient de température au voisinage immédiat du sol, en dessous de l'altitude à laquelle la lumière blanche est émise. Comte tenu de ces éléments, la température au sol obtenue est donc crédible.



Figure 42. Température déterminée par un ajustement sur la bande A de O₂ dans le spectre de lumière blanche, et par la mesure de la radiosonde le plus proche disponible (Meiningen, 12 mars 2002, 23 h TU). L'altitude réduite est la hauteur au-dessus du sol

Nous avons utilisé le profil de température de la Figure 42, ainsi que l'altitude d'émission de la lumière blanche comme références pour déterminer l'humidité relative, supposée constante sur la colonne d'air considérée. En particulier, nous avons utilisé le profil de température pour convertir en humidité relative à chaque altitude les rapports de mélange de la vapeur d'eau. Nous avons mesuré ce rapport de mélange par un ajustement sur la bande 4v-overtone de l'eau entre 813 et 816 nm, ainsi qu'entre 825 et 829 nm (Figure 43) Nous avons ainsi obtenu une humidité relative de (49 ± 3) %, en bon accord avec la moyenne verticale de la mesure par radiosonde. (Figure 44). Ainsi, des mesures Lidar à lumière blanche ont, pour la première fois, fourni une mesure simultanée de plusieurs paramètres, donnant accès à la température et à l'humidité relative. L'accès simultané à ces deux paramètres est essentiel pour comprendre et modéliser la physique de la formation des nuages et des précipitations.



Figure 43. Ajustement de la bande d'absorption 4v-overtone de l'eau dans les régions spectrales 813-816 nm (a) et 825-829 nm (b) regions. Ligne continue : mesure ; pointillé gris : ajustement ; ligne grise continue : résidu de l'ajustement. La ligne continue est la ligne de base reconstruite (voir le texte pour les détails). Le chemin d'absorption de 9 km permet de détecter des raies d'absorption faibles, non tabulées dans Hitran 2000.

Nous avons vérifié ces résultats à l'aide d'une seconde procédure, dans laquelle la température moyenne et le rapport de mélange de la vapeur d'eau sont déterminées simultanément grâce à un unique ajustement sur la bande 4v-overtone entre 815 et 840 nm. Nous avons négligé l'altitude des filaments, considérant qu'ils se trouvent à proximité du sol [65]. Le chemin optique pour l'absorption est donc de 9 km. L'ajustement donne une humidité absolue de $0,38 \pm 0,01$ % et une température de 279,2 ± 0,4 K. Ces résultats correspondent à une humidité relative de 42 ± 3 % au sol, comparable avec le résultat de la première procédure.

Grâce à la largeur du continuum de lumière blanche, les mesures spectrales sur une large bande de longueurs d'onde nous ont donc permis de mesurer simultanément la température et l'humidité relative des masses d'air sous les nuages, avec des incertitudes compatibles avec les besoins des modèles météorologiques et climatologiques. Selon les variantes utilisées, la procédure d'inversion réalise des ajustements successifs pour chaque paramètre dans des bandes distinctes de longueur d'onde, ou un ajustement global sur une plage de longueurs d'onde plus large.



Figure 44. Humidité relative moyenne déterminée à partir du spectre d'absorption de la lumière blanche (pointillé). Le profil mesuré par radiosonde est donné pour comparaison. Le minimum d'humidité relative à 3 km est un artéfact dû à la traversée d'un nuage par le ballon-sonde.

Les résultats présentés dans ce paragraphe sont intégrés sur la colonne d'air entre le laser et le nuage. Leur analyse a donc nécessité une connaissance *a priori* de l'allure des profils verticaux d'humidité et de température. Même si les hypothèses que nous avons utilisées, en particulier l'utilisation d'un modèle standard d'atmosphère, sont ici validées par les données des radiosondages, elles constituent une faiblesse de la méthode. Elles peuvent en effet être source d'erreurs lorsque l'atmosphère réelle dévie par rapport à l'atmosphère standard. Pour y remédier, des mesures résolues spatialement sont nécessaires. Le Lidar à lumière blanche le permet, grâce à l'usage de détecteurs CCD intensifiés équipés d'une porte temporelle. On s'intéresse alors à la diffusion Rayleigh dans l'atmosphère libre au lieu de la diffusion Mie sur le nuage, ce qui correspond à une perte d'un facteur 100 à 1000 sur le signal. Mais cet inconvénient pourrait être compensé par une meilleure adaptation du télescope. En effet, avec un champ de vue de seulement 6 μ rad en configuration Coudé, soit plus de 100 fois moins que la divergence du laser (de l'ordre de 1 mrad), on perd une grande partie du signal. Adapter le champ de vue du télescope permettrait de conserver la même intensité de signal tout en réduisant le temps d'intégration d'un facteur 10. En différentiant par rapport à l'altitude le signal de lumière blanche rétrodiffusé, on pourrait ainsi obtenir des profils verticaux d'humidité et de température, ouvrant la voie vers une cartographie par Lidar de l'humidité relative dans l'atmosphère. Par ailleurs, la mesure à l'intérieur même du nuage serait possible. En effet, nous avons vu que la contribution relative de la diffusion multiple au signal Lidar total, en particulier sur l'axe, est faible. Cette contribution peut de plus être déconvoluée une fois que la distribution angulaire de taille dans le nuage a été déterminée. Il est donc en principe possible d'appliquer à l'intérieur du nuage les mêmes stratégies d'inversion que celles présentées ci-dessus, de manière à déterminer la température et l'humidité relative au sein du nuage.

Conclusion

Dans ce paragraphe, nous avons démontré qu'un Lidar à lumière blanche, basé sur la filamentation d'impulsions laser ultrabrèves au cours de leur propagation verticale dans l'atmosphère, permet en principe d'analyser simultanément les nuages (distribution de taille et densité de goutte) et les propriétés thermodynamiques (température, humidité relative) de l'atmosphère à leur voisinage. Ces deux mesures utilisent la même source laser et des diagnostics distincts mais compatibles. On pourrait donc l'utiliser pour des mesures simultanées. Bien que préliminaires, ces résultats ouvrent la voie vers une technique combinée, associant l'absorption différentielle de la lumière blanche et un Lidar MultiFOV à haute résolution. Obtenues de manière routinière, et associées à la capacité du Lidar de réaliser des cartographies bi- et tridimensionnelles, de telles données seraient précieuses pour la modélisation de l'atmosphère.

Cependant, les expériences présentées n'utilisent pas pleinement le potentiel de la technique. L'usage de plusieurs longueurs d'onde dans l'analyse des aérosols par Lidar MultiFOV pourrait offrir une distribution de taille plus précise, voire une résolution

verticale utile pour caractériser des nuages stratifiés. La même résolution verticale dans les mesures spectrales pourrait être fournie par des mesures spectrales résolues temporellement.

Enfin, pour un usage de routine, la question de la sécurité oculaire est cruciale. Les normes en la matière ne permettent pas de réaliser de telles mesures à 800 nm, où les puissances autorisées sont nettement trop faibles. Cependant, dans le Lidar à lumière blanche, la longueur d'onde de mesure est en principe indépendante de la longueur d'onde du laser incident. Le développement actuel de lasers ultrabrefs et de forte puissance dans l'infrarouge (bande télécommunication à 1,55 μ m) et dans l'ultraviolet, où les limites d'exposition sont beaucoup plus hautes, permet d'espérer disposer à terme de systèmes de puissance pour obtenir une propagation non-linéaire, tout en restant dans les normes de sécurité oculaire.

IV.2 Télédétection de simulants biologiques par Lidar non-linéaire [63,101]

Dans l'exemple de mesure Lidar à lumière blanche présenté au paragraphe précédent, la non-linéarité du processus réside dans la génération dans l'atmosphère du continuum de lumière blanche. Cette source blanche secondaire, localisée à quelques centaines de mètres du sol, se propage ensuite linéairement, et, hormis la large bande qu'elle offre, peut s'analyser par les techniques issues des instruments de télémesure optique linéaire, tels que le DOAS ou le Lidar classique. Cependant, les possibilités offertes par le Lidar non-linéaire ne se résument pas au Lidar à lumière blanche. Les hautes intensités (10¹⁴ W/cm²) transportées par les filaments sont en effet suffisantes pour générer *in situ* sur l'objet à analyser, des effets non-linéaires, qui constituent un canal supplémentaire pour la télédétection et la caractérisation à distance. Dans ce paragraphe, nous illustrerons cette technique par une expérience de télédétection d'aérosol portant des simulants biologiques par Lidar de fluorescence excitée à deux photons.

Avec la crainte du terrorisme bactériologique, la télédétection rapide d'agents biologiques dans l'air est devenue une préoccupation majeure pour la sécurité civile. Il s'agit de détecter et de localiser rapidement une émission suspecte, de cartographier la dispersion du nuage émis, et d'identifier de potentiels agents pathogènes parmi les divers aérosols atmosphériques de fond, dont certains, comme les suies, sont des composés organiques. Le même type de problématique s'applique à des crises sanitaires telles que la recherche de la source d'une contamination collective par la légionellose. Grâce à la fluorescence excitée à deux photons (2PEF, Two-photon excited fluorescence), démontrée au Lasim il y a quelques années [136], nous avons pour la première fois détecté et identifié à distance dans l'air des aérosols simulant des agents biologiques par Lidar non-linéaire. La fluorescence à excitation multiphotonique présente deux avantages sur l'excitation à un photon. D'une part, l'usage de longueurs d'ondes d'excitation plus longues assure une meilleure transmission à travers l'atmosphère, par rapport à une excitation dans l'ultraviolet qui est fortement diffusé par l'atmosphère, et absorbé par certains polluants gazeux tels que l'ozone. D'autre part, les processus multiphotoniques autorisent une mesure simultanée de la taille des particules d'aérosols par une technique pompe-sonde [137,138], et une meilleure sélectivité grâce au contrôle cohérent [139,140]. Enfin, grâce à un effet de focalisation interne dans les particules elles-mêmes, la fluorescence à excitation multiphotonique est préférentiellement émise vers l'arrière [136], c'est à dire vers le détecteur Lidar.

Mesure expérimentale à 45 m

La plupart des agents biologiques, comme l'anthrax (*bacillus anthracis*) sont des bactéries dont la taille est de l'ordre 1 μ m [141]. Selon les modes d'émission, ces bactéries peuvent s'agglomérer en agrégats pouvant mesurer jusqu'à 10 μ m. Elles contiennent des fluorophores naturels : acides aminés comme le tryptophane, nicotinamides (NADH), et flavines telles que la riboflavine (vitamine B2) et les flavoprotéines. Ces fluorophores constituent des traceurs de la nature biologique de ces particules [142]. Dans les expériences présentées ici, nous avons utilisé le spectre de fluorescence spécifique de la riboflavine à 540 nm, excitée à deux photons par le Téramobile sur sa longueur d'onde fondamentale (800 nm). La fluorescence rétroémise est collectée sur un télescope de 20 ou de 40 cm selon les applications (longue ou courte distance) et mesurée sur un détecteur résolu spatialement et temporellement.

Les aérosols étaient produits par un nébuliseur situé dans la chambre à nuages ouverte décrite prédédemment (Figure 31), placée à 45 m du Téramobile. Leur distribution de taille, mesurée par un analyseur optique (Grimm G 1-108), était centrée sur un diamètre de 1 μ m. Les gouttes d'eau étaient dopées par 0,02 g/l de riboflavine.

L'intensité incidente sur les microparticules est critique pour optimiser la 2PEF. En effet, l'intensité doit être suffisante pour exciter ce processus non-linéaire, mais doit rester suffisamment basse pour limiter la génération de lumière blanche lors de la propagation des impulsions laser dans l'air, avant qu'elles n'atteignent les particules à analyser. Pour contrôler ce paramètre, nous avons imprimé un chirp négatif pour précompenser partiellement la DVG dans l'air et réduire la longueur des filaments en amont du nuage à analyser. Le chirp optimal, correspondant à des impulsions de 1 ps de durée initiale, fournit les résultats présentés sur la Figure 45. L'intensité incidente sur le nuage est de 10¹¹ W/cm². Le spectre de 2PEF identifie clairement la présence de riboflavine. La résolution spatiale du Lidar est obtenue via la résolution en temps sur la mesure. Elle est intrinsèquement limitée à 45 cm par la durée de vie de la fluorescence, soit 3 ns pour la

transition considérée [143]. Cette résolution permet de localiser précisément le nuage d'aérosols biologiques, qui s'étend sur 10 mètres.



Figure 45. Télédétection d'aérosols biologiques. Un brouillard d'eau (en haut) ne produit pas de fluorescence excitée à deux photons, contrairement à un simulant biologique (riboflavine, en bas). Cette fluorescence, détectée en fonction de la distance et de la longueur d'onde, permet d'identifier et de localiser le nuage potentiellement dangereux

La mesure de contrôle, effectuée sur un brouillard d'eau généré par le même dispositif que le simulant biologique, montre le contraste important entre la 2PEF des aérosols dopés, et le signal correspondant aux aérosols de fond, pour lesquels on ne détecte que la montée du continuum de lumière blanche généré par automodulation de phase à partir de 600 nm (Figure 45). Le Lidar non-linéaire basé sur la 2PEF est donc clairement capable d'identifier à distance des aérosols biologiques parmi des aérosols de fond, même s'ils sont de même taille. L'expérience permet également d'estimer que le seuil de détection est de l'ordre de 10 particules par cm³, pour une résolution spatiale de 10 m.

Cette sensibilité, déjà élevée, pourrait être encore améliorée par une excitation à des longueurs d'onde plus courtes, autour de 530 nm. A cette longueur d'onde, il est en effet possible d'exciter la 2PEF du tryptophane (Trp) [141,142], qui est 10^4 fois plus abondant dans les bactéries que la riboflavine, soit 10^8 molécules par particule de 1 µm [143]. De plus, une excitation à deux photons à 530 nm exciterait non seulement le tryptophane, mais également le NADH et la riboflavine, dont les bandes de fluorescence respectives, autour de 320-370 nm, 420-500 nm, et 520-620 nm, offrirait un contrôle complémentaire de la mesure [142].

Comparaison du Lidar non-linéaire avec la fluorescence linéaire

Afin d'estimer les performances à plus grande échelle d'un Lidar non-linéaire utilisant la 2PEF, et de les comparer à un Lidar utilisant la fluorescence élastique excitée à un photon (1PEF) utilisant la quatrième harmonique du YAG (266 nm), nous avons simulé numériquement le signal Lidar 1- et 2PEF dans le cas de la détection du tryptophane. Bien qu'il n'existe pas encore de laser térawatt émettant à 530 nm, les récents développements des lasers ultrabrefs utilisant des cristaux dopés à l'ytterbium sont encourageants. Le térawatt a ainsi été atteint en laboratoire dans la fondamentale [144]. Un doublage de fréquences permettrait d'obtenir un laser ultra-intense à 530 nm.

Pour les simulations présentées ici, nous avons considéré que, au cours de sa propagation jusqu'au nuage à détecter, l'intensité laser ne décroît qu'à cause de l'extinction linéaire, c'est à dire à cause de la diffusion de Rayleigh-Mie par les aérosols et les molécules de l'atmosphère. Le nombre de photons de *n*PEF détectés par impulsion $N_f(R)$ en provenance d'une distance R est donné par une extension de l'équation Lidar (I.1) tenant compte de la non-linéarité :

$$N_f(R) = \rho(R) \cdot \sigma^{(n)} \cdot \eta \cdot I_0^n \cdot \tau \cdot \zeta(R,\lambda) \frac{A}{4\pi R^2} S \cdot \Delta R \cdot \exp(-\int_0^R \alpha(R,\lambda_f) - n\alpha(R,\lambda_p) dR) \quad (\text{IV.1})$$

Les notations ainsi que les valeurs numériques utilisées pour nos simulations et les éventuelles références correspondantes sont résumées dans le Tableau 5.

Pour la 1PEF, nous avons considéré les caractéristiques des meilleurs lasers Nd:YAG disponibles commercialement, avec une énergie 100 mJ en 10 ns dans la quatrième harmonique (266 nm). Pour la 2PEF, nous nous sommes basés sur les caractéristiques du Téramobile que nous avons utilisé dans les expériences (400 mJ, 80 fs). Les paramètres de transmission atmosphérique sont issus de la référence 5. α est nettement plus faible pour les longueurs d'ondes les plus longues, à cause de la dépendance en λ^4 de la diffusion Rayleigh, ainsi que de l'absorption moléculaire dans l'ultraviolet. A 266 nm, le principal absorbant est l'ozone. Ainsi, pour la 1PEF, on a :

$$\alpha_{1P} = \alpha_{\text{Rayleigh}}(266 \text{ nm}) + N_{0\text{zone}} \sigma_{\text{Ozone}} (266 \text{ nm}) = 1,6 \ 10^{-4} \text{ m}^{-1} + N_{0\text{zone}} \sigma_{\text{Ozone}} (266 \text{ nm})$$
(IV.2)

avec $\sigma_{\rm Ozone}$ (266 nm) = 1 10⁻¹⁷ cm²

Pour la 2PEF, l'extinction est donnée par :

$$\alpha_{2p} = \alpha_{\text{Rayleigh}}(530 \text{ nm}) = 1 \ 10^{-5} \text{ m}^{-1}$$
 (IV.3)

ho(R)	concentration en particules d'aérosol	100 bactéries / cm ³
$\sigma^{(1)}$	section efficace à 1 photon d'une microparticule	2 x 10 ⁻¹⁷ cm ² [143]
$\sigma^{(2)}$	section efficace à 2 photons d'une microparticule	$\sigma^{(2)} = 1 \times 10^{-50} \text{ cm}^4 \text{ s/photon}$ [145,146]
η	rendement quantique de la fluorescence	0,13 [143,145]
I_0	intensité initiale du laser	Voir le texte
τ	durée d'impulsion	10 ns (1PEF) ; 80 fs (2PEF)
А	surface du télescope de réception	0,125 m² (télescope de 40 cm)
ړ	efficacité de détection	20 %
S	surface d'une section du faisceau	10 cm ²
ΔR	résolution spatiale	10 m
α	extinction atmosphérique à la longueur d'onde considérée	Voir le texte
λ_{f}	longueur d'onde de fluorescence	540 nm
$oldsymbol{\lambda}_p$	longueur d'onde de pompe	266 nm (1PEF) ; 530 nm (2PEF)
	diamètre moyen des particules	1 µm
	concentration de tryptophane	10 ⁸ /particule

Tableau 5. Notations et valeurs numériques utilisées pour les simulations du Lidar nPEF

Les résultats de la simulation de la nPEF du tryptophane sont présentés sur la Figure 46, où nous avons représenté le nombre $N_f(R)$ de photons détectés par impulsion, en fonction de la distance R entre le nuage à mesurer et le système Lidar, pour un nuage de bactéries long de 10 m. La concentration de 100 μ g/m³ est souvent atteinte voire dépassée en zone urbaine ou péri-urbaine. La forte extinction de l'ultraviolet, due à l'absorption par l'ozone, fait décroître plus rapidement le signal 1PEF. Ainsi, après quelques kilomètres, le Lidar à 2PEF est plus efficace que celui à 1PEF. La distance à laquelle le croisement se fait dépend de la concentration en ozone. En particulier, au seuil d'alerte (360 μ g/m³ d'ozone selon la norme CEE 99), la portée du Lidar à 1PEF est limitée à quelques centaines de mètres, ce qui le rend inutilisable en pratique.

Les simulations fournissent également une estimation du seuil de détection du Lidar à 2PEF, c'est à dire la concentration de bactéries correspondant à $N_f(R) = 1$ photon/impulsion à une distance R donnée. $N_f(R)$ étant proportionnelle au $\rho(R) \Delta R$, la sensibilité est d'autant plus grande que la distance d'intégration est longue. Par exemple, pour une concentration d'ozone de 100 µg/m³, la concentration minimale détectable est de 20 bactéries/cm³ à 2 km ou 100 bactéries/cm³ à 5 km avec une résolution spatiale de 10 m. La saturation et le photoblanchiment [145] sont négligeables, puisqu'une moyenne de seulement 0,1 photon est émise par molécule de tyrptophane par impulsion laser incidente. La limite de détection réelle est bien sûr fortement dépendante des fluctuations du rendement quantique η selon le type de bactéries que l'on considère [145]. Même pour les valeurs que nous avons considérées, qui correspondent au bacille subtil (*Bacillus Subtillus*) et au *Bacillus Cereus*, des fluctuations pouvant atteindre un ordre de grandeur peuvent être observées. Ces variations affectent alors d'autant le seuil de détection absolu, mais sont sans incidence sur la comparaison entre les excitations à un et à deux photons.



Figure 46. Simulation du signal Lidar basé sur la *n*PEF pour la détection de tryptophane dans des aérosols biologiques selon les paramètres résumés au Tableau 5. L'intensité collectée par le Lidar à 2PDF est supérieure à la 1PEF à partir d'une distance de quelques km, à cause de la plus faible transmission atmosphérique de l'ultraviolet (diffusion Rayleigh et absorption de l'ozone, ici pour des concentrations 100 et 360 μ g/m³)

Conclusion

En conclusion, nous avons démontré, dans des conditions proches de la réalité, la première télédétection de simulants biologiques par Lidar non-linéaire. Ces résultats démontrent également que la filamentation permet de délivrer à distance des intensités suffisantes pour exciter des effets non-linéaires dans l'atmosphère, et les détecter dans une configuration Lidar. Au-delà de l'application aux aérosols biologiques, cette opportunité offre de nouveaux canaux d'analyse pour la télédétection atmosphérique, tant de gaz que d'aérosols.

La principale limitation du Lidar à 2PEF est la possibilité de délivrer les intensités nécessaires sur le lieu de la mesure. Nos simulations sont basées sur une situation optimale où l'on peut contrôler efficacement la propagation non-linéaire dans l'air jusqu'à la cible, et en particulier de l'effet Kerr et de la compression de l'impulsion. Malgré des résultats présentés plus haut montrant qu'un tel contrôle est possible à l'échelle de 100 m [65], et que des filaments peuvent être observés à des altitudes de quelques kilomètres [46], aucune démonstration expérimentale systématique de ce contrôle à l'échelle de plusieurs kilomètres n'a encore été réalisée. Les applications potentielles soulignent de nouveau le besoin de poursuivre les expériences plus fondamentales sur la propagation non-linéaire d'impulsions ultrabrèves et de forte puissance.

Par ailleurs, les techniques de mise en forme spatiale (optique adaptative) ou temporelle du faisceau, couplées à des optimisations en boucle fermée pilotées par un algorithme génétique, pourraient permettre d'optimiser les rendements, comme il a été récemment démontré pour des applications à la fusion [147]. Ils offrent aussi la perspective d'améliorer la spécificité du Lidar à 2PEF en permettant de distinguer des espèces dont les spectres de fluorescence linéaire sont identiques [139]. L'identification d'agents biologiques serait ainsi possible parmi d'autres particules elles-mêmes fluorescentes.

IV.3 Au-delà du Lidar non-linéaire : le R-FIBS [102]

La capacité des impulsions laser femtoseconde à transporter efficacement et à grande distance des intensités pouvant atteindre 10^{14} W/cm², illustrée au paragraphe précédant dans le contexte du Lidar non-linéaire, ouvre également la voie vers d'autres perspectives d'applications. Dans ce paragraphe, j'en présenterai brièvement un exemple, la technique que nous avons nommée R-FIBS (Remote filament-induced breakdown spectroscopy, spectroscopie à distance de plasma excité par des filaments) et qui peut être considérée comme un hybride du Lidar et du LIBS (Laser induced breakdown spectroscopy, spectroscopie de plasma excité par laser).

Le LIBS [148] est un outil universel, qui permet une analyse élémentaire en surface de matériaux tels que les métaux [149], les plastiques [150,151], les minéraux [152,153,154], les aérosols, les tissus biologiques [155] ou les liquides. Il repose sur l'ionisation locale de la surface par un laser fortement focalisé, en général un laser impulsionnel de type Nd:YAG. Le spectre d'émission du plasma ainsi formé en surface permet une analyse rapide, qualitative ou quantitative, avec des limites de détection pouvant atteindre quelques parties par millions (ppm) selon les éléments. L'utilisation de lasers à impulsions sub-picoseconde [149,156,157,158] améliore sensiblement la reproductibilité des mesures en limitant le chauffage de l'échantillon. L'utilisation de systèmes de détection à large bande spectrale fait du LIBS un outil très souple dans la mesure où il n'est pas nécessaire de connaître à l'avance les éléments que l'on recherche pour choisir une bande de longueurs d'onde adéquate pour la détection. De plus, aucune préparation préalable de l'échantillon n'est nécessaire.

Cette souplesse et cette facilité d'usage ont permis au LIBS de servir dans des applications allant du contrôle de processus industriels [159], à la surveillance de l'environnement [160], en passant par le tri de déchets [150,151], le diagnostic médical [155], ou la recherche spatiale [152,153,154]. De plus, le développement de spectromètres compacts et fiables et des lasers solides pompés par diode ont permis l'émergence de systèmes LIBS portables [153,161] pour des applications de terrain telles que l'analyse de peintures anciennes en archéologie [162] ou les analyses alimentaires. Mais certaines applications telles que l'identification de déchets nucléaires fortement radioactifs [163] ou l'analyse en temps réel d'alliages fondus [164], nécessitent une mesure à distance. L'absence de préparation des échantillons fait du LIBS un bon candidat dans ce but. En effet, la seule contrainte est d'être en vue directe de l'échantillon. Une telle mesure à distance (jusqu'à 80 m) par LIBS a récemment été démontrée [165]. Elle repose sur la focalisation à grande distance d'impulsions d'un laser Nd:YAG de forte énergie, et la collecte du signal LIBS sur un télescope. Mais la diffraction, alliée à la taille nécessairement limitée des optiques, limite intrinsèquement l'intensité qu'il est possible de déposer sur une cible distante.

Nous avons donc proposé la R-FIBS comme une approche nouvelle pour effectuer des mesures LIBS à distance, en tirant parti des hautes intensités transportées à grande distance dans les filaments générés par un laser à impulsions ultrabrèves tels que le Téramobile. En effet, l'autoguidage affranchit les filaments de la limite de diffraction et les autorise à transporter sur plusieurs kilomètres [46,47] des intensités de 10¹³ à 10¹⁴ W/cm² nettement supérieures au seuil d'ablation d'échantillons métalliques par des impulsions laser femtosecondes [166,167]. Nous avons ainsi pu réaliser des mesures de R-FIBS jusqu'à 90 m, cette distance étant limitée par l'espace disponible lors de l'expérience. Les données obtenues suggèrent en outre que la technique pourrait être adaptée à l'échelle du kilomètre.

Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental du R-FIBS est décrit sur la Figure 47. Le faisceau du Téramobile était émis avec une énergie de 250 mJ, en un faisceau collimaté de 3 cm de diamètre. L'échantillon à analyser était placé à une distance du laser comprise entre 20 et 90 m. À ces distances, un profil de multifilamentation comportant environ 30 filaments est observé sur la cible, et sur 7 à 8 mètres en amont, pour la valeur de chirp optimisant le signal mesuré. Les fluctuations coup à coup de la position des filaments

limite fortement l'endommagement de la cible en répartissant l'ablation sur une surface de plusieurs cm². Ainsi, même après 10^5 tirs du laser, la profondeur d'ablation était négligeable, montrant à quel point la technique est non-invasive.



Figure 47. Dispositif expérimental du R-FIBS

Deux échantillons ont été testés. Il s'agit de plaques de cuivre et d'acier, de qualité industrielle. Le spectre rétrodiffusé du plasma était collecté sur un télescope de 20 cm placé à proximité du laser, et analysé par un analyseur optique multicanaux (OMA, optical multichannel analyzer). Le continuum de lumière blanche généré dans les filaments en amont de l'échantillon était éliminé par une porte temporelle adéquate sur le détecteur. Nous avons observé que l'émission du signal n'était pas isotrope. Cependant, pour démontrer que la R-FIBS peut être utilisée même dans des conditions défavorables, nous nous sommes placés hors du maximum de la distribution angulaire ainsi observée.

Résultats et discussion

La Figure 48 et la Figure 49 présentent les spectres d'émission d'échantillons de cuivre et d'acier placés à 90 mètres du laser et du système de détection. Les raies représentatives du Cu *I* et du Fe *I* dans la bande des 520 nm sont clairement visibles, démontrant la capacité du R-FIBS à réaliser des analyses élémentales à une distance de 90 m. Bien que ces spectres aient été intégrés sur 10 000 impulsions laser, nous avons vérifié qu'une intégration sur 1000 impulsions est suffisante pour identifier sans ambiguïté les raies d'émission sur les spectres. Une analyse peut donc être réalisée en moins de 2 minutes à 10 Hz, soit en quasi-temps réel. Le signal n'est observé que lorsque les impulsions laser sont *chirpées* de manière à ce que des filaments soient formés sur l'échantillon. De même, des impulsions longues de même énergie ne produisent ni ablation ni signal LIBS à distance. On vérifie ainsi que le signal observé provient bien d'un plasma excité par les filaments eux-mêmes, et donc que les filaments constituent bien un nouveau mode d'excitation LIBS.



Figure 48. Spectre R-FIBS du cuivre mesuré à une distance de 90 m



Figure 49. Spectre R-FIBS de l'acier mesuré à une distance de 90 m



Figure 50. Dépendance en distance du signal R-FIBS, corrigé du terme géométrique, de la ligne d'émission du cuivre à 521,8 nm. Le trait mixte (....) correspond à l'extrapolation de l'amplitude du bruit. La simulation du signal produit par un laser focalisé correspond à l'excitation à trois photons du cuivre à 800 nm : la chute d'intensité sur la cible en fonction de la distance fait décroître le signal en $R^{-3/2}$, R étant la distance de la cible

Hormis le terme géométrique $1/R^2$, dû à l'angle solide collecté par le télescope, le signal observé ne dépend pas de l'éloignement R de l'échantillon (Figure 50). Cependant, à cause de ce terme géométrique, le rapport signal sur bruit décroît avec la distance de détection. Une extrapolation de nos données montre qu'il tomberait à 1 vers 150 m, comme le montre la ligne en trait mixte sur la Figure 50. Cette distance constitue une borne inférieure à la portée du R-FIBS. En effet, une mauvaise optimisation du couplage du détecteur sur le spectromètre lors de nos mesures laisse prévoir une possible amélioration du signal d'un facteur 100. La technique R-FIBS serait alors utilisable à l'échelle du kilomètre, et donc parfaitement adaptée à de nombreuses mesures en environnement hostile. Notons que l'observation de filaments à la même échelle de distance, décrite plus haut [46], montre que la distance de filamentation ne serait pas ici limitante.

Nous avons également vérifié la constance du signal avec la distance, en réalisant une mesure locale afin de nous affranchir du terme géométrique. Pour cela, nous avons placé le système de détection à 7 m de l'échantillon, et nous avons progressivement éloigné le laser³. Comme on peut s'y attendre sachant que l'intensité dans les filaments dépend très peu de la distance de propagation, le signal ne dépend pas significativement de l'éloignement de l'échantillon, au moins jusqu'à 90 m. Ce comportement contraste fortement avec celui observé dans le cas du LIBS excité par un faisceau focalisé [156,164]. En effet, dans ce dernier cas, l'intensité sur la cible décroît lorsque l'on éloigne le laser, puisque la diffraction impose un diamètre du faisceau proportionnel à la distance de mesure. De ce fait, l'efficacité d'ionisation, qui est un processus multiphotonique chute brutalement lorsque l'on augmente la distance de mesure : cette chute n'est pas compensée totalement par l'augmentation du volume illuminé par le faisceau. La simulation d'une telle dépendance en distance dans les cas de l'excitation à 3 photons du cuivre à 800 nm [168] est présentée, à titre de comparaison sur la Figure 50 (courbe pleine).

Conclusion

Nous avons donc démontré une nouvelle technique optique non destructive d'analyse élémentale à distance, la R-FIBS. Si nous avons effectué des mesures seulement jusqu'à 90 m à cause de l'espace disponible, nous avons montré qu'elle est adaptée à une extension à l'échelle du kilomètre D'ailleurs, lors de mesures complémentaires, nous avons détecté la raie du plasma à 395 nm sur un échantillon d'aluminium placé à 180 m du laser.

Ces grandes distances peuvent être atteintes grâce à la filamentation, qui permet de s'affranchir de la limite de diffraction et de transporter de très hautes intensités (10^{13} W/cm^2) à des distances très supérieures à la longueur de Rayleigh. La R-FIBS ne nécessite que des énergies raisonnables. Elle peut être mise en pratique pour l'analyse à distance d'échantillons dangereux ou inaccessibles, comme c'est le cas sur des sites pollués, des mines, des pylônes électriques sous tension, des centrales nucléaires ou dans le cas de fuites chimiques.

Après la première mise en évidence avec le Téramobile, la technique FIBS est maintenant appelée à se développer au laboratoire, sous l'impulsion de Jin Yu. En particulier, la caractérisation de l'interaction des filaments avec une cible solide est encore très mal comprise et nécessitera des études spécifiques.

³ Ceux qui connaissent le Téramobile et ses 12 tonnes protesteront qu'en réalité, nous avons laissé le laser en place, et éloigné simultanément l'échantillon et le détecteur. Ce n'est pas faux, mais tout est dans le choix du référentiel.

IV.4 Conclusion

Nous avons parcouru dans ce chapitre trois exemples d'applications des lasers ultrabrefs et de forte puissance, tels que le Téramobile, pour l'analyse à distance dans l'atmosphère. Le premier exemple, le Lidar à lumière blanche, est une extension assez naturelle des techniques optiques conventionnelles. Grâce au large continuum de lumière blanche généré dans les filaments, il utilise le « laser blanc » issu de la propagation non-linéaire du faisceau du Téramobile pour combiner les avantages du Lidar (cartographie tridimensionnelle), du DOAS (analyse multi-composant) et du Lidar MultiFOV (distribution de taille d'aérosols dans des nuages denses).

La non-linéarité est beaucoup plus fondamentale dans le second exemple. En effet, il s'agit non seulement de générer non-linéairement une source de lumière blanche qui serait ensuite propagée élastiquement, mais bien de profiter des fortes intensités portées par les filaments pour induire à distance, sur l'aérosol à mesurer, les effets non-linéaires spécifiques qui vont autoriser sa caractérisation. Cette interaction non-linéaire avec l'objet de la mesure fournit une analyse beaucoup plus riche que la simple interaction linéaire, limitée à l'absorption et à la diffusion. Dans notre mesure d'aérosols biologiques, on détermine ainsi la signature de fluorescence des traceurs étudiés. Mais on entrevoit, *via* la mise en forme spatiale et temporelle des impulsions et l'usage d'optimisations en boucle fermée, un accès à une information encore bien plus riche. Après le spectre et la résolution spatiale, la mise en forme ajoute en effet une nouvelle dimension aux données : l'information sur la phase spectrale et/ou spatiale de l'impulsion laser.

La technique R-FIBS, enfin, repose elle aussi sur la capacité des filaments à transporter de fortes intensités à grande distance, et sur une interaction fortement nonlinéaire avec l'échantillon à étudier. Si elle s'apparente au Lidar par la détection, elle se rattache au LIBS par les processus physiques mis en jeu lors de la mesure, même si l'interaction des filaments avec les solides n'est pas encore complètement comprise. Vu l'intérêt soulevé dans la communauté du LIBS, en plein développement, cette application pourrait être l'une de celles qui a des chances d'être mise en pratique relativement rapidement.

Au travers de ces trois exemples, nous avons passé en revue trois champs d'application des lasers femtoseconde-térawatt, que le Téramobile ouvert grâce à sa capacité unique à réaliser des expériences de terrain. À bien des égards, les résultats présentés sont préliminaires. Ces techniques une fois démontrées, il nous appartient désormais de les développer pour les rendre plus facilement utilisables et plus rigoureuses pour permettre une réelle exploitation des résultats. C'est assurément l'un des défis qui attendent l'équipe du Téramobile dans les années à venir.

V. Contrôle de décharges de haute tension par laser

V.1 Introduction

La foudre a toujours fasciné l'homme par sa puissance et son caractère incontrôlable et destructeur (Figure 51). Pour l'étudier, il est nécessaire de la faire tomber à la demande au point voulu (et instrumenté) et à un instant choisi. Dans ce but, la technique de déclenchement par fusée-fil [169, 170] a été mise au point par EDF et le CEA à St Privat d'Allier (Haute-Loire) dans les années 1970 puis développée par plusieurs groupes dans le monde, en particulier en Floride et au Nouveau Mexique. Il s'agit d'envoyer vers un nuage d'orage une fusée paragrêle, qui déroule derrière elle un filin métallique relié ou non à la terre (Figure 52). Ce conducteur va intercepter des précurseurs de décharges de foudre, ou traceurs, et ainsi guider la décharge vers le sol (Figure 53). Mais le nombre de fusées disponibles pour un orage est forcément limité, ce qui nécessite de choisir judicieusement l'instant du tir de la fusée. Par ailleurs, la retombée du fil peut représenter une pollution pour l'environnement comme pour la mesure elle-même.



Figure 51. Exemple de dégâts dûs à la foudre : destruction des isolateurs d'une ligne à haute tension

V. Contrôle de décharges de haute tension par laser



Figure 52. Fusée paragrêle utilisée pour le déclenchement de foudre. © Langmuir Lab, New Mexico Tech



Figure 53. Décharge guidée par fusée-fil. La partie rectiligne correspond à la position du fil. © Langmuir Lab, New Mexico Tech

Pour sa part, l'idée de déclencher et de guider la foudre au moyen de lasers est presque aussi ancienne que le laser lui-même. Elle a été proposée il y a plus de 30 ans [171,172]. Le laser peut être tiré en continu, et le tir ne produit pas de déchets. Le principe consiste à utiliser la forte intensité du laser pour ioniser l'air le long du faisceau,

et former ainsi un « fil » conducteur qui remplacerait celui déployé par une fusée. Les premiers essais, dans les années 1970 et 1980, avec des lasers à impulsions nanosecondes [173, 174], ont été infructueux, car les lasers utilisés ne peuvent pas produire de canaux ionisés continus. Au contraire, le plasma dense qu'ils forment au foyer est opaque et stoppe le processus d'ionisation à plus grande distance.

Plus récemment, l'avènement des lasers ultrabrefs et de forte intensité grâce à la technique CPA, a permis d'atteindre les fortes intensités nécessaires à l'ionisation de l'air (10^{14} W/cm^2) pour des énergies par impulsion relativement modestes. Cette possibilité a renouvelé la problématique du contrôle de décharges électriques par laser. Ainsi, l'équipe de H. Pépin à Montréal a pu déclencher et guider des décharges de haute tension sur des distances de plusieurs mètres, avec un laser à impulsions ultrabrèves (0,3 TW, 600 fs) focalisé entre les électrodes de manière à former un plasma relativement dense au foyer [84,85,86,87]. Des résultats similaires ont également été obtenus dans l'ultraviolet, bien que sur des échelles moindres (30 cm) [175] : dans cette gamme de longueurs d'ondes, l'ionisation multiphotonique est plus efficace que dans l'infrarouge. Dans ces expériences, le laser produit un plasma de densité moyenne (de l'ordre de 10^{17} cm⁻³), à partir duquel des fronts d'ionisation (*streamers*, en anglais), se propagent dans le champ électrique en direction des électrodes.

Pour notre part, nous nous sommes intéressés à l'effet des filaments produits dans un faisceau laser faiblement focalisé. En effet, grâce à leur capacité à se propager à très grande distance [46,47] y compris à travers des nuages [93,97,99], et leur conductivité [30,32], ils constituent de bons candidats pour le contrôle de décharges. De plus, leur extension spatiale laisse plus facilement envisager une extrapolation au contrôle de foudre en grandeur réelle que les configurations basées sur un laser focalisé. Le groupe de Montréal avait déjà démontré le guidage de décharges électriques par des filaments, sur un intervalle de 2 m entre électrodes [88]. Cependant, ces expériences n'avaient pas mis en évidence de réduction de la tension de claquage, et donc de déclenchement proprement dit.

Pour approfondir ces résultats, nous avons réalisé deux campagnes de mesures avec le Téramobile, en 2001 et 2004 en collaboration avec l'Univrsité technique de Berlin (TU Berlin, Prof. Kalkner), et une autre en collaboration avec l'équipe de C. Davoise au Centre d'Études Aéronautiques de Toulouse (CEAT). Ces campagnes nous ont permis de démontrer le déclenchement et le guidage de décharges de haute tension par les filaments jusqu'à 4 m. Nous avons aussi étudié l'effet d'un brouillard ainsi que d'un laser auxiliaire sur l'efficacité de déclenchement. Les paragraphes suivants détaillent les principaux résultats obtenus.

V.2 Contrôle de décharges électriques par des filaments [89]

Le principe du dispositif expérimental est schématisé sur la Figure 54. Un générateur de Marx produisait des impulsions normalisées de haute tension (jusqu'à 2 MV), avec un temps de montée de 1,2 μ s et un temps de décroissance de 50 μ s. Cette impulsion était envoyée sur une électrode sphérique, de 12 cm de diamètre (8 cm au CEAT), faisant face à une électrode de masse plane de 3 m de diamètre (voire de 4 x 10 m au CEAT). D'autres géométries d'électrodes, telles que deux tores produisant un champ électrique relativement uniforme, ont montré un comportement sensiblement équivalent.



Figure 54. Schéma de principe du dispositif expérimental utilisé pour les expériences sur le contrôle de décharges de haute tension par laser

Grâce à sa mobilité, le laser Téramobile a pu être installé dans l'axe des électrodes, environ 20 m en amont, à l'intérieur même des laboratoires à haute tension. Les impulsions de haute tension étaient synchronisées avec un tir du laser, avec un délai ajustable. L'énergie du laser était variée en déréglant légèrement l'extraction des impulsions de la cavité de l'amplificateur régénératif. Le faisceau, de diamètre initial 15 cm, était légèrement focalisé par le télescope d'émission ($f \sim 15$ à 20 m). On génère ainsi un « bouquet » d'environ 15 filaments répartis transversalement sur une section de 5 à 10 mm, d'une longueur de 4 à 5 m. Le chirp et la focale du télescope d'émission étaient choisis pour que les filaments couvrent l'ensemble de l'intervalle entre les électrodes. Pour assurer un contact électrique le meilleur possible, le faisceau laser « léchait » l'électrode de haute tension à une distance d'environ 1 cm : cette distance a une influence critique sur l'effet du laser. De même, l'efficacité de guidage et de déclenchement chute fortement si les filaments ne joignent pas les deux électrodes.

Nous avons observé des décharges déclenchées lorsque l'impulsion laser arrivait entre 0 et 15 μ s après le maximum de l'impulsion de haute tension. Le déclenchement est caractérisé par un enregistrement systématique de la tension de claquage avec et sans laser. On définit alors la tension médiane de claquage, ou U_{50} , comme la tension à laquelle la probabilité de décharge est de 50 % dans les conditions considérées. L'évaluation des intervalles de confiance est réalisée sur la base d'une distribution binômiale de la probabilité de décharge, c'est-à-dire en considérant deux tirs successifs comme indépendants. Nous avons alors représenté l'intervalle de confiance à α = 10 %. La Figure 55 présente l'évolution de U_{50} en fonction de la distance entre les électrodes. La réduction de U_{50} induite par le laser, soit ($U_{50,libre}$ – $U_{50,laser}$) / $U_{50,libre}$, est estimée à 32 (±1) %.



Figure 55. *U*₅₀ en fonction de la distance entre électrodes. Un ajustement linéaire donne 800 kV/m pour les décharges libres (points ronds) et 600 kV/m pour les décharges déclenchées (carrés). Les triangles correspondent aux tensions de claquage minimales observées.

Le guidage des décharges est certainement l'effet le plus spectaculaire du laser (Figure 56). Au lieu de suivre un chemin erratique comme les décharges naturelles, les décharges déclenchées se produisent le long du faisceau laser qui leur a donné naissance. Dans certains cas, la décharge n'est guidée que sur une fraction η de la distance entre les électrodes, puis reprend un chemin erratique comparable à celui des décharges naturelles. Ces décharges partiellement guidées nous fournissent des indications sur le mécanisme d'établissement de la décharge. En effet, le temps τ

nécessaire à l'établissement de la décharge, compté à partir de l'impulsion laser, dépend de η (Figure 57). τ ne dépend pas significativement de la tension appliquée, tant que cette dernière reste suffisamment inférieure à la tension de claquage libre. Si l'on considère que les décharges se propagent à la vitesse v_f , lorsqu'elles ne sont pas guidées, et sont accélérées à la vitesse v_g lorsque leur progression est facilitée par la conductivité des filaments qui les guident (10^5 - $10^6 \Omega$ pour une distance entre électrodes de quelques mètres [30,32]), le temps d'établissement des décharges est :

$$\tau = L \left[\eta / v_g + (1 - \eta) / v_f \right] \tag{V.1}$$



Figure 56. Décharge libre (en haut) ; décharge guidée (au milieu) ; (décharge partiellement guidée (en bas)

Un ajustement linéaire sur la courbe de la Figure 57 donne alors $v_g = 1.0 \pm 0.2 \times 10^6$ m/s et $v_f = 2.9 \pm 0.5 \times 10^5$ m/s. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles déterminées par La Fontaine *et al.* [88].

Nous nous sommes également intéressés à l'influence du délai entre le laser et les impulsions de haute tension. Lorsque, au contraire des expériences présentées ci-dessus, les impulsions laser arrivent avant la décharge de haute tension ($\Delta t > 0$), il est impossible de déclencher les décharges. Seul le guidage est alors possible, comme l'ont montré La Fontaine *et al.* [88]. En effet, dans ce cas, le plasma généré dans le filament n'est initialement pas entretenu par le champ électrique. Lorsque ce dernier arrive, la densité du plasma n'est plus suffisante pour déclencher des décharges, mais seulement pour guider des décharges préalablement initiées naturellement. Nous avons alors observé une compétition entre un chemin naturel, erratique, et un chemin guidé par le laser [176]. Le guidage est alors beaucoup moins efficace, ce qui se traduit par un guidage partiel beaucoup plus fréquent, comme le montre la Figure 58.



Figure 57. Temps d'établissement de la décharge τ en fonction de la longueur sur laquelle elle est guidée, pour une distance entre électrodes de 2 m. Un ajustement linéaire donne les vitesses de propagation des décharges guidées $v_g = 1,0 \pm 0,2 \times 10^6$ m/s, et des décharges libres $v_f = 2,9 \pm 0,5 \times 10^5$ m/s

Nous avons donc démontré le déclenchement et le guidage de décharges de haute tension sur une distance allant jusqu'à 4,5 m, par les filaments autoguidés issus de la propagation non-linéaire d'un laser ultrabref et de forte puissance. Le mécanisme invoqué, un court-circuit entre électrodes, provoqué par la conductivité des filaments, est compatible avec une extension à de plus grandes distances, ce qui laisse espérer une extension au déclenchement de foudre en grandeur réelle. Cependant, les expériences présentées jusqu'ici ont été réalisées en atmosphère claire. Or, par définition, la foudre se produit le plus souvent dans une atmosphère chargée de particules de tailles variées, nuages et pluie. Nous avons donc cherché à déterminer si la survie des filaments lors de son interaction avec une goutte [93,96,97] ou à la traversée d'un brouillard [99] (voir paragraphe III.4), permet de lever cette hypothèque.



Figure 58. Longueur moyenne de guidage en fonction de la distance entre les électrodes. La ligne pointillée représente la limite de 100 % (guidage sur la totalité de l'intervalle entre les électrodes). $\Delta t > 0$ correspond au laser arrivant avant l'impulsion de haute tension. La compétition entre les décharges guidées et les décharges naturelles limite alors l'efficacité de guidage.

V.3 Influence de la pluie sur le guidage de décharges de haute tension par laser femtoseconde [90]

Si un aérosol d'eau perturbe peu la propagation des filaments, on sait aussi que la présence d'un aérosol d'eau réduit la tension de claquage à cause du potentiel d'ionisation réduit dans l'eau par rapport à l'air. De plus, des particules d'eau ou de glace sont indispensables pour produire, par leurs collisions, la charge à l'intérieur des cumulo-nimbus. Par l'effet de pointe sur leurs aspérités, elles permettent également d'initier les décharges de foudre naturelle [177]. Cependant à cause des difficultés techniques occasionnées par l'utilisation simultanée d'une installation de haute tension et d'un laser dans une atmosphère très humide, l'effet de la pluie et des nuages sur le déclenchement des décharges de haute tension par laser a été très peu étudié. À ce jour, la seule étude publiée concerne un laser CO_2 et s'intéresse davantage à un brouillard qu'à la pluie proprement dite [178]. Compte-tenu de l'interaction spécifique des

impulsions laser femtoseconde avec un aérosol d'eau, nous avons souhaité caractériser le déclenchement et le guidage de décharges sous la pluie par un laser ultrabref.

Nous avons donc ajouté au dispositif expérimental décrit au paragraphe précédant un générateur de gouttes produisant un nuage d'eau entre les électrodes et à leur voisinage, sur une profondeur totale de 3 m. Le flux de 1,4 mm/min, soit celui d'une une forte pluie, et le coefficient d'extinction de 0,14 m⁻¹ correspondaient à une densité de particules de 0,3 cm⁻³ et un diamètre moyen de 0,5 mm, pour une vitesse de chute de 0,25 m/s. L'observation du profil du faisceau sur l'électrode de masse nous a permis de vérifier que les filaments ne sont pas détruits par le nuage. L'humidité relative dans le nuage était de 48 % et la température de 19°C, soit un rapport de mélange de 1 % pour la vapeur d'eau. Pour les expériences de référence dans l'air « sec », une humidité relative de 34 % et une température de 22°C correspondaient à un rapport de mélange de 0,9 %. Pour cette série d'expériences, le chirp du laser correspondait à une durée initiale d'environ 170 fs, et l'énergie par impulsion était de 230 mJ. Le laser était tiré environ 5 μ s après le maximum de la haute tension, et l'intervalle entre les électrodes était de 1,2 m.

À titre de référence, nous avons d'abord caractérisé l'effet du nuage sur les décharges libres. Comme le montre la Figure 59, le nuage réduit la tension médiane de claquage (U_{50}) de 3 %. Cette contribution positive du nuage, qui est statistiquement significative, peut être comprise qualitativement par l'effet de la déformation de gouttes dans le champ électrique, qui leur donne une forme allongée. Cette ellipticité [179] amplifie le champ à leur extrémité et favorise l'initiation de la décharge. Par contre, la faible différence dans le rapport de mélange de la vapeur d'eau exclut un effet de la vapeur d'eau elle-même.



Figure 59. Influence d'un nuage de gouttes d'eau sur les décharges libres. Les courbes sont les ajustements par des tangentes hyperboliques, utilisés pour déterminer les U₅₀.
La présence d'un nuage facilite donc légèrement la décharge, et peut donc « déclencher » des décharges à des tensions inférieures à la tension de claquage naturelle. Malgré cette concurrence, le nuage n'empêche pas les filaments de déclencher des décharges. Comme le montre la Figure 60, on observe des décharges pour une tensions de 910 kV seulement en présence du nuage, à comparer à 850 kV sans nuage, mais 1260 kV sans laser. Paralllèlement, la probabilité des décharges déclenchées par le laser chute d'environ 30 % en présence du nuage.



Figure 60. Probabilité de décharge en fonction de la tension, en air sec et en présence d'un nuage. Les courbes de déclenchement sans laser issues des ajustements de la Figure 59 sont reprises à titre de comparaison.

Cependant, une fois déclenchées, les décharges sont guidées presque aussi efficacement dans le nuage que dans l'air sec. La Figure 62 présente la distribution des longueurs de guidage pour les décharges déclenchées, c'est-à-dire celles qui se produisent pour une tension inférieure à 1260 kV, trop faible pour observer des décharges naturelles. Un nuage dense réduit légèrement le nombre de décharges guidées sur toute leur longueur, et autorise l'apparition de décharges guidées sur moins de 70 % de leur longueur. Cependant, 90 % des décharges sont guidées sur plus de 50 % et 60 % sur plus de 90 % de leur parcours.

On peut rapprocher la persistance de l'effet de déclenchement et de guidage du laser à travers un nuage, avec le fait que la transmission du nuage utilisé dans nos expériences (65 %), est supérieure au seuil de transmission des filaments, caractérisé au paragraphe III.4. On peut ainsi estimer le libre parcours moyen d'un filament à travers notre nuage, et constater que seulement la moitié des filaments rencontre une goutte lors de leur propagation à travers le nuage avant qu'ils ne soient re-nourris par le bain de

photons qui les entoure. De la sorte, l'extinction linéaire du bain de photons par le nuage joue un rôle crucial, en particulier sur les longues distances correspondant à l'échelle du contrôle de foudre dans l'atmosphère.



Figure 61. Décharge guidée sous une pluie artificielle. Le halo provient de la diffusion par le nuage de la lumière émise par la décharge.



Figure 62. Longueur guidée (en pourcentage de l'intervalle de 1,2 m entre les électrodes), en air sec et en présence d'un nuage.

Afin de quantifier l'effet de cette extinction, nous avons fait varier l'énergie du laser, pour une tension fixée à 1050 kV, soit nettement inférieure à la valeur de U_{50} pour des décharges naturelles. Réduire l'énergie réduit l'efficacité de déclenchement, avec comme sans nuage (Figure 63). Cependant, même en présence du nuage, il suffit de 60 mJ par impulsion pour déclencher des décharges, bien qu'avec une faible probabilité. Néanmoins, pour des applications au contrôle de foudre, une faible probabilité est compensée par la fréquence de répétition du laser, soit 10 Hz voire quelques kHz dans les cas des lasers femtoseconde de forte puissance en cours de développement. Ainsi, même avec une probabilité faible par impulsion laser, la densité temporelle de probabilité peut rester raisonnable. On peut ainsi espérer déclencher la foudre à une fréquence acceptable tant que le seuil de déclenchement de la foudre n'est pas trop fortement perturbé par les nuages.

Les filaments autoguidés peuvent donc efficacement déclencher et guider les décharges de haute tension, y compris dans un nuage dense. Certes, le nuage réduit la probabilité de décharge dans des conditions données de champ électrique et d'énergie par impulsion du laser, et favorise les décharges libres. Cependant, il n'augmente pas le seuil de champ ou d'énergie nécessaire pour observer des décharges déclenchées et guidées. La fréquence de répétition du laser peut ainsi compenser la réduction de la probabilité de décharge, et pourrait permettre de déclencher efficacement des décharges de foudre



Figure 63. Influence de l'énergie par impulsion du laser à 1050 kV

V.4 Conclusion et perspectives

Les résultats présentés ci-dessus montrent qu'il est possible de déclencher et de guider des décharges électriques de haute tension à l'échelle du mètre, même en présence de pluie. Les filaments pouvant être générés à grande distance (quelques kilomètres) et sur des longueurs de quelques centaines de mètres, ces résultats sont encourageants en vue d'une exploitation de cette technique pour le contrôle de foudre. À cet égard, le fait que la pluie ne perturbe que faiblement l'effet du laser est très positif.

Cependant, aux échelles considérées, soit quelques centaines de mètres, la durée d'établissement de la décharge ne peut pas être négligée devant la durée de vie du plasma. Une modélisation statique de ce plasma, en l'absence de champ électrique, suggère que la longueur utile du filament serait limitée à quelques mètres. Même si le champ électrique prolonge la durée de vie du plasma en accélérant les électrons libres,

cet effet ne semble pas à lui seul suffisant pour assurer un guidage sur quelques centaines de mètres. Une modélisation rigoureuse des processus en jeu reste nécessaire pour dimensionner un paratonnerre laser utilisant des filaments générés par des impulsions ultrabrèves.

Néanmoins, des résultats récents nous ont montré qu'il est possible non seulement de comprendre ces processus, mais aussi de les maîtriser au moins en partie. En ajoutant une seconde impulsion laser, colinéaire avec le faisceau ultrabref, nous avons réduit d'environ 50 kV, soit environ 5 %, le seul de tension nécessaire pour déclencher des décharges [180]. Le mécanisme de cet effet met en oeuvre l'ionisation par avalanche le photodétachement d'électrons des ions O_2^- par le second laser, les électrons libres ainsi libérés amplifiant le chauffage par effet Joule du canal ionisé. L'élévation de température qui en résulte favorise en retour le photodétachement et l'ionisation par avalanche ,et peut assurer la transition d'un régime sous-critique où le plasma décroît, à un régime surcritique où la densité d'électrons et la température divergent jusqu'à ce que la décharge soit déclenchée.

Ainsi, les travaux en laboratoire à l'échelle de quelques mètres permettent de se rapprocher progressivement de conditions expérimentales proches de celles qui prévaudraient dans une expérience en grandeur réelle de déclenchement de la foudre. Si elle reste lointaine, cette perspective vieille de 30 ans s'est toutefois nettement rapprochée au cours des dernières années.

Ces dernières années, la compréhension de la propagation non-linéaire des impulsions laser ultrabrèves et de forte puissance a progressé à grands pas. Grâce en particulier au Téramobile, on sait désormais que la filamentation peut se produire à grande distance, mais aussi traverser des nuages en restant auto-guidée. Les filaments peuvent ainsi délivrer à distance des intensités suffisantes pour générer in-situ des effets non-linéaires. Le spectre du continuum de lumière blanche est également plus large qu'attendu initialement, en particulier dans l'ultraviolet où le mixage entre la longueur d'onde fondamentale et la troisième harmonique donne naissance à un plateau débutant à 230 nm, probablement limité par la fenêtre de transmission atmosphérique.

Ces progrès autorisent désormais à s'intéresser à des applications à l'atmosphère, telles que la télédétection de polluants par Lidar, la caractérisation à distance d'échantillons solides par LIBS, ou le contrôle de décharges électriques de haute tension, voire à terme de foudre. De par sa mobilité, le Téramobile a d'ores et déjà permis d'explorer nombre de ces approches.

Le développement de ces applications sera probablement facilité à l'avenir par les progrès attendus dans les années à venir dans la technologie des lasers ultrabrefs : systèmes plus fiables et plus compacts, lasers pompés par diodes, ou encore mise en forme spatiale et temporelle des impulsions laser. La possibilité d'utiliser des longueurs d'ondes fondamentales autres que 800 nm émerge également grâce à des alternatives aux chaînes CPA basées sur le Ti:Saphir. En particulier, les dopages à l'Ytterbium [181, 182] et la technique OPCPA [183, 184] devraient permettre une émission dans l'ultraviolet, plus proche des bandes d'absorption des COVs, mais aussi dans un domaine où la sécurité oculaire est plus facile à atteindre. En fournissant des lasers ultrabrefs plus souples, plus fiables et plus faciles à mettre en œuvre, ces nouvelles techniques faciliteront la mise en oeuvre des applications actuellement en cours de développement.

Après une période exploratoire à laquelle le Téramobile a largement contribué, l'intérêt des impulsions femtoseconde pour les applications atmosphériques est clairement établi. Plusieurs groupes dans le monde envisagent de se doter d'un outil comparable. Le défi est maintenant de poursuivre ces développements au-delà des démonstrations de principe, afin d'obtenir des mesures suffisamment fiables, précises et reproductibles pour être utiles aux utilisateurs potentiels.

- 1 B. J. Finlayson-Pitts, J. N. Pitts Jr, *Tropospheric air pollution : ozone, airborne toxics, polycyclic aromatic hydrocarbons and particles*, Science, **276**, 1045 (1997)
- 2 G. Fiocco, L. D. Smullin, *Detection of scattering layers in the upper atmosphere* (60-140 km) by optical radar, Nature **199**, 1275 (1963)
- 3 T. H. Maiman, Stimulated optical radiation in ruby, Nature 187, 493 (1960)
- 4 A. L. Shawlaw, C. H. Townes, *Infrared and optical masers*, Physical Review **112**, 1940 (1958)
- 5 R. M. Measures, Laser remote sensing Fundamentals and applications (Wiley Interscience, New York, 1984)
- J.-P. Wolf, Ultraviolet/Visible Light Detection and Ranging Applications in air monitoring, in Encyclopedia of analytical chemistry Meyers, R. A., Ed. (John Wiley & Sons, Chichester, 2000), vol. 3, pp. 2226-2245
- J. Kasparian, E. Fréjafon, P. Rambaldi, J. Yu, B. Vezin, J. P. Wolf, P. Ritter et P. Viscardi, Characterization of urban aerosols using SEM-microscopy, X-Ray analysis, and Lidar measurements, Atmospheric environment **32**, 2957-2967 (1998)
- J. D. Klett, Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios, Optics Letters,
 24, 1638 (1985)
- 9 J. Kasparian, B. Krämer, J. P. Dewitz, S. Vajda, P. Rairoux, B. Vezin, V. Boutou, T. Leisner, W. Hübner, J.-P. Wolf, L. Wöste et K. H. Bennemann, Angular dependance of third harmonic generation from microdroplets, Physical Review Letters 78, 2952-2955 (1997)
- J. Kasparian, B. Krämer, T. Leisner, P. Rairoux, V. Boutou, B. Vezin, L. Wöste et J.
 P. Wolf, Size dependence of non-linear Mie scattering in microdroplets using ultrashort pulses, Journal of the Optical society of America B 15, 1918-1922 (1998)
- 11 J. Kasparian, J.-P. Wolf, A new transient SRS analysis method of aerosols and application to a non-linear femtosecond Lidar, Optics Communications 152, 355-360 (1998)
- 12 J.-P. Wolf, Y.-L. Pan, G. M. Turner, M. C. Beard, C. A. Schmuttermaer, S. Holler et R. K. Chang, Ballistic trajectories of optical wave packets within microcavities, Physical Review A 64, 023808 (2001)

- 13 L. Wöste, C. Wedekind, H. Wille, P. Rairoux, B. Stein, S. Nikolov, C. Werner, S. Niedermeier, F. Ronnenberger, H. Schillinger et R. Sauerbrey, *Femtosecond atmospheric lamp*, Laser und Optoelektronik **29**, 51 (1997)
- 14 P. Rairoux, H. Schillinger, S. Niedermeier, M. Rodriguez, F. Ronneberger, R. Sauerbrey, B. Stein, D. Waite, C. Wedekind, H. Wille et L. Wöste, *Remote sensing of the atmosphere using ultrashort laser pulses*, Applied Physics B **71**, 573-580 (2000)
- 15 A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier et G. Mourou, *Self-channeling of high*peak-power femtosecond laser pulses in air, Optics Letters **20**, 73-75 (1995)
- 16 E. T. J. Nibbering, P. F. Curley, G. Grillon, B. S. Prade, M. A. Franco, F. Salin et A. Mysyrowicz, Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air, Optics Letters 21, 62 (1996).
- 17 A. Brodeur, C. Y. Chien, F. A. Ilkov, S. L. Chin, O. G. Kosareva et V. P. Kandidov, Moving focus in the propagation of ultrashort laser pulses in air, Optics Letters 22, 304 (1997)
- 18 M. Mlejnek, E. M. Wright, J. V. Moloney, *Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air* Optics Letters **23**, 382 (1998)
- 19 D. Strickland, P.B. Corkum, *Resistance of short pulses to self-focusing*, Journal of the Optical Society of America B **11**, 492 (1994)
- 20 L. Roso-Franco, Self-Reflected Wave inside a Very Dense Saturable Absorber, Physical Review Letters **55**, 2149 (1995)
- 21 R. R. Alfano, S. L. Shapiro, *Emission in the region 4000 to 7000 Å via four-photon coupling in glass*, Physical Review Letters **24**, 584 (1970)
- 22 R. R. Alfano, S. L. Shapiro, Observation of Self-Phase Modulation and Small-Scale Filaments in Crystals and Glasses, Physical Review Letters **24**, 592 (1970)
- 23 R. R. Alfano, S. L. Shapiro, *Direct distortion of electric clouds of rare-gas atoms in intense electric fields*, Physical Review Letters **24**, 1217 (1970)
- A. Brodeur, S. L. Chin, Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media, Journal of the Optical Society of America B 16, 637 (1999)
- 25 Y. Shen, The principles of nonlinear optics, John Wiley & Sons (1984)
- 26 G. Yang, Y. Shen, Spectral broadening of ultrashort pulses in a nonlinear medium, Optics Letters **9**, 510 (1984)

- A. Gaeta, Catastrophic collapse of ultrashort pulses, Physical Review Letters 84, 3582 (2000)
- 28 J. K. Ranka, R. W. Schirmer, A. L. Gaeta, Observation of pulse splitting in nonlinear dispersive media, Physical Review Letters **77**, 3783 (1996)
- 29 A. Proulx, A. Talebpour, S. Petit, S.L. Chin, Fast pulsed electric field created from the self-generated filament of a femtosecond Ti:Sapphire laser pulse in air, Optics Communications **174**, 305 (2000).
- 30 S. Tzortzakis, M. A. Franco, Y.-B. André, A. Chiron, B. Lamouroux, B. S. Prade, A. Mysyrowicz, Formation of a conducting channel in air by self-guided femtosecond laser pulses, Physical Review E 60, R3505-R3507 (1999).
- 31 S. Tzortzakis, B. Prade, M. Franco, A. Mysyrowicz, *Time evolution of the plasma channel at the trail of a self-guided IR femtosecond laser pulse in air*, Optics Commun. **181**, 123 (2000)
- 32 H. Schillinger, R. Sauerbrey, *Electrical conductivity of long plasma channels in air* generated by self-guided femtosecond laser pulses, Applied Physics B **68**, 753 (1999)
- 33 J. Schwarz, P. Rambo, J. C. Diels, *Measurements of multiphoton ionization* coefficients with ultrashort ultraviolet pulses, Applied Physics B **72**, 343-347 (2001)
- 34 D. Strickland, G. Mourou, *Compression of amplified chirped optical pulses*, Optics Communications **56**, 219 (1985)
- 35 P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, G. Mourou, *Tabletop terawatt laser by chirped pulse amplification*, IEEE Journal of Quantum Electronics **24**, 398 (1988)
- P.L. Kelley, Self-focusing of optical beams, Physical Review Letters 15, 1005 (1965); P. L. Kelley, Erratum: Self-focusing of optical beams, Physical Review Letters 16, 384 (1965)
- 37 G.A. Ashkaryan, The self-focusing effect, Sov. Phys. J. 16, 680 (1974)
- 38 X. M. Zhao, P. Rambo, J.-C. Diels, *Effect of oxygen on the laser triggering of lightning*, QELS'95 **16**, 178 (1995)
- 39 J. H. Marburger, E. L. Dawes, *Dynamical formation of a small-scale filament*, Physical Review Letters **21**, 556 (1968). Notons que le rayon considéré dans l'écriture classique de la formule de Marburger est la demi-largeur à $e^{-1/2}$, et non à 1/e ou $1/e^2$ comme usuellement.
- 40 A. Talebpour, J. Young, S.L. Chin, *Influence of beam quality on filamentation of high-power femtosecond laser pulse in air*, Optics Communications **163**, 29 (1999)

- 41 L. V. Keldysh, Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1965)
- 42 J. Kasparian, R. Sauerbrey, S. L. Chin, *The critical laser intensity of self-guided light filaments in air*, Applied Physics B **71**, 877 (2000)
- 43 L. Bergé, A. Couairon, *Gas-induced solitons*, Physical Review Letters **86**, 1003 (2001)
- 44 A. Becker, N. Aközbek, K. Vijayalakshmi, E. Oral, C. M. Bowden, S. L. Chin, Intensity clamping and re-focusing of intense femtosecond laser pulses in nitrogen molecular gas, Applied Physics B 73, 287 (2001).
- 45 B. La Fontaine, F. Vidal, Z. Jiang, C. Y. Chien, D. Comtois, A. Desparois, T. W. Johnston, J.-C. Kieffer, H. Pépin, H. P. Mercure, Filamentation of ultrashort pulse laser beams resulting from their propagation over long distances in air, Physics of Plasmas 6, 1615 (1999).
- M. Rodriguez, R. Bourayou, G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, E. Salmon, A. Scholz,
 B. Stecklum, J. Eislöffel, U. Laux, A. P. Hatzes, R. Sauerbrey, L. Wöste, J.-P. Wolf, *Kilometer-range non-linear propagation of femtosecond laser pulses*, Physical
 Review E 69, 036607 (2004)
- G. Méchain, A. Couairon, Y.-B. André, C. D'amico, M. Franco, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, Long-range self-channeling of infrared laser pulses in air: a new propagation regime without ionization, Applied Physics B 79, 379 (2004)
- W. G. Wagner, H. A. Haus, J. H. Marburger, Large-scale self-trapping of optical beams in the paraxial ray approximation, Physical Review 175, 256 (1968); W. G. Wagner, H. A. Haus, J. H. Marburger, Erratum: Large-scale self-trapping of optical beams in the paraxial ray approximation, Physical Review A, 3, 2150 (1971)
- 49 P. M. Goorjian, A. Taflove, R. M. Joseph, S. C. Hagness, IEEE Journal of Quantum electronics **28**, 2416 (1992)
- 50 J. K. Ranka, A. L. Gaeta, Breakdown of the slowly varying enveloppe approximation in the self-focusing of ultrashort pulses, Optics Letters **23**, 534 (1998).
- 51 A. Chiron, B. Lamouroux, R. Lange, J.-F. Ripoche, M. Franco, B. Prade, G. Bonnaud, G. Riazuelo, A. Mysyrowicz, Numerical simulations of the nonlinear propagation of femtosecond optical pulses in gases, The European Physical Journal D 6, 383 (1999)

- 52 N. Aközbek, C. M. Bowden, A. Talepbour, S. L. Chin, *Femtosecond pulse propagation in air : variational analysis*, Physical Review E **61**, 4540 (2000)
- 53 D. L. Hovhannisyan, Analytic solution of the wave equation describing dispersionfree propagation of a femtosecond laser pulse in a medium with cubic and fifthorder nonlinearity, Optics Commun. **196**, 103 (2001)
- 54 P. Sprangle, J. R. Peñano and B. Hafizi, *Propagation of intense short laser pulses in the atmosphere*, Physical Review E **66**, 046418 (2002).
- 55 M. Mlejnek, M. Kolesik, J. V. Moloney, E. M. Wright, *Optically turbulent femtosecond light guide in air*, Physical Review Letters **83**, 2938 (1999)
- 56 C. Ren, R. G. Hemker, R. A. Fonseca, B. J. Duda, W. B. Mori, *Mutual attraction of laser beams in plasmas: braided light*, Physical Review Letters **85**, 2124 (2000).
- 57 G. Fibich, B. Ilan, *Deterministic vectorial effect lead to multiple filamentation*, Optics Letters **26**, 840 (2001)
- 58 L. Bergé, S. Skupin, F. Lederer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J. P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou, R. Sauerbrey, *Multiple filamentation of TW laser pulses in air*, Physical Review Letters **92**, 225002 (2004)
- 59 S. L. Chin, S. Petit, F. Borne et K. Miyazaki, The white light supercontinuum is indeed an ultrafast white light laser, Japanese journal of Applied physics 38, L126 (1999)
- 60 O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, A. Brodeur, C. Y. Chen, S. L. Chin, Conical emission from laser-plasma interactions in the filamentation of powerful ultrashort laser pulses in air, Optics Letters **22**, 1332 (1997).
- J. Zhang, H. Yang, J. Zhang, X. Lu, Y. Li, Y. Li, H. Teng, Z. Chen, Z. Wei,
 Z. Sheng, 286th Heraeus Seminar on Optical methods in atmospheric analysis,
 Bad Honnef, Germany, 14-18 Ocbober 2002.
- J. Yu, D. Mondelain, G. Ange, R. Volk, S. Niedermeier, J.-P. Wolf, J. Kasparian,
 R. Sauerbrey, Backward supercontinuum emission from a filament generated by ultrashort laser pulses in air, Optics Letters 26, 533-535 (2001)
- 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, L. Wöste, Whitelight filaments for atmospheric analysis, Science **301**, 61 (2003)
- 64 www.teramobile.org

- H. Wille, M. Rodriguez, J. Kasparian, D. Mondelain, J. Yu, A . Mysyrowicz ,
 R. Sauerbrey, J.P. Wolf, L. Woeste, *Teramobile: a mobile femtosecond-terawatt laser and detection system*, European Physical J. Applied Physics **20** 183 (2002)
- 66 A. Couairon, L. Bergé, Light filaments in air for ultraviolet and infrared wavelengths, Physical Review Letters **88**, 135003 (2002).
- 67 M. Mlejnek, E. M. Wright t J. V. Moloney, Power dependence of dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air, Optics Express **4**, 223 (1999).
- G. Méchain, G. Méjean, R. Ackermann, P. Rohwetter, Y. B. André, J. Kasparian,
 B. Prade, K. Stelmaszczyk, J. Yu, E. Salmon, W. Winn, L. A. Schlie,
 A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, L. Wöste, J.-P. Wolf, *Propagation of fs-TW laser filaments in adverse atmospheric conditions*, soumis à Applied Physics B
- S. Skupin, L. Bergé, U. Peschel, F. Lederer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian,
 E. Salmon, J. P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou, R. Sauerbrey,
 Filamentation of femtosecond light pulses in the air: Turbulent cells versus longrange clusters, Physical Review E 70, 046602 (2004)
- 70 M. Mlejnek, E. M. Wright, J. V. Moloney, *Femtosecond pulse propagation in argon:* A pressure dependence study, Physical Review E **58**, 4903 (1998)
- 71 A. Talebpour, S. Petit, S.L. Chin, *Re-focusing during the propagation of a focused femtosecond Ti:Sapphire laser pulse in air*, Optics Communications **171**, 285 (1999)
- J. Yu, D. Mondelain, J. Kasparian, E. Salmon, S. Geffroy, C. Favre, V. Boutou,
 J. P. Wolf, Sonographic probing of laser filaments in air, Applied Optics 42, 7117 (2003)
- S. Tzortzakis, G. Méchain, G. Pantalano, Y.-B. André, B. Prade, M. Franco,
 A. Mysyrowicz, J.-M. Munier, M. Gheudin, G. Beaudin, P. Encrenaz, *Coherent* subterahertz radiation from femtosecond infrared filaments in air, Optics Letters 27, 1944 (2002)
- 74 H. Lehmann, http://www.tls-tautenburg.de/telesc.html (2002).
- J. Kasparian, R. Sauerbrey, D. Mondelain, S. Niedermeier, J. Yu, J.-P. Wolf, Y.-B. André, M. Franco, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, M. Rodriguez, H. Wille, L. Wöste, Infrared extension of the hypercontinuum generated by femtosecond terawatt laser pulses propagating in the atmosphere, Optics Letters 25, 1397 (2000)
- 76 L. Bergé, S. Skupin, G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, J. P. Wolf, Supercontinuum emission and enhanced self-guiding of infrared femtosecond

filaments sustained by third-harmonic generation in air, Physical Review E **71**, 016602 (2005)

- H. R. Lange, G. Grillon, J.-F. Ripoche, M. A. Franco, B. Lamouroux, B. S. Prade,
 A. Mysyrowicz, E. T. J. Nibbering, A. Chiron, Anomalous long-range propagation of femtosecond laser pulses through air: moving focus of pulse self-guiding ?, Optics Letters 23, 120 (1998)
- W. Yu, R. R. Alfano, C. L. Sam, R. J. Seymour, Spectral broadening of picosecond
 1.06 μ pulse in KBr, Optics Communications14, 344 (1975)
- 79 P. B. Corkum, P. P. Ho, R. R. Alfano, J. T. Manassah, Generation of infrared supercontinuum covering 3-14 μm in dielectrics and semiconductors, Optics Letters 10, 624 (1985)
- 80 H. Nishioka, W. Odajima, K. Ueda, H. Takuma, Ultrabroadband flat continuum generation in multichannel propagation of terawatt Ti:sapphire laser pulses, Optics Letters **20**, 2505 (1995)
- G. Méjean, J. Kasparian, E. Salmon, J. Yu, J.-P. Wolf, R. Bourayou, R. Sauerbrey, M. Rodriguez, L. Wöste, H. Lehmann, B. Stecklum, U. Laux, J. Eislöffel, A. Scholz, A. P. Hatzes, *Towards a supercontinuum-based infrared Lidar*, Applied Physics B 77, 357 (2003)
- 82 L. S. Rothman, A. Barbe, D. C. Benner, L. R. Brown, C. Camy-Peyret, M. R. Carleer, K. Chance, C. Clerbaux, V. Dana, V. M. Devi, A. Fayt, J.-M. Flaud, R. R. Gamache, A. Goldman, D. Jacquemart, K. W. Jucks, W. J. Lafferty, J.-Y. Mandin, S. T. Massie, V. Nemtchinov, D. A. Newnham, A. Perrin, C. P. Rinsland, J. Schroeder, K. M. Smith, M. A. H. Smith, K. Tang, R. A. Toth, J. Vander Auwera, P. Varanasi, K. Yoshino, *The HITRAN Molecular Spectroscopic Database: Edition of 2000 Including Updates of 2001*, Journal of quantitative spectroscopy and radiation transfer **82**, 5 (2003)
- 83 L. R. Bissonnette, Multiple-scattering Lidar equation, Applied Optics 35, 6449-6465 (1996)
- H. Pépin, D. Comtois, F. Vidal, C. Y. Chien, A. Desparois, T. W. Johnston, J. C. Kieffer, B. L. Fontaine, F. Martin, F. A. M. Rizk, C. Potvin, P. Couture, H. P. Mercure, A. Bondiou-Clergerie, P. Lalande, I. Gallimberti, *Triggering and guiding high-voltage large-scale leader discharges with sub-joule ultrashort laser pulses*, Physics of Plasmas 8, 2532 (2001).
- B. Comtois, C. Y. Chien, A. Desparois, F. Gérin, G. Jarry, T. W. Johnston,J. C. Kieffer, B. L. Fontaine, F. Martin, R. Mawassi, H. Pépin, F. A. M. Rizk,

F. Vidal, P. Couture, H. P. Mercure, C. Potvin, A. Bondiou-Clergerie, I. Gallimberti, *Triggering and guiding leader discharges using a plasma channel created by an ultrashort laser*, Applied Physics Letters **76**, 819 (2000).

- D. Comtois, H. Pépin, F. Vidal, F. A. M. Risk, C.-Y. Chien, T. W. Johnston, J.-C. Kieffer, B. La Fontaine, F. Martin, C. Potvin, P. Couture, H. P. Mercure, A. Bondiou-Clergerie, P. Lalande, I. Gallimberti, *Triggering and guiding of an upward positive leader from ground rod with an ultrashort laser pulse-I: Experimental results*, IEEE transactions on plasma science **31**, 377 (2003)
- D. Comtois, H. Pépin, F. Vidal, F. A. M. Risk, C.-Y. Chien, T. W. Johnston, J.-C. Kieffer, B. La Fontaine, F. Martin, C. Potvin, P. Couture, H. P. Mercure, A. Bondiou-Clergerie, P. Lalande, I. Gallimberti, *Triggering and guiding of an upward positive leader from ground rod with an ultrashort laser pulse-II: Modeling*, IEEE transactions on plasma science **31**, 387 (2003)
- B. La Fontaine, D. Comtois, C. Y. Chien, A. Desparois, F. Gérin, G. Jarry, T. W. Johnston, J. C. Kieffer, F. Martin, R. Mawassi, H. Pépin, F. A. M. Rizk, F. Vidal, C. Potvin, P. Couture, H. P. Mercure, *Guiding large-scale spark discharges with ultrashort pulse laser filaments*, Journal of Applied Physics 88, 610 (2000).
- 89 M. Rodriguez, R. Sauerbrey, H. Wille, L. Wöste, T. Fujii, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, L. Klingbeil, K. Rethmeier, W. Kalkner, J. Kasparian, E. Salmon, J. Yu, J.-P. Wolf, *Megavolt discharges triggered and guided with laser filaments*, Optics Letters 27, 772 (2002)
- 90 R. Ackermann, K. Stelmaszczyk, P. Rohwetter, G. Méjean, E. Salmon, J. Yu, J. Kasparian, G. Méchain, V. Bergmann, S. Schaper, B. Weise, T. Kumm, K. Rethmeier, W. Kalkner, J. P. Wolf, L. Wöste, *Triggering and guiding of megavolt discharges by laser-induced filaments under rain conditions*, Applied Physics Letters 85, 5781 (2004)
- 91 L. Iorio, Classical and Quantum Gravity 19, 175 (2002)
- 92 W. Liu, S. Petit, A. Becker, N. Aközbek, C. M. Bowden, S. L. Chin, Intensity clamping of a femtosecond laser pulse in condensed matter, Optics Communications 202, 189-197 (2002)
- 93 F. Courvoisier, V. Boutou, J. Kasparian, E. Salmon, G. Méjean, J. Yu et J. P. Wolf, Light filaments transmitted through clouds, Applied physics letters **83**, 213 (2003)

- 94 C. Favre, V. Boutou, S. C.Hill, W. Zimmer, M. Krenz, H. Lambrecht, J. Yu, R. K. Chang, L. Woeste, J.P. Wolf, White-light nanosource with directional emission, Physical Review Letters 89 035002 (2002)
- 95 M. Mlejnek, E. M. Wright and J. V. Moloney, Optics Express 4, 223-228 (1999).
- 96 M. Kolesik, J. V. Moloney, Self-healing femtosecond light filaments, Optics Letters 29, 590 (2004)
- 97 S. Skupin, L. Bergé, U. Peschel, F. Luderer, Interaction of femtosecond light filaments with obscurants in aerosols, Physical Review Letters **93**, 023901 (2004)
- 98 S. L. Chin, A. Brodeur, S. Petit, O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, Filamentation and supercontinuum generation during the propagation of powerful ultrashort laser pulses in optical media (white light laser), Journal of Nonlinear Optical Physics and Materials 8, 121 (1999)
- 99 G. Méjean et al., Multifilamentation transmission through fog, en préparation
- 100 Classification du *World Climate Research Program* (WCRP).Voir par exemple : http://isccp.giss.nasa.gov/cloudtypes.html
- 101 G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, J.-P. Wolf, Remote Detection and Identification of Biological Aerosols using a Femtosecond Terawatt Lidar System, Applied Physics B 78, 535 (2004)
- 102 K. Stelmaszczyk, P. Rohwetter, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, J. Kasparian, R. Ackermann, J.-P. Wolf, L. Wöste, Long-distance remote laser-induced breakdown spectroscopy using filamentation in air, Applied Physics Letters 85, 3977 (2004)
- 103 J. Kasparian, J. Solle, M. Richard, J.-P. Wolf, *Ray tracing simulation of ionizationfree filamentation*, Applied Physics B **79**, 947 (2004)
- 104 D. Censor, Ray theoric analysis of spatial and temporal self-focusing in general weakly nonlinear media, Physical Review A **16**, 1973 (1977)
- 105 M. N. Y. Anwar, R. D. Small, *Geometrical-optics solution for self-focusing in nonlinear optics*, Journal of the Optical society of America **71**, 124 (1981).
- 106 I. Dajani, G. DiPeso, E. C. Morse, R. Ziolkowski, Gaussian beam propagation in a weakly nonlinear medium: A geometrical optics approach, Physical Review A 41, 3740 (1990)
- 107 M. Sonnenschein, D. Censor, *Simulation of Hamiltonian light-beam propagation in nonlinear media*, Journal of the Optical society of America **15**, 1335 (1998)

- 108 T. R. Satoh, Symplectic Ray Tracing: A New Frontier in Non-linear Ray Tracing, Journal of WSCG **11**, 402 (2003)
- 109 R. Bourayou, G. Méjean, J. Kasparian, M. Rodriguez, E. Salmon, J. Yu, H. Lehmann, B. Stecklum, U. Laux, J. Eislöffel, A. Scholz, A. P. Hatzes, R. Sauerbrey, L. Wöste, J.-P. Wolf, White-light filaments for multiparameter analysis of cloud microphysics, Journal of the Optical society of America, 22, 369 (2005)
- 110 H. R. Pruppacher and J. D. Klett, *Microphysics of clouds and precipitation*, Riedel Publishing Company, Dordrecht (Nethernalnds), 1978
- 111 B. Stein, M. Del Guasta, J. Kolenda, M. Morandi, P. Rairoux, L. Stefanutti, J. P. Wolf, L. Wöste, Stratospheric aerosol size distribution from multispectral lidar measurements at Sodankylä during EASOE, Geophysical Research Letters 21, 1311 (1994)
- 112 D. M. Winker, M. P. McCormick, Aerosol and cloud sensing with the Lidar In-space Technology Experiment (LITE), Proceedings of the SPIE **2310**, 98 (1994)
- 113 S. R. Pal and A. I. Carswell, *Multiple scattering in atmospheric clouds: lidar observations*, Applied Optics **15**, 1990 (1976)
- 114 J. S. Ryan, S. R. Pal and A. I. Carswell, *Laser backscattering from dense waterdroplet clouds*, Journal of the Optical Society of America **69**, 60 (1979)
- 115 L. R. Bissonnette, D. L. Hutt, Multiply scattered aerosol lidar returns: inversion method and comparison with in-situ measurements, Applied Optics 34, 6959 (1995)
- 116 R. A. Ferrare, E. V. Brownell, S. Ismail, V. G. Brackett, M. B. Clayton, M. Fenn, L. Heilman, S. A. Kooi, D. D. Turner, M. J. Mahoney, R. E. Newell, Y. Zhu, E. Jensen, J. Barrick, G. Sachse, Lidar Measurements of relative humidity and ice supersaturation in the upper troposphere, International laser radar conference (ILRC 2000), Vichy, France (2000)
- 117 S. Ismail, E. V. Browell, Airborne and spaceborne lidar measurements of water vapor profiles: a sensitivity analysis, Applied Optics **28**, 3603 (1989)
- 118 G. Ehret, C. Liemle, W. Renger, G. Simmet, Airborne remote sensing of tropospheric water vapor with a near-infrared differential absorption lidar system, Applied Optics **32**, 4534 (1993)
- 119 C. Flamant, J. Pelon, L. Eymard, J. Tournadre, SSM/I integrated water vapor content measurements in coastal regions: A comparison with shipborne and airborne remote sensing measurements, radiosonde measurements, and NWP model retrievals, Journal of Geophysical Research. **108**(C3): FET4-1-20 (2003)

- 120 L. Garand, E Gerard, D. Tan, V. Wulfmeyer, G. Ehret, G, P. Di-Girolamo, WALES (Water Vapour Lidar Experiment in Space): impact of space borne measurements on NWP and climate research, Twenty-First International Laser Radar Conference ILRC21, 2, 755 (2002)
- 121 A. Heliere, J. L. Bezy, P. Bensi, P. Ingmann, System definition of the ESA Earth Explorer WALES mission, Proceedings of the SPIE , **4881**, 24 (2003)
- 122 A. J. Wimmers, J. L. Moody, E. V. Browell, J. W. Hair, W. B. Grant, C. F. Butler, M. A. Fenn, C. C. Schmidt, Li Jun, B. A Ridley, Signatures of tropopause folding in satellite imagery, Journal-of-Geophysical-Research 108(D4): TOP8-1-11 (2003)
- 123 D. D. Turner, R. A. Ferrare, L. A. Heilman, T. P. Tooman, A two year climatology of water vapor and aerosols in the lower troposphere measured by a Raman lidar, International laser radar conference (ILRC 2000), Vichy, France (2000)
- 124 C. R. Philbrick, Application of Raman lidar advancements in meteorology and air quality monitoring Proceedings of the SPIE **4893**, 61 (2003)
- 125 G. Pappalardo, A. Amodeo, S. Amoruso, V. Cuomo, P. Di Girolamo, F. Esposito, L. Leone, L. Mona, M. Pandolfi, G. Pavese, R. Restieri, C. Serio, *Measurement* campaign of atmospheric water vapour and aerosols in southern Italy, Proceedings of the SPIE **4891**, 353 (2003)
- 126 M. Douard, R. Bacis, P. Rambaldi, A. Ross, J.-P. Wolf, G. Fabre, R. Stringat, Fourier-transform lidar, Optics Letters 20 2140 (1995)
- 127 F. A. Theopold, C. Weitkamp, W. Michaelis, *Double-cavity étalon in the near infrared*, Optics Letters **18**, 253 (1993)
- 128 J. Bösenberg, Measurements of the pressure shift of water vapor absorption lines by simultaneous photoacoustic spectroscopy, Applied Optics **24**, 3531 (1985)
- 129 M. C. Galvez, M. Fujita, N. Inoue, R. Moriki, Y. Izawa, C. Yamanaka, *Three-wavelength backscatter measurement of clouds and aerosols using a white light lidar system*, Japanese journal of applied physics **41**, L284 (2002)
- 130 H. Lehmann, *Coudé Echelle Spectrograph*, (2002), http://www.tls-tautenburg.de/coude/echelle_spectrograph.html
- 131 O. B. Toon, T. P. Ackerman, Algorithms for the calculation of scattering by stratified spheres, Applied Optics **20**, 3657 (1981)
- 132 T. Back, H. Schwefel, An overview of evolutionary algorithms for parameter optimization, Evolutionnary Computing **1**, 1 (1993)

- 133 A. V. Korolev, G. A. Isaac, I. P. Mazin, H. W. Barker, *Microphysical properties of continental clouds from in situ measurements*, Quaterly Journal of the Royal meteorological society **127**, 2117 (2001)
- 134 N. L. Miles, J. Verlinde, E. E. Clothiaux, *Cloud droplet size distributions in lowlevel stratiform clouds*, Journal of the atmospheric sciences **57**, 295 (2000)
- 135 G. Mégie, Mesure de la pression et de la température atmosphériques par absorption différentielle lidar: influence de la largeur d'émission laser, Applied Optics 19, 34 (1980)
- 136 S. C. Hill, V. Boutou, J. Yu, S. Ramstein, J.-P. Wolf, Y. Pan, S. Holler, R. K. Chang, Enhanced backward-directed multiphoton-excited fluorescence from dielectric microspheres, Physical Review Letters 85, 54 (2000)
- 137 J.-P. Wolf, Y. Pan, S. Holler, G. M. Turner, M. C. Beard, R. K. Chang, A.Schmuttenmaer, Ballistic trajectories of optical wave packets within microcavities, Physical Review A 64, 023808 (2001)
- 138 L. Méès, J.P. Wolf, G. Gouesbet, G. Gréhan, *Two-photon absorption and fluorescence in a spherical micro-cavity illuminated by using two laser pulses: numerical simulations*, Optics Communications **208** 371 (2002)
- 139 T. Brixner, N. Damrauer, P. Niklaus, G. Gerber, *Photoselective adaptative femtosecond quantum control in the liquid phase*, Nature **414**, 57-60 (2001)
- 140 R. J. Levis, G. M. Menkir, H. Rabitz, Selective bond dissociation and rearrangement with optimally tailored, strong-field laser pulses, Science 292, 709-713 (2001)
- Y. S. Cheng, E. B. Barr, B. J. Fan, P. J. Hargis, D. J. Rader, T. J. O'Hern, J. R. Torczynski, G. C. Tisone, B. L. Preppernau, S. A. Young, R. J. Radloff, S. L. Miller, J. M. Macher, *Detection of Bioaerosols Using Multiwavelength UV Fluorescence Spectroscopy*, Aerosol Science and Technology **30**, 186 (1999)
- 142 S. C. Hill, R. G. Pinnick, S. Niles, Y. L. Pan, S. Holler, R. K. Chang, J. R. Bottiger, B. T. Chen, C. S. Orr, G. Feather, *Real-time measurement of fluorescence spectra from single airborne biological particles*, Field Analytical Chemistry and Technology **3**, 221 (1999)
- 143 G. W. Faris, R. A. Copeland, K. Mortelmans, B. V. Bronk, Spectrally resolved absolute fluorescence cross sections for bacillus spores, Applied Optics 36, 958 (1997)

- J. Hein, S. Podelska, M. Siebold, M. Hellwing, R. Bodefeld, R. Sauerbrey, D. Ehrt,
 W. Wintzer, *Diode-pumped chirped pulse amplification to the joule level* Applied
 Physics B **79**, 419 (2004)
- 145 M. Lippitz, W. Erker, H. Decker, K.E. van Holde, T. Basche, Two-photon excitation microscopy of tryptophan-containing proteins, Proceedings of the National Academy of Sciences 99, 2772 (2002)
- 146 A. Rehms, P. Callis, *Two-photon fluorescence excitation spectra of aromatic amino acids*, Chemical Physics Letters **208**, 276 (1993)
- 147 B. Wattelier, C. Sauteret, J-C. Chanteloup, A. Migus, Beam-focus shaping by use of programmable phase-only filters:application to an ultralong focal line, Optics Letters 27, 213 (2002)
- 148 D. A. Cremers, A.K. Knight, Laser-induced Breakdown Spectroscopy, in Encyclopedia of Analytical Chemistry (Wiley, New York, 2000), vol. **11**, p. 9595
- 149 S. M. Angel, D. N. Stratis, K. L. Eland, T. Lai, M. A. Berg, D. M. Gold, LIBS using dual-and ultrashort laser pulses, Fresenius Journal of Analitical Chemistry 369, 320 (2001)
- 150 R. Niessner, *Monitoring of waste-handling technologies by fiber-optic chemical* sensors, Proceedings of the SPIE, **2360**, 254 (1994)
- 151 Y. Jong-II, R. Klenze, J. I. Kim, Laser-induced breakdown spectroscopy for the online multielement analysis of highly radioactive glass melt simulants. II. Analyses of molten glass samples, Applied Spectroscopy, 56, 852 (2002)
- 152 A. K. Knight, N. L. Scherbarth, D. A. Cremers, M. J. Ferris, Characterization of laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS) for application to space exploration, Applied Spectroscopy 54, 331 (2000).
- 153 R. C. Wiens R. E. Arvidson, D. A. Cremers, M. J. Ferris, J. D. Blacic, F. P. Seelos IV, Combined remote mineralogical and elemental identification from rovers: Field and laboratory tests using reflectance and laser-induced breakdown spectroscopy, Journal of Geophysical Research E: Planets, **107**(E11): FIDO3-1-14 (2002)
- 154 S. K. Sharma, P. G. Lucey, M. Ghosh, H. W. Hubble, K. A. Horton, Stand-off Raman spectroscopic detection of minerals on planetary surfaces, Spectrochimica Acta A 59, 2391 (2003)
- 155 S. Kyuseok, L. Yong-Ill, J. Sneddon, *Applications of laser-induced breakdown* spectrometry, Applied Spectroscopy Reviews, **32**, 183 (1997)

- 156 P. Rohwetter, K. Stelmaszczyk, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, J. Kasparian, J.-P. Wolf, L. Wöste, *Remote LIBS with ultra-short pulses: characteristics in picosecond and femtosecond regimes*, Journal of Analytical Atomic Spectroscopy 19, 437 (2003)
- 157 O. Albert, S. Roger, Y. Glinec, J. C. Loulergue, J. Etchepare, C. Boulmer-Leborgne, J. Perrière, E. Millon, *Time-resolved spectroscopy measurements of a titanium plasma induced by nanosecond and femtosecond lasers*, Applied Physics A 76, 319 (2003)
- 158 K. Dou E. T. Knobbe, R. L. Parkhill, B. Irwin, L. Matthews, K. H. Church, Femtosecond study of surface structure and composition and time-resolved spectroscopy in metals, Applied Physics A **76**, 303 (2003)
- 159 M. Kraushaar, R. Noll, H.-U. Schmitz, *Slag Analysis with Laser-Induced Breakdown* Spectrometry, Applied Spectroscopy, **57** 1282 (2003)
- 160 J. E. Carranza, David W. Hahn, Analitical Chemistry, 74, 5450 (2002)
- 161 R. A. Walters, J. B. Rose, Man portable LIBS system with high-resolution broadband spectrometer and active Q-switched laser, EMSLIBS, Hersonissos, Grèce, Septembre 2003
- 162 K. Melessanaki, M. P. Mateo, S. C. Ferrence, P. Betancourt, D. Anglos, The application of LIBS for the analysis of archaeological ceramic and metal artifacts, Applied Surface Science **197-198**, 156 (2002)
- 163 A. I. Whitehouse, J Young, I M Botheroyd, S Lawson, C P Evans, J Wright, Remote material analysis of nuclear power station steam generator tubes by laserinduced breakdown spectroscopy, Spectrochemica Acta B, 56, 821 (2001)
- 164 S. Palanco, L.M. Cabalin, D. Romero, J. J. Laserna, Infrared laser ablation and atomic emission spectrometry of stainless steel at high temperatures, Journal of Analytical and Atomic Spectrometry 14, 1883 (1999)
- 165 S. Palanco, S. Conesa, J. J. Laserna, Field deployable or remote enabled? A portable laser-induced plasma spectrometer for field remote sensing, EMSLIBS, Hersonissos, Grèce, Septembre 2003
- 166 J. Kruger, W. Kautek, *The femtosecond pulse laser: a new tool for micromachining*, Laser Physics, **9**, 30 (1999)
- 167 F. Garrelie, A. S. Loir, C. Donnet, F. Rogemond, R. Le-Harzic, M. Belin, E. Audouard, P. Laporte, Femtosecond pulsed laser deposition of diamond-like carbon thin films for tribological applications, Surface and Coatings Technology, 163-164, 306 (2003)

- 168 M. Hashida A. F. Semerok, O. Gobert, G. Petite, Y. Izawa, J. F. Wagner, Ablation threshold dependence on pulse duration for copper, Applied Surface Science 197-198, 862 (2002)
- 169 P. Hubert, Triggered lightning in France and New Mexico, Endeavour 8, 85 (1984)
- 170 A. Eybert-Bérard, C. Leteinturier, Déclenchement artificiel de la foudre : moyens d'essais et mesures électriques, Revue Générale d'Électricité, n° 3 (Mars), 25 (1989)
- 171 D.W. Koopman, T. D. Wilkerson, *Channeling of an Ionizing Electrical Streamer by a Laser Beam*, Journal of Applied Physics **42**, 1883 (1971)
- 172 L. M. Ball, *The laser lightning rod system: thunderstorm domestication*, Applied Optics **13**, 2292 (1974)
- 173 M. Miki, Y. Aihara, T. Shindo, *Development of long gap discharges guided by a pulsed CO*₂ *laser*, Journal of Physics D: Applied Physics **26**, 1244 (1993)
- M. Miki, T. Shindo, Y. Aihara, Mechanisms of guiding ability of CO₂ laser-produced plasmas on pulsed discharges, Journal of Physics D: Applied Physics 29, 1984 (1996)
- 175 P. Rambo, J. Schwartz, J.-C. Diels, High-voltage electrical discharges induced by an ultrashort-pulse UV laser system, Journal of Optics A: Pure and Applied Optics 3, 146 (2001).
- 176 R. Ackermann et al., The role of the space-stem in negative discharges triggered by laser-produced plasma channels, en préparation
- M. Baker, J. Nelson, A new model of charge transfer during ice-ice collisions, Comptes rendus de l'Académie des Sciences IV : physique-astrophysique 3, 1293 (2002)
- 178 T. Shindo, M. Miki, Y. Aihara, A. Wada, *Laser guided discharges in long gaps*, IEEE transactions on Power Delivery **8**, 2016 (1993)
- 179 M. A. Hader, M. A. Jog, Effect of Drop Deformation on Heat Transfer to a Drop Suspended in an Electrical Field, Journal of Heat Transfer-Transactions of the ASME, **120**, 682 (1998)
- 180 G. Méjean et al., Improved laser triggering and guiding of Mega Volt discharges with fs-ns double pulses, en préparation
- 181 C. Hönninger, R. Paschotta, M. Graf, F. Morier-Genoud, G. Zhang, M. Moser, S. Biswal, J. Nees, A. Braun, G.A. Mourou, I. Johannsen, A. Giesen, W. Seeber, U.

Keller, Ultrafast ytterbium-doped bulk lasers and laser amplifiers, Applied Physics B **69**, 3 (1999).

- 182 A. A. Lagatsky, C. T. A. Brown, W. Sibbett, Highly efficient and low threshold diode-pumped Kerr-lens mode-locked Yb:KYW laser, Optics Express 12, 3928 (2004)
- 183 A. Dubietis, G. Jonusauskas, and A. Piskarskas, *Powerful femtosecond pulse* generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal, Optics Communications **88**, 437 (1992)
- 184 M. J. Guardalben, J. Keegan, L. J. Waxer, V. Bagnoud, I. A. Begishev, J. Puth, and J. D. Zuegel, Design of a highly stable, high-conversion-efficiency, optical parametric chirped-pulse amplification system with good beam quality, Optics Express 11, 2511, (2003)