



HAL
open science

Contrôle de rayonnements térahertz intenses produits par lasers femtosecondes et applications à la détection de molécules

Alisée Nguyen

► **To cite this version:**

Alisée Nguyen. Contrôle de rayonnements térahertz intenses produits par lasers femtosecondes et applications à la détection de molécules. Optique [physics.optics]. Université Paris Saclay (COMUE), 2019. Français. NNT : 2019SACLS020 . tel-02147016

HAL Id: tel-02147016

<https://theses.hal.science/tel-02147016>

Submitted on 4 Jun 2019

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.

Contrôle de rayonnements térahertz intenses produits par lasers femtosecondes et applications à la détection de molécules

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay
préparée à l'Université Paris-Sud
au Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives

Ecole doctorale n°572 Ondes et Matière (EDOM)
Spécialité de doctorat : Optique et photonique

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 28 janvier 2019, par

MME ALISÉE NGUYEN

Composition du Jury :

Mme Danielle Dowek		
Directrice de Recherche CNRS, Université Paris-Sud		Présidente du jury
M. Jean-Louis Coutaz		
Professeur, Université Savoie Mont Blanc		Rapporteur
Mme Tatiana Itina		
Directrice de Recherche CNRS, Université de Lyon		Rapporteuse
M. Matteo Clerici		
Professeur Associé, Université de Glasgow, Royaume-Uni		Examineur
M. Stefan Skupin		
Chargé de Recherche CNRS, Université de Lyon		Examineur
M. Jean-Pierre Wolf		
Professeur, Université de Genève, Suisse		Examineur
M. Luc Bergé		
Directeur de Recherche CEA, CEA-DIF		Directeur de thèse
M. Philippe Adam		
Ingénieur, Direction Générale de l'Armement		Invité

Remerciements

Je souhaite ici remercier toutes les personnes qui m'ont accompagnées pendant ce travail de thèse. Celui-ci a été financé par le Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives et la Direction Générale de l'Armement, que je remercie pour leur soutien.

Je veux tout d'abord adresser mes remerciements à mon directeur de thèse, M. Luc Bergé, pour avoir encadré ce travail de thèse pendant trois ans. Merci infiniment pour tes conseils, ta disponibilité, ton soutien et ton implication dans mon sujet. Merci pour ces années de travail fructueux et les nombreuses opportunités de le présenter et le partager.

Je veux aussi remercier les membres du jury pour avoir accepté d'évaluer avec pertinence mon travail et ma soutenance, ainsi que pour les discussions qui en ont découlé. Je remercie Mme Danielle Dowek d'avoir présidé ce jury. Je remercie également les rapporteurs, Mme Tatiana Itina et M. Jean-Louis Coutaz, pour leur lecture attentive de ce présent manuscrit et leurs remarques. Je remercie MM. Matteo Clerici, Stefan Skupin, Jean-Pierre Wolf et Philippe Adam qui ont bien voulu être examinateurs dans mon jury.

Je souhaite aussi remercier toutes les personnes avec qui j'ai eu l'occasion de collaborer. Merci à tous les participants du projet ALTESSE pour cette fructueuse collaboration : Jean-Christophe Delagnes et Eric Cormier du CELIA, Korbinian Kaltenecker, Sebastian Engelbrecht et Lionel Merlat de l'ISL, Binbin Zhou et Peter Jepsen de DTU, et Philippe Adam de la DGA. Je remercie aussi les personnes de l'ISL pour leur accueil durant les deux semaines d'expériences auxquelles j'ai pu assister. Je remercie aussi tous ceux avec qui j'ai pu collaborer pour l'écriture d'articles : Merci en particulier à Pedro, Jérémy, Illia et Stefan.

Je veux aussi remercier tous les membres du service qui m'a accueillie : Merci aux deux directeurs successifs, Franck et Florian. Un grand merci à Sylvie et Brigitte pour leur aide dans les démarches administratives. Merci également aux chercheurs du service : Laurent, Xavier D., Didier, Benoît, Jean-Étienne, Gaëtan, Xavier V., Serge. Merci aussi à tous les thésards que j'ai pu rencontrer : Pedro et Pierre-Louis avec qui j'ai partagé un

bureau, Jérémy, Bertrand, Simon, Julien, Vivien, Antoine, Manuel, Marine, David. Merci également aux stagiaires qui sont restés un peu moins longtemps : Adrien, Adélie, Aurélie, Luke, Lise. J'espère n'avoir oublié personne !

Enfin, je remercie toute ma famille, et particulièrement mes parents, mon frère Christopher et Dimitri, pour leur soutien pendant toutes mes années d'études, mais aussi pour l'organisation de ma soutenance et du pot.

Résumé

Titre : Contrôle de rayonnements térahertz intenses produits par lasers femtosecondes et applications à la détection de molécules

Mots clés : Sources térahertz intenses, Interaction laser-matière, Optique nonlinéaire

Résumé : Les ondes térahertz (THz), situées entre l'infrarouge et les micro-ondes dans le spectre électromagnétique, correspondent aux fréquences caractéristiques de nombreux mouvements moléculaires et permettent ainsi de caractériser des molécules complexes par spectroscopie dans le domaine temporel. Cette thèse a pour objectif d'étudier les champs THz émis par une source constituée d'une impulsion laser à deux couleurs générant un plasma par ionisation de l'air. En raison de l'asymétrie temporelle du champ laser, un courant électronique présentant une composante basse-fréquence dans la gamme THz est formé dans le plasma par conversion nonlinéaire et produit un champ secondaire comprenant une composante THz. Les effets nonlinéaires intervenant dans la génération du rayonnement THz sont l'effet Kerr à basse intensité ($< 10^{13}$ W/cm²) et les photocourants à plus haute intensité ($> 10^{13}$ W/cm²), au-dessus du seuil d'ionisation. Ce dernier mécanisme, qui génère le plus de rayonnement THz, est principalement étudié dans ce manuscrit. Si la puissance crête de l'impulsion laser est suffisamment élevée, des filaments de lumière peuvent être formés par combinaison de l'effet Kerr focalisant et de la formation d'un plasma défocalisant. Le phénomène de filamentation laser permet ainsi de créer des ondes THz à distance. En modulant l'impulsion laser, il est aussi possible de modifier les champs et spectres THz associés. En particulier, nous étudions les effets d'une dérive de fréquence et de la combinaison de multi-impulsions sur l'efficacité de conversion laser-THz. Nous consacrons en outre une large part de nos études à l'influence de l'augmentation de la longueur d'onde laser sur le rendement en énergie de l'émission THz.

Abstract

Title : Control of intense terahertz radiations produced by femtosecond lasers and applications to the detection of molecules

Keywords : Intense terahertz sources, Laser-matter interaction, Nonlinear optics

Abstract : The terahertz waves (THz), located between the infrared and the microwaves in the electromagnetic spectrum, correspond to the characteristic frequencies of numerous molecular motions and thus make it possible to characterize complex molecules by time-domain spectroscopy. This thesis aims to study the THz fields emitted by a source formed by a two-color laser pulse generating a plasma by air ionization. Due to the time asymmetry of the laser field, an electric current having a low-frequency component in the THz range is formed in the plasma by nonlinear conversion, generating a secondary field including a THz component. The nonlinear effects involved in the generation of THz radiation are the Kerr effect at low intensity ($< 10^{13}$ W/cm²) and the photocurrents at higher intensity ($> 10^{13}$ W/cm²), above the ionization threshold. This latter mechanism, which generates the most THz radiation, is mainly studied in this manuscript. If the peak power of the laser pulse is sufficiently high, light filaments can be created by combining the focusing Kerr effect and the defocusing action of the plasma. So, the filamentation process can produce THz waves remotely. By modulating the laser pulse, it is possible to modify the associated THz fields and spectra. In particular, we study the effects of pulse chirping and multi-pulse combination. We also devote a large part of our studies to the influence of increasing the laser wavelength on the THz energy yield.

Table des matières

Remerciements	i
Résumé	iii
Abstract	v
Définitions et notations	xi
1 Introduction	1
1.1 Les ondes térahertz	3
1.1.1 Description	3
1.1.2 Technologies pour la production de rayonnement THz	5
1.1.3 Utilisations potentielles des ondes THz	9
1.2 Spectroscopie THz : le projet ALTESSE	13
1.2.1 Description et objectifs du projet	13
1.2.2 Spectroscopie d'explosifs et de similis sur de courtes distances	14
1.2.3 Vers une détection à grande distance	24
1.3 Problématique et organisation du mémoire	27
1.3.1 Présentation du sujet	27
1.3.2 Cadre de travail, financements et ressources informatiques	27
1.3.3 Plan	28
2 Génération de rayonnement THz par interaction laser-plasma	29
2.1 Mécanismes physiques	31
2.1.1 Champ laser initial	31
2.1.2 Equations de Maxwell	33

2.1.3	Effets Kerr et Raman	34
2.1.4	Photo-ionisation et modèle “Local Current”	42
2.1.5	Comparaison photocourants/effet Kerr sur les spectres et champs THz émis	62
2.2	Le modèle UPPE	65
2.2.1	Des équations de Maxwell aux équations unidirectionnelles	65
2.2.2	Validation et limitations du modèle UPPE	69
2.3	Conclusion	76
3	Ingénierie THz par dérive de fréquence et impulsions décalées en temps	79
3.1	Introduction	80
3.2	Critère “optique” pour évaluer l’efficacité de conversion laser-THz	84
3.2.1	Principe général	84
3.2.2	Configuration du champ laser incident	85
3.2.3	Un critère LC “tout-optique”	88
3.3	Simulations 3D en géométrie focalisée	93
3.4	Simulations 3D en régime de filamentation	95
3.5	Conclusion	100
4	Impact de la longueur d’onde laser sur l’émission de rayonnement THz	103
4.1	Introduction	104
4.2	Variation de la longueur d’onde laser dans le proche infrarouge ($0.8 - 2.2 \mu\text{m}$)	106
4.2.1	Calculs analytiques	107
4.2.2	Comparaison avec des simulations UPPE 3D	111
4.2.3	Conclusion	121
4.3	Variation de la longueur d’onde laser dans l’infrarouge lointain ($0.8 - 10.6 \mu\text{m}$)	122
4.3.1	Résultats du modèle LC	122
4.3.2	Simulations UPPE 3D	124
4.3.3	Ionisation coulombienne à plusieurs corps	131
4.3.4	Conclusion	134
4.4	Résultats expérimentaux et numériques du projet ALTESSE pour les grandes longueurs d’onde laser	134
4.4.1	Installations laser	136
4.4.2	Données expérimentales	137
4.4.3	Paramètres des faisceaux et génération de second harmonique	139
4.4.4	Résultats des simulations	144
4.5	Conclusion	147

5 Conclusion	149
Bibliographie	156
Annexes	167
A Calcul de la polarisation Raman	169
B Calcul des instants d'ionisation	173
C Implémentation numérique	177
D Liste complète des publications et présentations	183

Définitions et notations

Constantes physiques

Les différentes constantes utilisées dans ce manuscrit sont les suivantes :

Nom	Symbole	Valeur	Unité
vitesse de la lumière	c	2.99792458×10^8	m.s^{-1}
permittivité du vide	ϵ_0	$8.854187817620391 \times 10^{-12}$	$\text{m}^{-3}.\text{kg}^{-1}.\text{s}^4.\text{A}^2$
perméabilité du vide	μ_0	$1.25663706 \times 10^{-6}$	$\text{m.kg.s}^{-2}.\text{A}^{-2}$
constante de Planck réduite	\hbar	$1.054571725336289 \times 10^{-34}$	J.s
charge élémentaire	e	$1.602176565 \times 10^{-19}$	C
masse de l'électron	m_e	$9.109382910 \times 10^{-31}$	kg

TABLE 1 – Tableau regroupant différentes constantes physiques utilisées dans ce mémoire, leur symbole, leur valeur et leur unité dans le Système International.

Vecteurs

Dans tout ce manuscrit, les vecteurs sont notés en gras.

Transformées de Fourier

La transformée de Fourier d'une fonction f sera notée \hat{f} . La transformée de Fourier en espace est définie par

$$\hat{f}(k_x) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(x)e^{-ik_x x} dx \quad (1)$$

et sa transformée de Fourier inverse associée par

$$f(x) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \hat{f}(k_x)e^{ik_x x} dk_x \quad (2)$$

La transformée de Fourier en temps est définie de manière inverse par rapport à celle en espace, soit

$$\widehat{f}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t)e^{i\omega t} dt \quad (3)$$

et sa transformée de Fourier inverse associée est

$$f(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \widehat{f}(\omega)e^{-i\omega t} d\omega. \quad (4)$$

Produit de convolution

Le produit de convolution entre deux fonctions f et g sera noté $f * g$ et vaut

$$(f * g)(x) = (g * f)(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(x')g(x - x')dx' = \int_{-\infty}^{+\infty} g(x')f(x - x')dx'. \quad (5)$$

Les relations avec la transformée de Fourier sont

$$\widehat{(f * g)}(k_x) = \widehat{f}(k_x)\widehat{g}(k_x), \quad (6)$$

$$\widehat{(fg)}(k_x) = \frac{1}{2\pi}(\widehat{f} * \widehat{g})(k_x). \quad (7)$$

Sommaire

1.1 Les ondes térahertz	3
1.1.1 Description	3
1.1.2 Technologies pour la production de rayonnement THz	5
1.1.2.1 Synchrotron et laser à électrons libres	5
1.1.2.2 Antenne photo-conductrice	5
1.1.2.3 Laser à cascade quantique	5
1.1.2.4 Rectification optique dans les cristaux nonlinéaires	7
1.1.2.5 Interaction laser-plasma	7
1.1.3 Utilisations potentielles des ondes THz	9
1.1.3.1 Imagerie médicale	10
1.1.3.2 Spectroscopie moléculaire	10
1.1.3.3 Sécurité	12
1.1.3.4 Autres utilisations	12
1.2 Spectroscopie THz : le projet ALTESSE	13
1.2.1 Description et objectifs du projet	13
1.2.2 Spectroscopie d'explosifs et de simulis sur de courtes distances	14
1.2.2.1 Méthode ABCD	15
1.2.2.2 Comparaison avec des simulations CASTEP	18
1.2.2.3 Comparaison des détections en transmission et en réflexion	20
1.2.2.4 Modulations des spectres THz : plasmas elliptiques	22
1.2.3 Vers une détection à grande distance	24
1.3 Problématique et organisation du mémoire	27
1.3.1 Présentation du sujet	27

1.3.2	Cadre de travail, financements et ressources informatiques . . .	27
1.3.3	Plan	28

Ce chapitre introductif n'est pas formulé d'une manière conventionnelle, qui consisterait à présenter un bref rappel du contexte et des résultats généraux acquis dans le passé avant d'introduire ceux à venir dans le présent mémoire. Nous avons souhaité aussi y présenter les résultats expérimentaux originaux du projet ANR-ASTRID ALTESSE¹ qui a motivé les travaux de cette thèse. En conséquence de quoi, ce chapitre est composé de trois parties distinctes.

Dans une première partie, nous présentons l'état de l'art sur la production et la détection d'ondes térahertz (THz), dont nous décrivons les caractéristiques, les différents moyens de production et les applications. La génération de rayonnement THz par interaction laser femtoseconde - plasma est introduite, notamment pour ses applications à la spectroscopie THz. Les spectres THz générés par cette technique présentent une bande suffisamment large pour permettre d'opérer efficacement une spectroscopie discriminante. Par ailleurs, en exploitant la propagation nonlinéaire des impulsions femtosecondes dans l'air, des filaments optiques peuvent être créés par auto-guidage de la lumière, via le processus de filamentation laser, et se propager sur plusieurs dizaines de mètres, ce qui ouvre la voie à la spectroscopie à distance.

Dans une deuxième partie, les résultats expérimentaux de spectroscopie sur des explosifs et des produits simulants obtenus dans le cadre du projet ALTESSE, auquel cette thèse est rattachée, sont détaillés. Ces résultats sont des données originales rentrant dans les découvertes associées à ce travail.

Enfin, dans une troisième partie, la problématique et le plan de ce manuscrit de thèse, relatifs aux travaux de modélisation numérique que j'ai réalisés, sont annoncés.

1. "Air-Laser based Terahertz Spectroscopy of Explosives", financé par l'Agence Nationale de la Recherche dans son programme d'Accompagnement Spécifique des Travaux de Recherches et d'Innovation Défense (ANR-ASTRID).

1.1 Les ondes térahertz

1.1.1 Description

La gamme de fréquences térahertz (abrégé THz, $1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz}$) est située entre l'infrarouge et le domaine des micro-ondes. Dans la suite, compte tenu des larges bandes de nos jours accessibles, on qualifiera de THz les ondes ayant une fréquence comprise entre 0.1 et 100 THz. Cette gamme de fréquences correspond à des longueurs d'onde entre $3 \mu\text{m}$ et 3 mm et à des énergies de photons entre 0.4 meV et 0.4 eV . Pour le domaine conventionnel $< 10 \text{ THz}$, les températures impliquées par de tels photons sont plutôt faibles (6.46 THz correspondent à 37°C). Le rayonnement THz est donc en général peu énergétique, contrairement aux rayonnements ionisants appartenant au domaine spectral des X et au-delà. La figure 1.1 schématise la partie du spectre électromagnétique voisine des fréquences THz, du domaine des micro-ondes à l'ultraviolet.

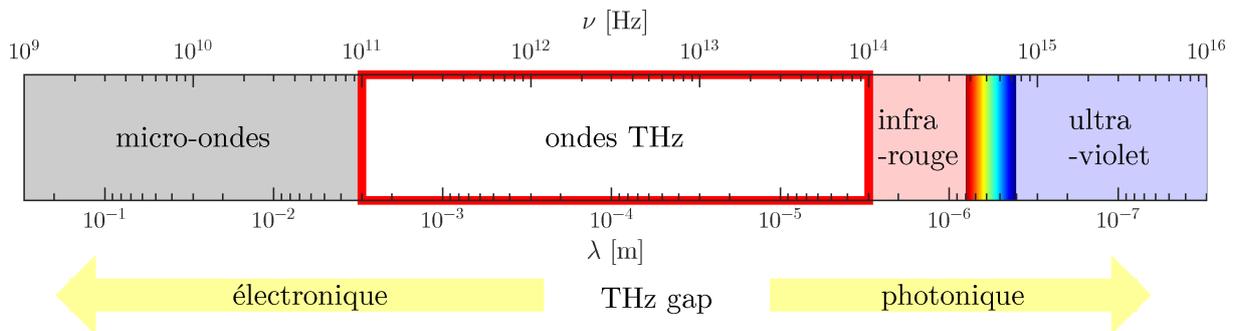


FIGURE 1.1 – Spectre électromagnétique autour de la région THz montrant les fréquences allant du domaine des micro-ondes au visible. L'axe du haut précise les fréquences notées ν en Hertz et celui du bas les longueurs d'onde notées λ en mètres.

La région du spectre des fréquences THz correspond aux mouvements lents des macro-molécules, c'est-à-dire à leurs transitions évoluant sur des échelles picosecondes [42]. Elle permet par conséquent de caractériser des molécules complexes, en particulier celles contenant divers groupements chimiques fonctionnels. En effet, chaque macro-molécule a une signature spectrale unique, sa propre "empreinte digitale" dans le domaine THz. Alors que les rayonnements opérant dans l'infrarouge lointain et moyen caractérisent les mouvements rapides des atomes au sein d'une molécule, la gamme THz permet d'accéder à des mouvements de rotations et vibrations plus lents de groupements d'atomes constitutifs de grands édifices moléculaires. Les ondes THz ont ainsi la capacité d'exciter des liaisons de faible énergie inter-moléculaires comme les liaisons hydrogène. Connaître l'émission THz d'une macro-molécule doit donc permettre de caractériser des groupements fonctionnels d'atomes et de les identifier. Le rayonnement THz permet en particulier de sonder les mouvements inter-moléculaires, qui sont des mouvements lents de rotation de macro-

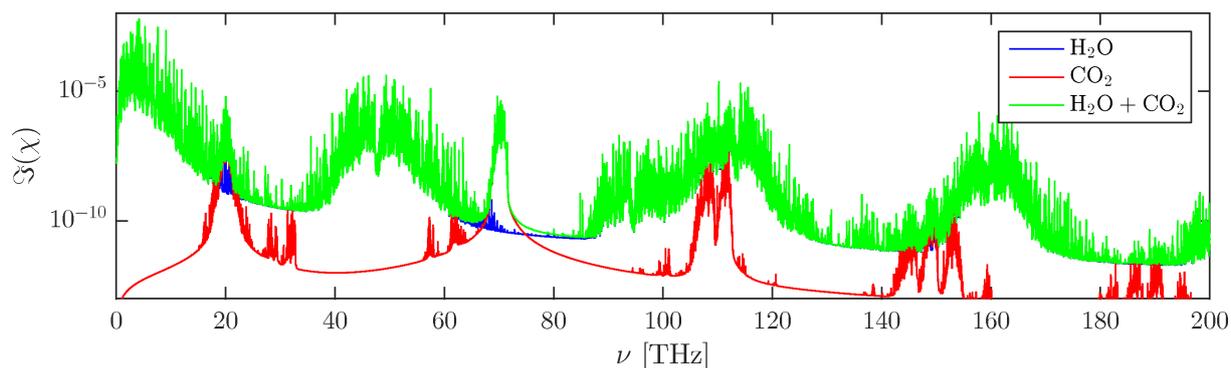


FIGURE 1.2 – Spectre dans le domaine THz de la partie imaginaire de la susceptibilité, correspondant à l’absorption d’un rayonnement électromagnétique lors de sa propagation dans l’air. Ce spectre a été construit en utilisant les raies d’absorption de la vapeur d’eau, du dioxyde de carbone et de leurs dérivés issus de la base de données HITRAN².

molécules au sein d’un échantillon. Certains mouvements intra-moléculaires, caractérisés par des dipôles locaux à l’échelle atomique, ont aussi leur signature dans ce domaine THz élargi vers l’infrarouge lointain, ce qui complète la caractérisation des macro-molécules.

Cependant, du point de vue technologique, les rayonnements THz sont difficiles d’accès, que ce soit pour les produire ou les détecter. On parle communément de “THz gap”, car les fréquences THz sont trop hautes pour les technologies électroniques, qui atteignent difficilement des fréquences de 1 THz, et trop basses pour le domaine de la photonique, où des sources laser directes opèrent dans l’infrarouge lointain (≥ 30 THz). La partie suivante détaille différentes méthodes utilisées pour générer des rayonnements THz.

Une autre limitation à l’utilisation de rayonnements THz est qu’ils sont fortement absorbés lors de leur propagation dans l’air, notamment par la vapeur d’eau et le dioxyde de carbone. La figure 1.2 montre la partie imaginaire de la susceptibilité de l’air, qui est très élevée dans le domaine THz dû à la présence de raies d’absorption de l’eau, du dioxyde de carbone et de leur dérivés, notamment entre 0 et 10 THz, puis 40 et 60 THz pour la vapeur d’eau, et autour de 20 et 70 THz pour le dioxyde de carbone. Par exemple, une onde à 10 THz verra son amplitude divisée de moitié après 17 cm de propagation dans l’air à 60% d’humidité, et il ne restera plus que 1.5% de son amplitude initiale après un mètre de propagation.

Pour effectuer une détection atmosphérique à distance efficace avec des ondes THz, il est donc nécessaire de produire des champs forts de plusieurs GV/m, avec des largeurs spectrales de plusieurs dizaines de THz pour identifier à la fois les mouvements inter- et intra-moléculaires et ainsi caractériser précisément les matériaux étudiés.

2. <http://hitran.iao.ru/>

1.1.2 Technologies pour la production de rayonnement THz

Ce paragraphe présente différentes technologies pour la génération d'ondes THz. D'autres dispositifs purement électroniques existent (diodes de Schottky, diode Varicap, ...) utilisant une source d'excitation laser. Leurs émissions se rapprochent de la gamme THz mais les fréquences émises excèdent rarement le THz, sont peu énergétiques et en général produisent des spectres à bande étroite. C'est pourquoi les outils utilisés pour la génération d'ondes THz appartiennent généralement au domaine de la photonique et s'appuient sur des nonlinéarités réalisant la conversion d'une onde optique à large bande vers les basses fréquences.

1.1.2.1 Synchrotron et laser à électrons libres

Des ondes THz peuvent être émises par rayonnement synchrotron d'électrons accélérés. En effet, des électrons sont accélérés grâce à des accélérateurs linéaire puis circulaire, puis injectés dans un anneau dans lequel ils sont déviés et déccélérés. Cette déccélération s'accompagne de rayonnement synchrotron, qui peut être dans la gamme THz selon l'énergie des électrons. Dans le cas de la ligne AILES du synchrotron SOLEIL de l'Université Paris-Saclay [2], du rayonnement THz peut être produit continûment de 0.1 à 45 THz. Ce type d'installation a donc de nombreuses applications, notamment en spectroscopie moléculaire.

1.1.2.2 Antenne photo-conductrice

Une antenne photo-conductrice est composée d'un matériau semi-conducteur sur lequel sont apposées des électrodes [23], entre lesquelles une tension continue est appliquée. Un faisceau laser femtoseconde est focalisé entre les deux électrodes, générant un plasma dont le rayonnement dipolaire en champ lointain a une composante THz, comme le montre la figure 1.3. Le champ THz est ensuite mesuré au moyen d'une deuxième antenne similaire à la première. Le champ THz généré est de l'ordre de 0.1 GV/m pour une largeur de bande pouvant atteindre 10 THz.

1.1.2.3 Laser à cascade quantique

Contrairement au laser à semi-conducteur classique dont le matériau de base possède une bande de valence et une bande de conduction, le laser à cascade quantique est composé de semi-conducteurs possédant une structure à confinement quantique. Ce confinement se fait dans une structure de sous-bandes d'énergies. Les électrons sont alors confinés dans les différentes sous-bandes, et émettent des photons d'énergie égale à la différence des

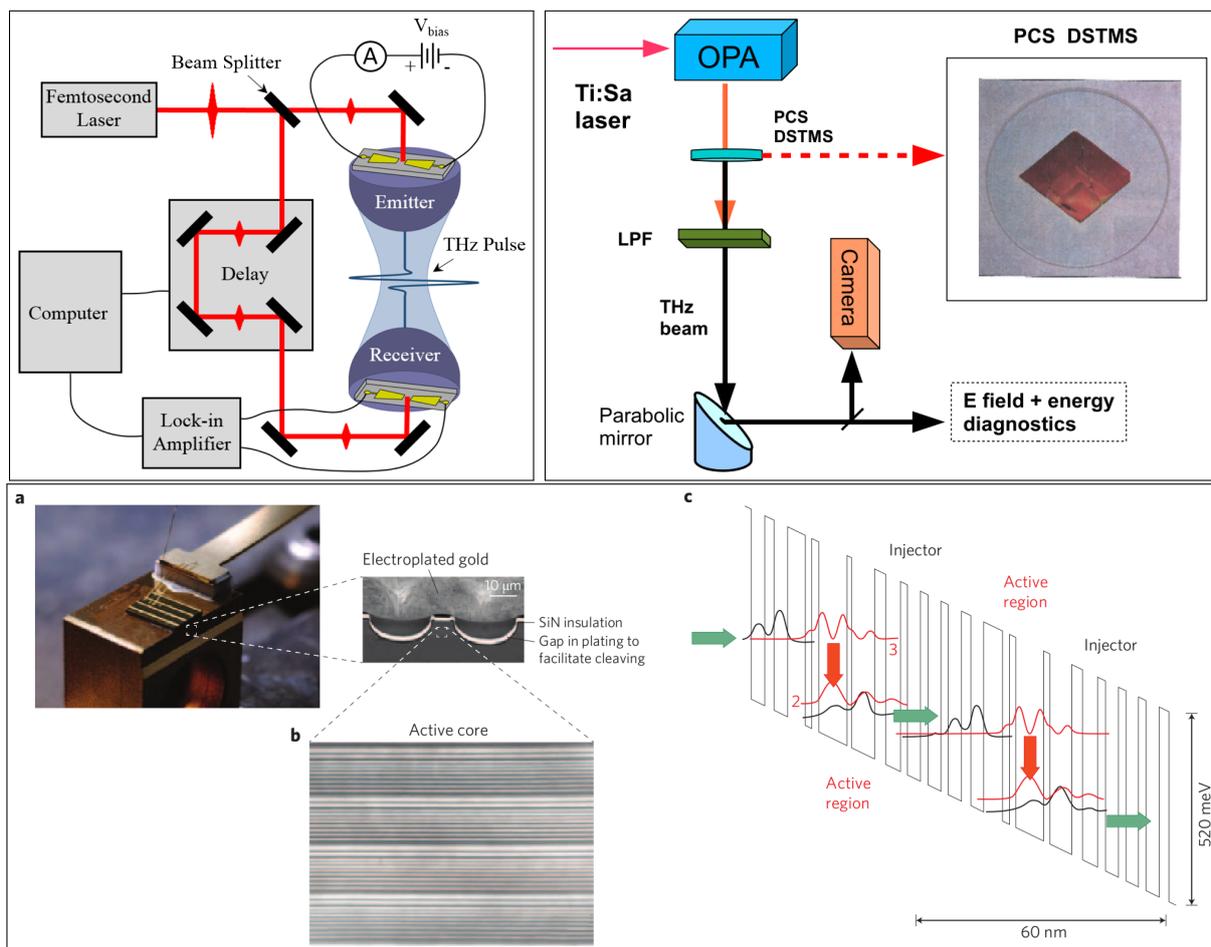


FIGURE 1.3 – Haut, gauche : Schéma de l'émission et de réception de rayonnement THz par antennes photo-conductrices. Source : Burford [23]. Haut, droite : Schéma de génération de rayonnement THz par rectification optique dans un cristal organique (photographie en insert). Source : Vicario [100]. Photographies (pour des résolutions de plus en plus élevées) et schéma des différentes couche d'un semi-conducteur entrant dans la composition d'un laser à cascade quantique. Source : Yao [111].

sous-bandes en se relaxant. Le nom de “cascade” vient du fait que lorsqu’un électron a été confiné dans une sous-bande, il peut, par effet tunnel, passer à la sous-bande suivante, se relaxer, et émettre un nouveau photon. La puissance de tels lasers émettant dans le domaine THz est de nos jours de l’ordre du mW [108].

1.1.2.4 Rectification optique dans les cristaux nonlinéaires

La rectification optique est un processus nonlinéaire reposant sur la susceptibilité d’ordre 2 des cristaux nonlinéaires, qui sont dépourvus de symétrie d’inversion. La structure anisotrope du cristal induit des nonlinéarités quadratiques relevantes. Une impulsion laser de durée femtoseconde, opérant généralement à 800 nm, est focalisée dans le cristal nonlinéaire. En respectant les conditions d’accord de phase du cristal (orientation du cristal par rapport à l’axe de propagation et à la polarisation du laser), une composante basse fréquence issue du terme $\chi^{(2)}E^2$ est créée, où $\chi^{(2)}$ est la susceptibilité électrique d’ordre 2 du cristal et E le champ laser incident. Des exemples de cristaux nonlinéaires possédant de telles propriétés sont les cristaux de tellure de zinc (ZnTe), les cristaux organiques comme le DSTMS³, le DAST⁴ ou le OH1⁵, les cristaux de niobate de lithium (LiNbO₃), etc.

Les spectres THz produits par rectification optique dans de tels cristaux sont étroits (largeur de bande de 1 à 2 THz) avec des énergies s’approchant du mJ [100], et des efficacités de conversion de plusieurs pourcents pour les cristaux organiques [101]. De tels taux de conversion sont un record à ce jour. Cependant, les intensités laser entrantes dans le cristal sont limitées par le seuil de dommages du cristal. La fréquence centrale du spectre THz peut aussi être modulée en combinant judicieusement des impulsions laser chirpées [101].

1.1.2.5 Interaction laser-plasma

Au lieu de focaliser le faisceau laser femtoseconde dans un cristal, le faisceau est ici focalisé dans un gaz. Ce gaz peut être un gaz noble ou simplement de l’air. Les gaz étant des milieux isotropes, la rectification optique à base de nonlinéarités quadratiques actives comme dans les cristaux asymétriques n’est pas possible, les susceptibilités électriques d’ordre pair s’annulant.

La méthode de production de rayonnement THz par interaction laser-plasma – qui sera étudiée tout au long de cette thèse – permet d’obtenir les spectres THz les plus larges pouvant s’étendre de 0.1 à plus de 100 THz. Les champs THz générés peuvent

3. 4-N,N-diméthylamino-4’-N’-méthyl-stilbazolium 2,4,6-triméthylbenzenesulfonate

4. 4-N,N-diméthylamino-4’-N’-méthyl-stilbazolium tosylate

5. 2-(3-(4-Hydroxystyryl)-5,5-diméthylcyclohex-2-enylidène)malononitrile

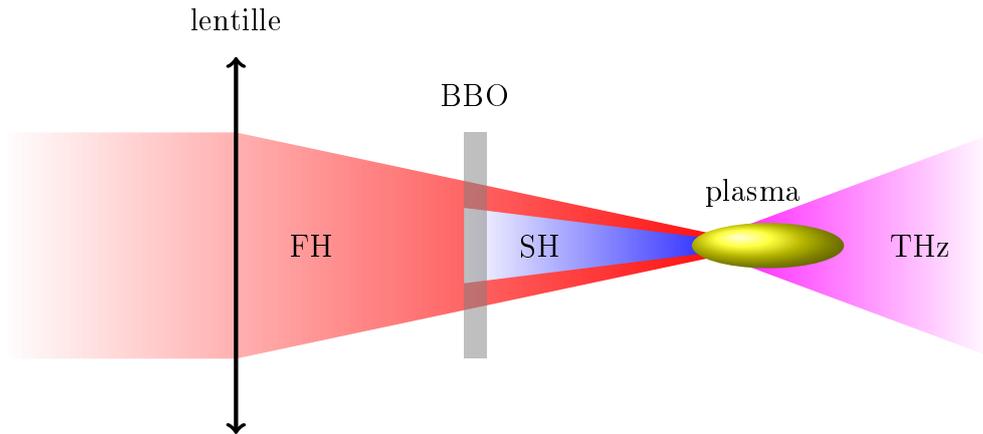


FIGURE 1.4 – Schéma de production de rayonnement THz par interaction laser-plasma à deux couleurs. Le faisceau laser femtoseconde est focalisé par une lentille, puis le second harmonique est créé par un cristal doubleur de fréquence (ici un β -BBO). Le plasma agit comme un convertisseur non linéaire des deux couleurs et émet un champ basse fréquence opérant dans le domaine THz.

atteindre plusieurs GV/m sans craindre un seuil de dommages comme c'est le cas dans les émetteurs à base de matériaux solides. Ils permettent aussi une génération de rayonnement THz à distance par le processus de filamentation survenant grâce à l'équilibre local des nonlinéarités du milieu.

Le principe de fonctionnement, illustré sur la figure 1.4, est le suivant. Le champ produit par une source laser opérant dans l'infrarouge, de durée 30-100 fs et de quelques mJ d'énergie, est focalisé par une lentille convergente de quelques dizaines de centimètres de distance focale. Une lentille de focale plus grande, voire l'absence de lentille, permet d'obtenir des filaments de lumière plus longs si l'énergie (ou la puissance) laser engagée est suffisante. Un cristal doubleur de fréquence (e.g., β -BBO⁶ de type I⁷) est placé entre la lentille et son plan focal afin de générer un second harmonique. La présence de cette deuxième couleur permet de rendre le champ laser asymétrique en temps. À proximité du plan focal, le champ est suffisamment intense pour ioniser l'air et créer un plasma. Le plasma agit alors comme un convertisseur de fréquences vers le domaine THz.

L'ajout d'une seconde couleur au fondamental permet de considérablement augmenter le rendement THz (défini par le rapport entre l'énergie THz sortante et l'énergie laser entrante) de deux ou trois ordres de grandeur par rapport à un faisceau laser à une couleur. Cette croissance est expliquée par l'accentuation de l'asymétrie en temps du champ laser, qui crée une composante de dérive dans les oscillations des électrons, générant ainsi un

6. bêta-borate de baryum, de formule BaB_2O_4

7. Deux photons ayant une polarisation suivant l'axe ordinaire du cristal forment un photon de fréquence double suivant l'axe extraordinaire. Pour le type II, deux photons de polarisation ordinaire et extraordinaire créent un photon de fréquence double suivant l'axe ordinaire.

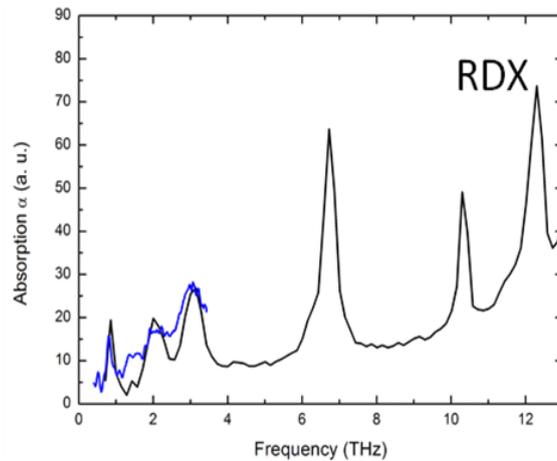


FIGURE 1.5 – Spectres d’absorption d’un explosif, le RDX, obtenus via une antenne photo-conductrice (courbe bleue) ou une source plasma-laser (courbe noire). Source : DTU/ISL.

courant basse-fréquence dans le domaine THz.

La figure 1.5 compare les spectres d’absorption d’un composé explosif cristallin solide, le RDX, obtenus par une antenne photo-conductrice et une source plasma-laser. Les raies d’absorption sont moins bien définies sur le spectre résultant de l’antenne photo-conductrice, et le spectre est de plus limité à 4 THz. Une source plasma-laser opérée à partir d’impulsions laser femtosecondes permet, au contraire, d’obtenir de nombreuses raies d’absorption bien résolues sur un intervalle spectral étendu.

1.1.3 Utilisations potentielles des ondes THz

Les applications potentielles des ondes THz sont nombreuses car chaque macro-molécule est attendue posséder un spectre caractéristique unique dans ce domaine fréquentiel. Elles vont donc du domaine médical à la spectroscopie moléculaire, en passant par la sécurité. D’autre part, le rayonnement THz étant non-ionisant, les applications restent a priori sans danger pour les personnes. Des normes de sécurité existent, les normes IEEE RF [4] pour le domaine des ondes radios et ANSI Laser [7] pour les ondes optiques, qui ont toutes deux des limites dans le domaine THz, même si ces deux limites résultent d’une extrapolation. Les effets attendus sur les tissus biologiques sont de nature thermique, car les ondes THz ne se propagent que sur quelques millimètres dans les tissus, affectant essentiellement le derme et l’épiderme [84, 113]. Ils sont donc prévisibles par des modèles thermiques conventionnels. Quoique les rayonnements habituellement utilisés ne dépassent pas les quelques dizaines de Kelvin, des études sont cependant menées afin de valider ces limites de sécurité.

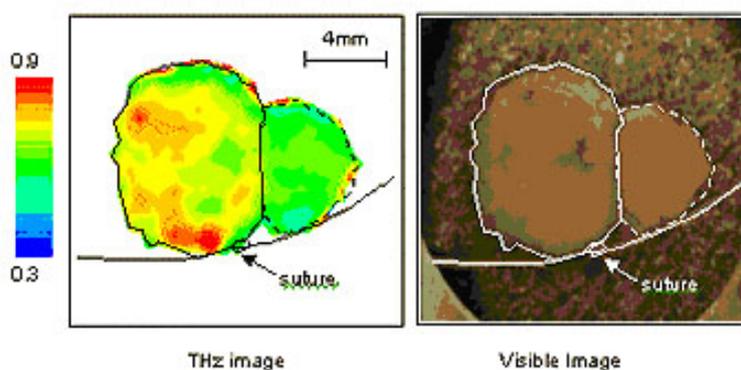


FIGURE 1.6 – Détection du cancer de la peau. (Gauche) Image THz. (Droite) Image réelle. Source : www.teraview.com.

1.1.3.1 Imagerie médicale

Une première application des ondes THz est l'imagerie médicale, appliquée aux formes biologiques contenant de l'eau. Par exemple, la figure 1.6 montre une image THz permettant de détecter précisément l'emplacement de cellules cancéreuses (en rouge sur l'image THz à gauche) pour un cancer de la peau [109], distinction impossible à faire sur l'image visible (image de droite). En effet, les cellules cancéreuses sont anormalement riches en eau et sont donc plus opaques au rayonnement THz.

L'utilisation des ondes THz en imagerie médicale, et plus généralement en biologie, peut s'appliquer dans de nombreuses thématiques, de par la présence d'eau. Des études portent notamment sur l'hydratation des protéines ou encore l'hybridation de l'ADN [96].

1.1.3.2 Spectroscopie moléculaire

La spectroscopie moléculaire, abordée dans la section suivante, pourrait s'appliquer dans les domaines de la biologie et de la chimie, mais aussi pour la détection à distance de matériaux dangereux ou illicites.

Par exemple, la figure 1.7 montre une image THz de trois substances différentes (codéine, cocaïne et sucre) contenues dans des enveloppes [98]. La spectroscopie THz permet clairement de distinguer les trois substances, sans nécessité d'ouvrir les enveloppes. En effet, étant données l'épaisseur et la composition de ces dernières, les ondes THz peuvent facilement les traverser. Des champs THz permettent donc de distinguer des substances illicites de structures connues, même dissimulées, ce qui ne peut être fait par d'autres techniques, par exemple avec une spectroscopie infrarouge.

D'autres exemples réalisés à l'Université Technique du Danemark (DTU) au cours du projet ALTESSE sont montrés sur la figure 1.8. Les spectres THz associés aux différents matériaux couvrant certains échantillons dont on souhaite avoir la signature spectrale

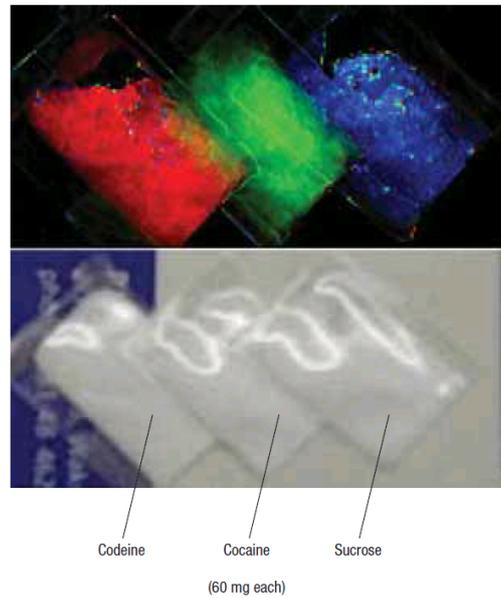


FIGURE 1.7 – (Haut) Résultats d'imagerie THz de trois substances différentes (codéine, cocaïne et sucrose) contenues dans des enveloppes opaques fermées. (Bas) Image réelle des trois enveloppes contenant les substances. Source : Tonouchi [98].

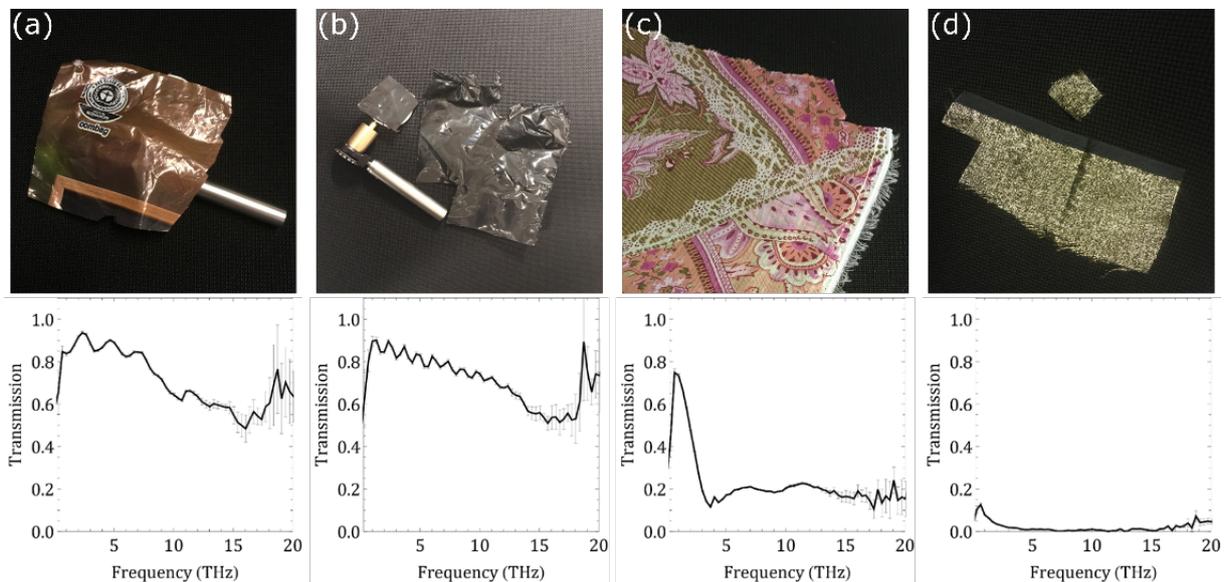


FIGURE 1.8 – Résultats de spectroscopie THz obtenus à DTU. Photographies (haut) et spectres de transmission (bas) de divers matériaux couvrants : (a,b) feuilles de plastique, (c) coton d'épaisseur 1 mm, (d) fibres métalliques. Ces dernières éteignent totalement le signal THz mesurable.

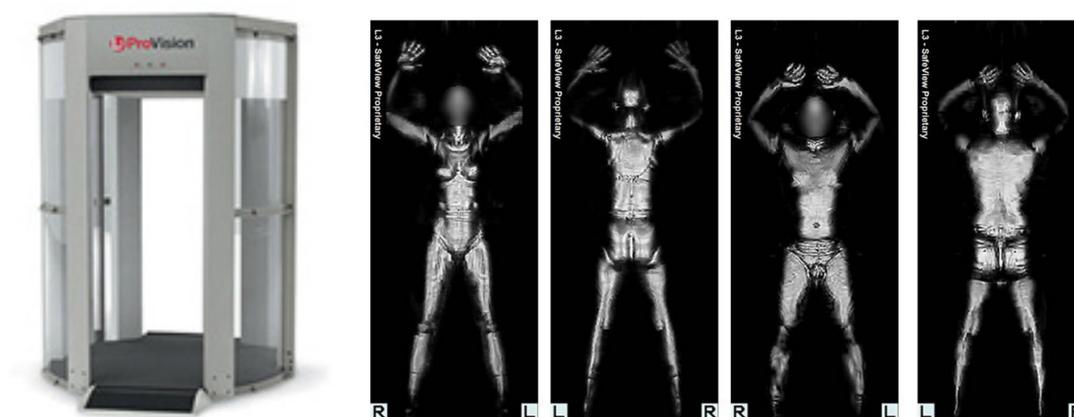


FIGURE 1.9 – (Gauche) Photographie d'un scanner à ondes millimétriques utilisé dans certains aéroports. (Droite) Images issus d'un tel scanner. Source : Wikipédia [3].

sont montrés. Mis à part le métal, ces expériences confirment que les ondes THz peuvent traverser des matériaux utilisés pour les emballages tels que le tissu ou le plastique.

1.1.3.3 Sécurité

Outre la spectroscopie, les ondes THz trouvent une utilité dans la sécurité. Des dispositifs utilisant les ondes millimétriques (< 1 THz) ont été installés dans certains aéroports, et permettent notamment de détecter des objets cachés sur les personnes sans procéder à une palpation (voir figure 1.9). Les ondes appartenant à cette gamme de fréquences peuvent traverser les vêtements et sont opaques aux métaux. Les armes et autres objets métalliques peuvent donc être facilement repérés. Ce principe est exploité depuis 2010 dans des aéroports internationaux européens (Paris, Amsterdam), américains ou russes.

1.1.3.4 Autres utilisations

Les ondes THz trouvent d'autres domaines d'application, outre ceux cités précédemment. Selon l'amplitude de leur champ électrique et leur durée (monocycle ou multicycle), elles peuvent être utilisées dans les accélérateurs linéaires de particules [114, 66], afin d'accélérer des électrons si les champs produits sont suffisamment forts. Elles peuvent aussi être utilisées pour détecter certains défauts de structure dans les matériaux [47], notamment les plastiques [27]. Elles ont l'avantage de pouvoir sonder à distance sans provoquer de dommage. Cette propriété non-destructive rend aussi les ondes THz très intéressantes pour l'archéologie, par exemple pour analyser une œuvre ancienne sans l'endommager [73, 103]. Enfin, les ondes THz pourraient être utilisées en tant que hautes fréquences radios, et donc augmenter le spectre utilisable pour la communication. Elles ont montré une utilité potentielle dans la transmission ultra-rapide de données avec des taux de plusieurs

Gigabits/s [43].

1.2 Spectroscopie THz : le projet ALTESSE

1.2.1 Description et objectifs du projet

Le projet ALTESSE (acronyme de “Air-Laser based TERAhertz SpectroScopy of Explosives”) auquel la majeure partie des travaux numériques de cette thèse est dédiée, est un projet financé par l’Agence Nationale de la Recherche dans son programme d’Accompagnement Spécifique des Travaux de Recherches et d’Innovation Défense (ANR-ASTRID). Ce projet regroupe trois partenaires principaux : le CEA-DIF⁸, le CELIA⁹ et l’ISL¹⁰, en collaboration avec DTU¹¹. Il s’est déroulé conjointement à cette thèse, de novembre 2015 à novembre 2018. Son objectif principal est de tester la spectroscopie THz à partir d’une source formée par plasma-laser femtoseconde, afin de mesurer des signatures spectrales d’explosifs et de produits simulant (similis) à des distances voisines de 10 mètres, de compléter les spectres THz dans une bande spectrale large approchant l’infrarouge moyen, et d’évaluer le potentiel technologique du rayonnement THz généré par des lasers ultra-brefs. Les tâches scientifiques initialement prévues consistaient à :

- Optimiser l’émission THz par laser femtoseconde dans une fenêtre spectrale proche de 50 THz en utilisant des impulsions optiques bicolores en propagation focalisée ou en filamentation ;

- Effectuer la spectroscopie THz à 800 nm d’une vingtaine de similis par la technologie ABCD (acronyme de “Air-Biased Coherent Detection”) [32], certains matériaux pouvant être masqués (voir figure 1.8) ;

- Valider l’amplification du signal THz détecté aux longueurs d’onde laser 1.5-2 μm , qui sont considérées comme “sécures” ; examiner sa versatilité en jouant sur les caractéristiques laser et comparer les mesures avec leur équivalent à 800 nm,

- Procéder à la spectroscopie THz/ABCD sur des explosifs, en réflexion, en transmission, en géométrie focalisée et en régime de filamentation ;

- Modéliser le rayonnement THz émis aux grandes longueurs d’onde laser, dont le proche infrarouge et l’augmentation d’efficacité de conversion attendue ; simuler la propagation d’impulsions laser intenses dans l’air en support aux expériences.

Les paragraphes suivants décrivent les résultats obtenus au cours de ce projet pendant

8. Commissariat à l’Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives, Direction Île-de-France, Arpajon, France

9. Centre Lasers Intenses et Applications, Talence, France

10. Institut Franco-Allemand de Recherches de Saint-Louis, Saint-Louis, France

11. Danish Technical University, Lyngby, Danemark

les différentes campagnes expérimentales qui se sont déroulées pendant les trois années passées. Les travaux de spectroscopie THz sur de courtes distances ont été effectués à DTU dans le cadre d'une collaboration avec l'ISL, tandis que la spectroscopie THz sur des grandes distances ~ 10 m a été réalisée à l'ISL à l'aide du laser TRIDENT loué par le CEA à la société Amplitude Technologies spécialement pour le projet. Enfin, le CELIA a pris en charge les expériences de génération d'impulsions THz à grande longueur d'onde laser, présentées à la fin du chapitre 4 de ce mémoire.

1.2.2 Spectroscopie d'explosifs et de similis sur de courtes distances

La spectroscopie THz réalisée à DTU dans le cadre du projet ALTESSE a eu pour but d'obtenir des spectres d'absorption d'explosifs et de similis les plus précis possibles, c'est-à-dire à large bande et de forte amplitude en spectre et en champ émis. Pour cela, les impulsions laser à deux couleurs sont focalisées pour obtenir des intensités maximales de plusieurs centaines de TW/cm^2 et des densités électroniques dans le plasma de l'ordre de 10^{18} cm^{-3} . Les champs THz détectés et mesurés ont ainsi pu excéder 0.01 GV/m [104].

La figure 1.10 détaille le montage expérimental, composé d'une partie "génération" et d'une partie "détection". La fréquence fondamentale à 800 nm est produite par une source Spitfire Pro (Spectra-Physics) qui délivre des impulsions d'une énergie moyenne de 0.8 mJ et d'une durée de 35 fs à mi-hauteur, à un taux de répétition de 1 kHz . Le faisceau produit par ce laser est séparé en un faisceau pompe (bas) et un faisceau sonde (haut). Le faisceau pompe à 800 nm est polarisé verticalement et linéairement (dans le plan transverse à la direction de propagation laser) par une lame demi-onde (HWP pour "half-wave plate"), puis focalisé avec une lentille plano-convexe convergente de focale 30 cm . Après la lentille, le faisceau pompe passe par un cristal β -BBO de type I de $100 \mu\text{m}$ d'épaisseur pour produire le deuxième harmonique à 400 nm . Une lame demi-onde à double longueur d'onde (DWHWP pour "dual-wavelength half-wave plate") permet de tourner la polarisation du fondamental de 90° et ainsi d'assurer une polarisation du deuxième harmonique parallèle au fondamental [104]. Les deux couleurs sont focalisées dans l'air, ce qui induit un plasma d'environ 20 mm de longueur et génère une impulsion THz par conversion de fréquence. La position du cristal doubleur modifie le taux de conversion vers l'harmonique deux ainsi que la phase entre les deux couleurs. Le champ THz est ainsi optimisé par le déplacement du cristal doubleur sur l'axe optique, tout en veillant à rester suffisamment loin du seuil de dommages du cristal, c'est-à-dire à quelques centimètres du point focal.

Le rayonnement THz ainsi produit est filtré puis réfléchi par quatre miroirs sphériques. Les matériaux à analyser sont placés sous forme de pastille au foyer du deuxième miroir.

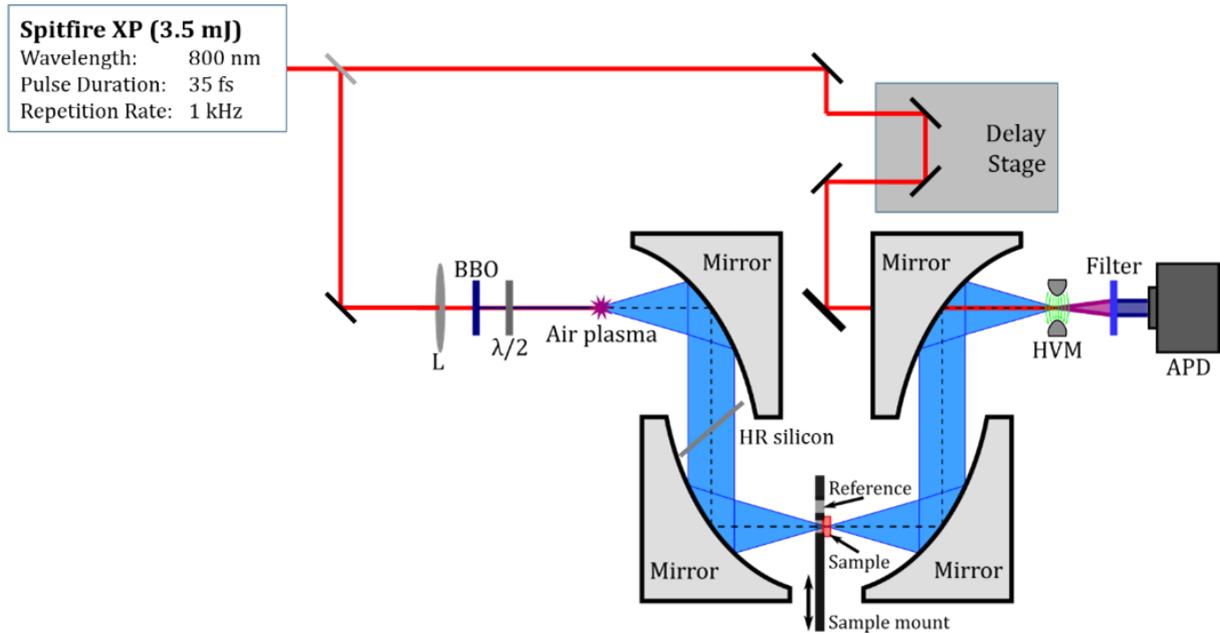


FIGURE 1.10 – Dispositif expérimental utilisé à DTU. Le faisceau pompe traverse une lentille (L) de distance focale 30 cm, un cristal BBO, et une lame demi-onde ($\lambda/2$). Le plasma créé au point focal émet un rayonnement THz qui est réfléchi par quatre miroirs paraboliques. Un filtre est placé entre les deux premiers miroirs pour éliminer les composantes optiques. L'échantillon est placé entre les deuxième et troisième miroirs. Le faisceau THz transmis est couplé au faisceau sonde retardé et à un champ statique à haut voltage (HVM). La composante à 400 nm résultant du couplage de ces trois ondes dans l'air est filtrée puis détectée par une photodiode à avalanche (APD).

Les échantillons analysés sont formés à partir de 10 mg de poudre du matériau explosif ou du produit simulant (simili), mélangée à 90 mg de poudre de polyéthylène à haute pureté. Ce mélange est ensuite comprimé en une pastille d'une épaisseur d'environ 1 mm et de diamètre d'environ 1 cm. La pastille est enfin montée sur un porte-échantillon placé au foyer du faisceau THz. La référence est le signal THz propagé dans l'air uniquement.

Le champ THz transmis par l'échantillon ou la référence est ensuite mesuré par la méthode ABCD, à l'aide du faisceau sonde qui a au préalable traversé une ligne à retard permettant de retarder temporellement les impulsions.

1.2.2.1 Méthode ABCD

La technique de détection ABCD ("Air-Biased Coherent Detection") [32, 46] repose sur la propagation dans l'air de trois ondes à différentes fréquences : le champ THz à détecter $E_{\text{THz}}(t)$, le champ sonde à 800 nm $E_{\omega}(t + \tau)$, où τ est le retard variable introduit dans la ligne à retard, et un champ statique à haut voltage $E_{\text{bias}} \simeq 10 \text{ kV/cm}$. Le mélange de ces trois ondes dans l'air crée une composante à 400 nm par mélange de fréquences dû

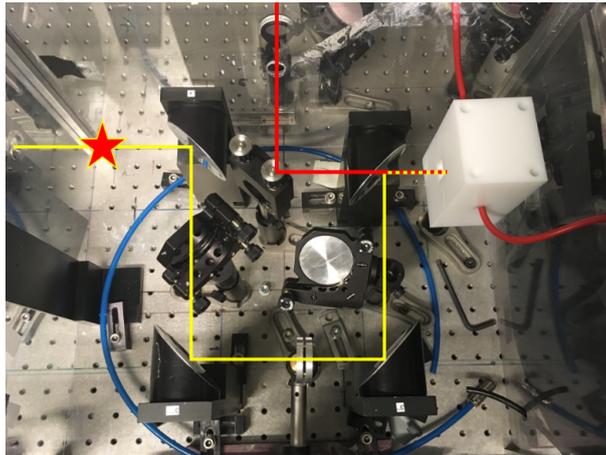


FIGURE 1.11 – Photographie du dispositif ABCD, contenant les quatre miroirs paraboliques, le filtre en silicone, le porte-échantillon et un miroir plan pour orienter le faisceau de la ligne à retard. Le champ à haut voltage est produit entre deux plaques métalliques contenues dans le cube d’isolant blanc. Les filtres et détecteur sont placés à l’arrière du cube. Le plasma est représenté par une étoile rouge, le faisceau THz est représenté en jaune et le faisceau sonde en rouge.

à l’effet Kerr en $\chi^{(3)}E(t)^3$ où $\chi^{(3)}$ est la susceptibilité électrique d’ordre 3 de l’air pour le champ électrique total $E(t) = E_{\text{THz}}(t) + E_{\omega}(t + \tau) \pm E_{\text{bias}}$. L’intensité moyenne de la composante à 400 nm ainsi produite s’écrit donc :

$$I_{2\omega}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} [\chi^{(3)}I_{\omega}(t)]^2 [E_{\text{THz}}^2(t - \tau) \pm E_{\text{bias}}E_{\text{THz}}(t - \tau) + E_{\text{bias}}^2] dt \quad (1.1)$$

où $I_{\omega} = c\epsilon_0 E_{\omega}^2/2$ est l’intensité pic du champ sonde.

En variant le retard τ dans le champ sonde par déplacement des deux miroirs de la ligne à retard, on peut ainsi reconstruire le profil temporel du champ THz (voir figure 1.12, gauche). Puis, en appliquant une transformation de Fourier, on obtient les spectres en transmission (voir figure 1.12, droite) de l’échantillon analysé qui, par comparaison avec le spectre de référence, révèle de nombreux pics d’absorption. Le spectre d’absorption résulte du ratio entre les spectres en transmission de l’échantillon et de la référence (voir figure 1.14). En figure 1.12, c’est le champ THz transmis par un échantillon d’explosif TATB¹² qui est montré.

L’introduction du champ statique à haut voltage est nécessaire pour avoir un signal cohérent. Le champ statique doit être élevé pour augmenter le rapport signal sur bruit de la composante proportionnelle au champ THz, i.e. $\pm I_{\omega}(t)^2 E_{\text{bias}} E_{\text{THz}}(t - \tau)$, tout en restant inférieur au champ de claquage de l’air (~ 3.6 MV/m). Il est modulé à la moitié du taux de répétition du système laser (500 Hz) entre $-E_{\text{bias}}$ et $+E_{\text{bias}}$, ce qui permet d’isoler la

12. 2,4,6-triamino-1,3,5-trinitrobenzene

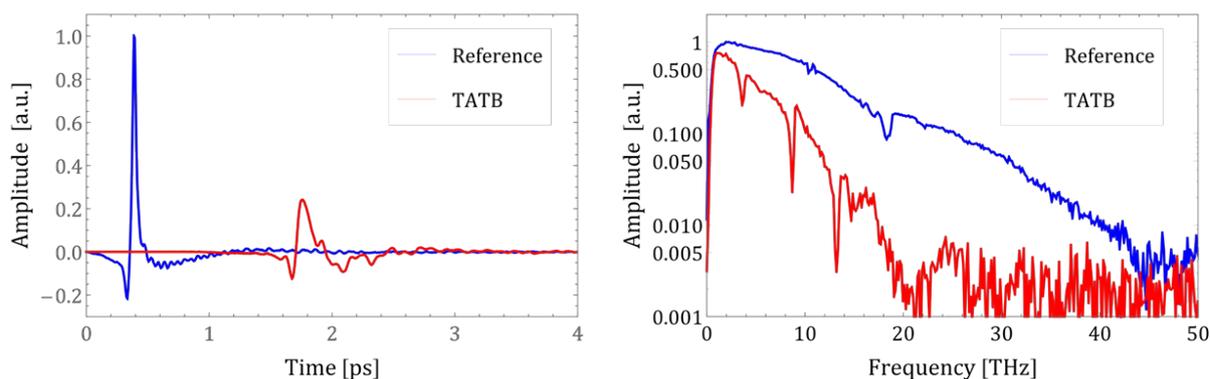


FIGURE 1.12 – (Gauche) Champs THz expérimentaux obtenus par la méthode ABCD sans échantillon (courbe bleue) ou avec un échantillon contenant un explosif (TATB) (courbe rouge). (Droite) Spectres en transmission obtenus par transformée de Fourier des champs.

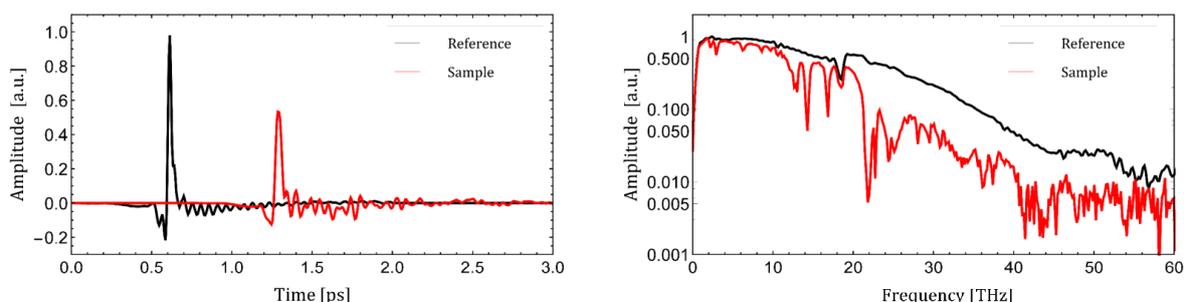


FIGURE 1.13 – Champ (gauche) et spectre (droite) THz de la thymine mesuré avec la technique ABCD à plus haute résolution temporelle, permettant d'atteindre une largeur de bande de 60 THz.

composante voulue qui sera seule présente à la fréquence de modulation. Pour bloquer la phase de modulation, un amplificateur de verrouillage (SRS Model SR830 DSP) est utilisé. Le champ issu du mélange de fréquence dans l'air est donc d'abord filtré à 400 nm, puis envoyé à un intégrateur permettant de le moyennner temporellement, et à l'amplificateur de verrouillage. Le signal résultant est enfin mesuré par une photodiode à avalanche (APD -Thorlabs APD110A2/M), qui présente une bonne linéarité avec le signal THz [104].

La technique ABCD permet habituellement d'obtenir des spectres s'étendant jusqu'à 20 THz. Au cours du projet ALTESSE, les performances de détection ont pu être augmentées pour obtenir des spectres d'une largeur de 60 THz (voir figure 1.13). Cet élargissement des spectres permet de capturer des mouvements intra-moléculaires plus rapides, permettant une meilleure caractérisation des échantillons. Ces mesures de spectroscopie THz, qui couvrent un domaine large bande de 60 THz ($\simeq 5 \mu\text{m}$ de longueur d'onde équivalente), ont pu être obtenues pour la première fois.

Les échantillons analysés avec la technique ABCD au cours du projet ALTESSE

peuvent être de nature diverse. En effet, outre les spectres d'explosifs et de similis, des spectres de bases nucléiques de l'ADN, telles que la thymine¹³ (voir figure 1.13), l'adénine, la guanine et la cytosine, ont pu être obtenus.

1.2.2.2 Comparaison avec des simulations CASTEP

Les spectres expérimentaux peuvent être utilisés pour identifier des substances inconnues en comparant le nombre, la position et l'amplitude relative des pics d'absorption à ceux de spectres connus. Cependant, ces mesures ne donnent aucune information sur l'origine physique de ces données. Pour pouvoir caractériser une molécule, il est nécessaire de classer les signatures spectrales collectées et savoir, par exemple, si elles proviennent d'un mouvement intra- ou inter-moléculaire. Les caractéristiques spectrales correspondant à des vibrations inter-moléculaires contiennent des informations sur la structure cristalline, tandis que les caractéristiques spectrales relevant de vibrations intra-moléculaires contiennent des informations sur la structure de la molécule elle-même et les groupes fonctionnels dans la molécule.

A l'aide du code open source CASTEP [1] (Cambridge Serial Total Energy Package), des calculs numériques ab-initio basés sur la théorie fonctionnelle de densité (DFT) ont été réalisés. Ces calculs portent sur les phonons, qui sont associés au quantum d'énergie de vibration dans un solide cristallin. CASTEP effectue un calcul à une température de 0°K (et non ambiante) des modes de phonon d'un cristal moléculaire aux niveaux d'énergie (< 1.2 keV) correspondants à la fréquence des phonons, leur intensité, ainsi que les vecteurs propres du mouvement de chaque atome dans la cellule unitaire simulée et les forces (par exemple dipolaires) qui se produisent. Les modes de phonons calculés sont comparés aux spectres d'absorption mesurés et permettent de visualiser les mouvements du cristal moléculaire.

Les simulations DFT sont extrêmement coûteuses en temps de calcul et leur coût varie en puissance cubique du nombre d'atomes dans la cellule simulée. Un bon accord avec les données expérimentales est obtenu avec environ 60 atomes par cellule unité, pour mener un calcul dans un temps raisonnable.

La figure 1.14 montre un exemple de spectre de TATB obtenu par la méthode ABCD ainsi que les raies de simulations CASTEP associées. La position et l'amplitude relative des raies obtenues par simulation DFT sont en bon accord avec les spectres expérimentaux et permettent de valider l'existence des pics d'absorption.

D'autre part, ces raies peuvent être associées à des mouvements spécifiques ayant lieu dans la molécule. Pour cela, on observe le déplacement atomique des trois modes de

13. 5-methylpyrimidine-2,4(1H,3H)-dione

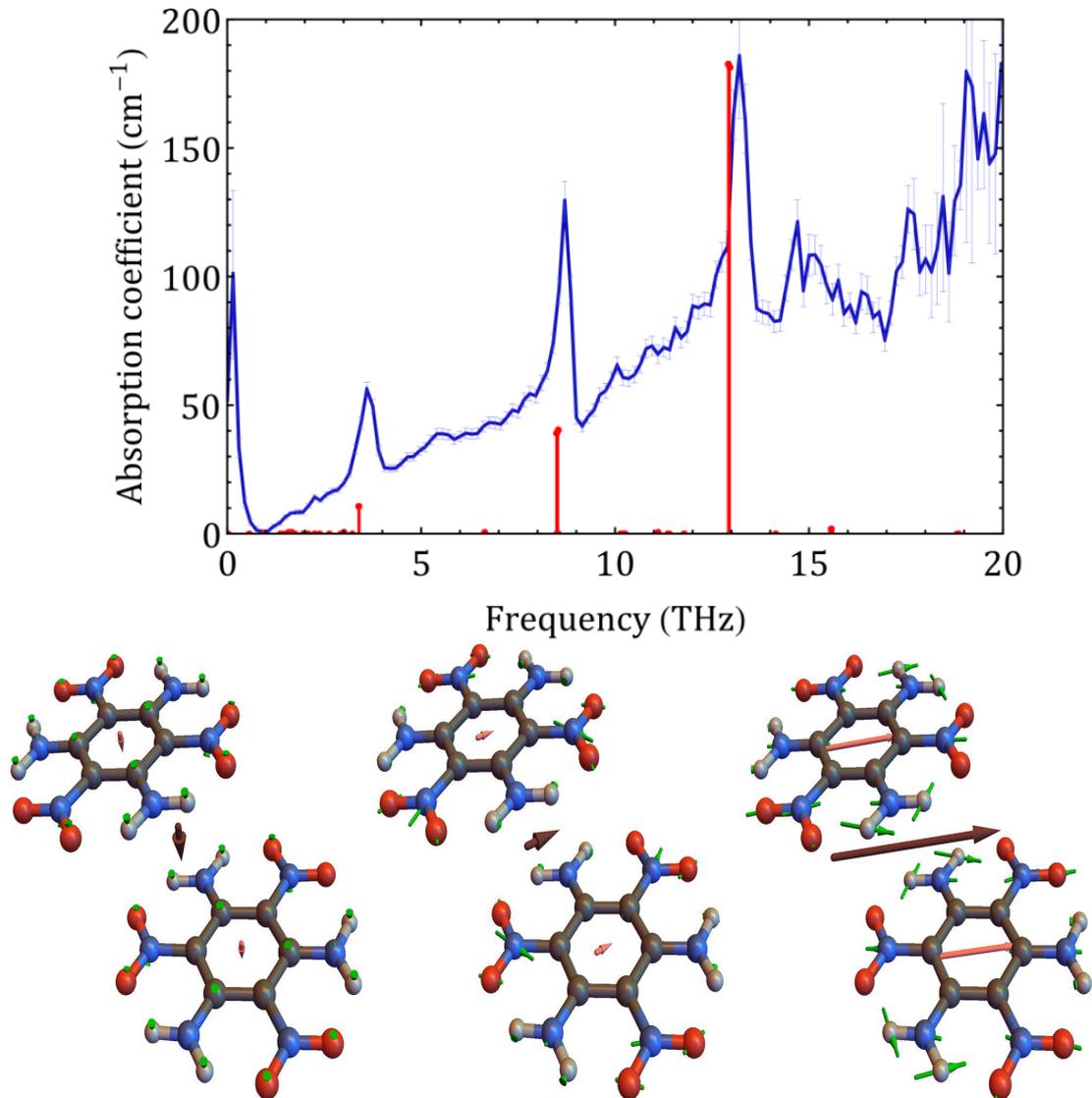


FIGURE 1.14 – Spectre d'absorption du TATB, issu du rapport des spectres en transmissions de l'échantillon et de la référence comme présentés sur la figure 1.12. Les calculs de modes de phonons réalisés à l'aide du code CASTEP (60 atomes/cellule) sont indiqués par les raies rouges. Les mouvements inter- et intra-moléculaires résultants symbolisés par des flèches (vertes pour les vecteurs propres atomiques, orange et marron pour les vecteurs propres des molécules) sont présentés sous les raies principales à 3.3, 8.49 et 12.94 THz.

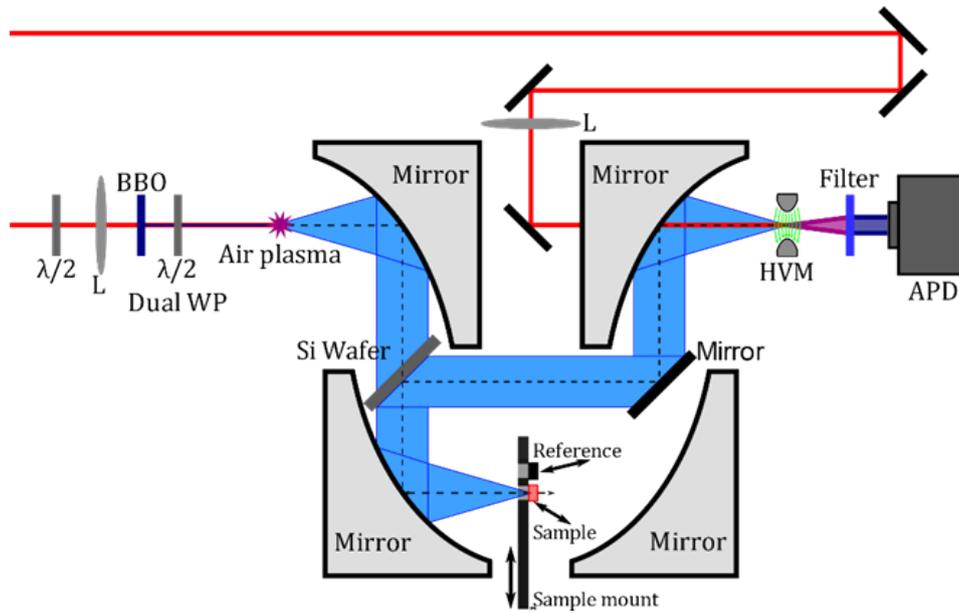


FIGURE 1.15 – Montage expérimental pour une spectroscopie ABCD en réflexion. Le champ THz utilisé dans la méthode ABCD est celui réfléchi par l'échantillon via un miroir supplémentaire placé le long du chemin optique du rayonnement émis.

phonons les plus forts du TATB à 3.3 THz, 8.49 THz et 12.94 THz sur la figure 1.14. Les flèches représentent les vecteurs propres du mouvement des atomes (flèches vertes) ou des molécules (flèches orange et marron). A 3.3 THz, c'est-à-dire aux basses fréquences, les molécules constituant la cellule unitaire sont tournées l'une par rapport à l'autre, ce qui correspond à un mouvement inter-moléculaire de l'ensemble du cristal. Aux fréquences plus élevées, les molécules elles-mêmes commencent à se déformer et leurs groupements moléculaires développent des dipôles locaux, induisant une vibration intra-moléculaire.

1.2.2.3 Comparaison des détections en transmission et en réflexion

La figure 1.15 montre le dispositif expérimental pour la spectroscopie THz en réflexion. La partie "génération" du faisceau THz reste identique au système en transmission. La collecte du rayonnement THz émis par la cible en réflexion s'effectue par l'ajout d'un miroir placé parallèlement au filtre en silicone entre les miroirs paraboliques du dispositif en transmission. La méthode d'acquisition des champs puis des spectres THz reste inchangée.

La figure 1.16 compare, pour la première fois à notre connaissance, les spectres obtenus en transmission et en réflexion pour la thymine. Les spectres en réflexion reproduisent les pics principaux sur 20 THz de largeur spectrale, obtenus antérieurement en géométrie de transmission. Le spectre en réflexion est normalisé par rapport à un champ de référence (signal issu d'un miroir d'or). Les échantillons utilisés dans les deux dispositifs sont différents (matériau pur sans polyéthylène dans le montage en réflexion) et il n'y a aucune

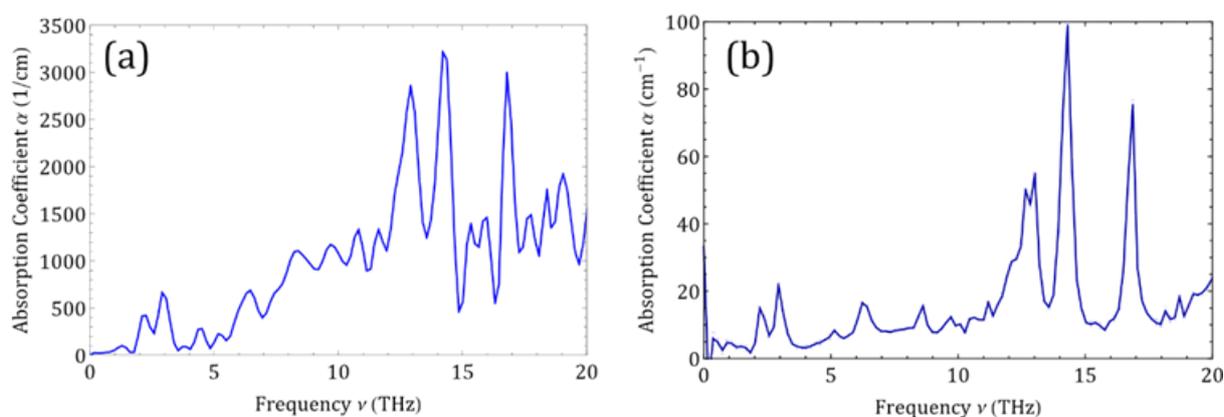


FIGURE 1.16 – Spectres de la thymine obtenus (a) en réflexion et (b) en transmission mesurés à DTU dans le cadre du projet ALTESSE.

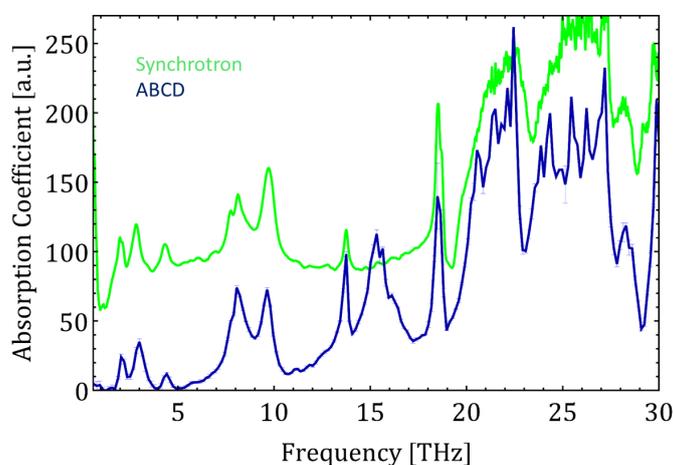


FIGURE 1.17 – Spectres du PETN obtenus par méthode ABCD en transmission à DTU (courbe bleue) et avec le synchrotron de Melbourne en Australie (courbe verte).

normalisation par rapport à une densité de référence, ce qui explique les écarts importants dans les valeurs du coefficient d'absorption. Néanmoins, les principales signatures spectrales sont reconnaissables (les deux pics entre 0 et 5 THz, et les 3 pics entre 10 et 20 THz, par exemple) et le signal apparaît plus fort lors des mesures en réflexion dû à l'absence de capsule en polyéthylène renfermant la poudre des matériaux. D'autres spectres de similis (phénylalanine, lactose, sucrose) obtenus dans les deux géométries de détection ont été comparés, et donnent des résultats similaires.

Par ailleurs, des mesures de spectres d'explosifs (ANTA, DAT, nitro-urea, PETN) ont été réalisées sur le synchrotron de Melbourne en Australie. Ce type d'installation permet d'accélérer des électrons, qui rayonnent, selon leur énergie, dans une gamme continue allant du micro-onde aux rayons X. Un rayonnement THz peut donc être produit. Les spectres obtenus par rayonnement synchrotron sont en bon accord avec ceux obtenus par la méthode ABCD (voir figure 1.17). Le système ABCD reste toutefois portable et offre

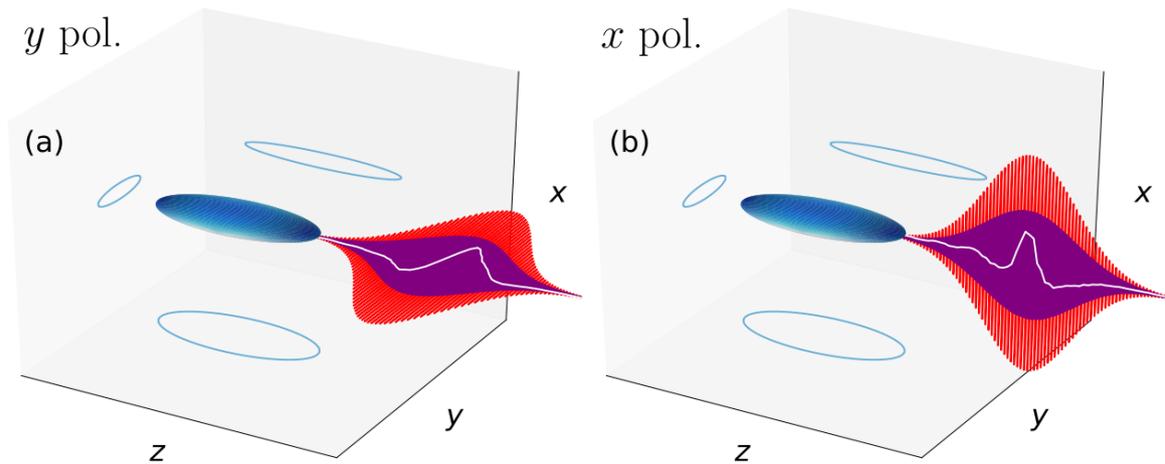


FIGURE 1.18 – Illustrations des configurations d’émission THz par un plasma elliptique (surface bleue) créé par une impulsion laser gaussienne à deux couleurs (fondamental en rouge et deuxième harmonique en violet). (a) Le champ laser est polarisé suivant y (selon le grand axe de l’ellipse). (b) Le champ laser est polarisé suivant x (selon le petit axe de l’ellipse). Les champs THz expérimentaux sont tracés en blanc.

des spectres qui apparaissent ici mieux résolus aux hautes fréquences > 20 THz.

1.2.2.4 Modulations des spectres THz : plasmas elliptiques

Afin de générer des spectres THz modulables, ce qui peut être utile pour certaines applications demandant une gamme de fréquences plus sélective, des plasmas elliptiques peuvent être exploités. Les plasmas ne sont plus à symétrie cylindrique selon l’axe de propagation, mais ils peuvent présenter un rapport d’aspect non égal à un dans le plan orthogonal à la direction de propagation laser. La polarisation du laser restant linéaire, on peut choisir de l’orienter suivant l’un ou l’autre des axes de l’ellipse formée dans le plan transverse. La figure 1.18 illustre la géométrie du plasma et les configurations de polarisations x et y correspondantes. Si la polarisation est suivant le grand axe de l’ellipse, le mode est dit polarisé suivant y . Si elle est suivant le petit axe, le mode est dit polarisé selon x .

Pour produire de tels faisceaux elliptiques, deux lentilles cylindriques plano-convexes sont utilisées. Ces lentilles sont tournées de 90° pour que la polarisation du laser dans le plan transverse soit orientée selon le petit ou le grand axe de l’ellipse. Le reste du montage est similaire à la figure 1.10. Des simulations 3D ont été réalisées (voir figure 1.19) à l’aide du code CUP3D (voir chapitre 2), afin de prédire l’intensité laser, la densité électronique ainsi que le profil transverse au foyer. On observe une rotation de 90° du profil elliptique au niveau du foyer, dû à la focalisation linéaire du faisceau gaussien [voir figures 1.19(b,c)].

Les spectres THz mesurés diffèrent selon la polarisation initiale du champ laser. En

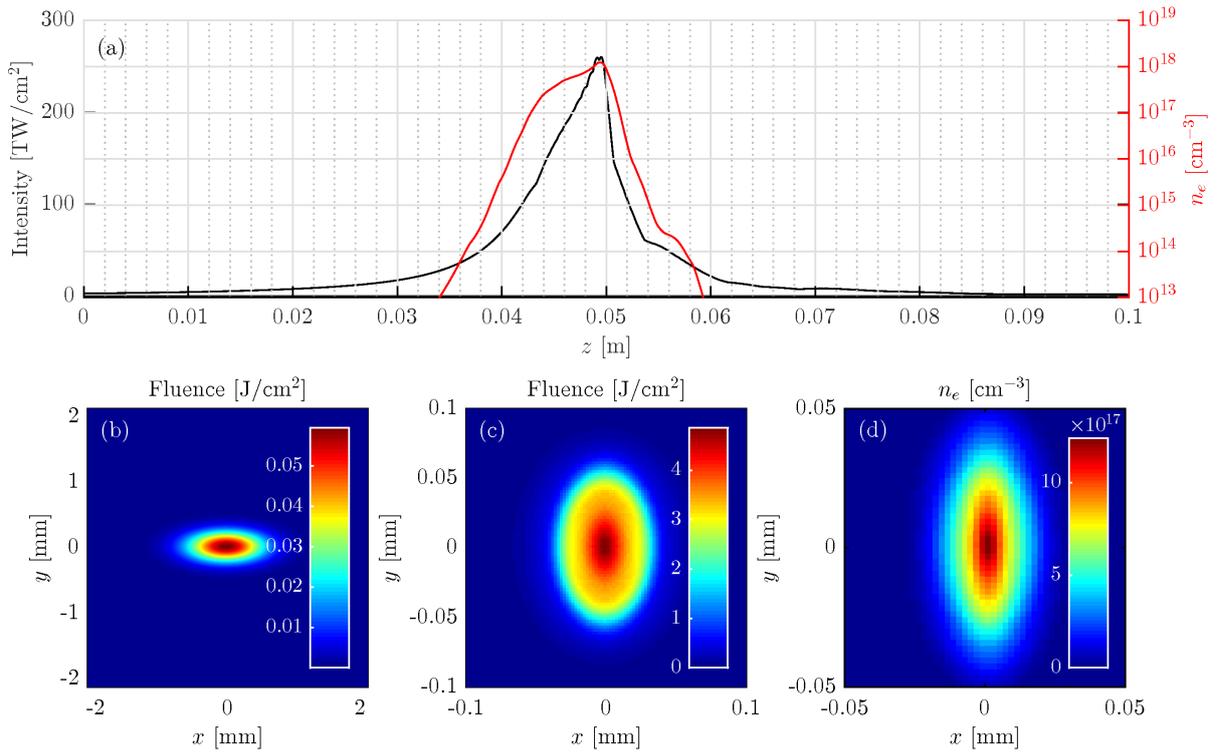


FIGURE 1.19 – Résultats de simulation avec le code CUP3D de la propagation de faisceaux elliptiques reproduisant la densité plasma produite dans la configuration expérimentale exploitée à DTU. (a) Intensité (courbe noire, axe de gauche) et densité électronique (courbe rouge, axe de droite) maximales au cours de la propagation. (b) Profil transverse initial de la fluence laser. (c) Profil transverse au foyer nonlinéaire. (d) Densité électronique au foyer nonlinéaire. Notons le changement d'échelle dans le plan transverse entre (b), (c) et (d).

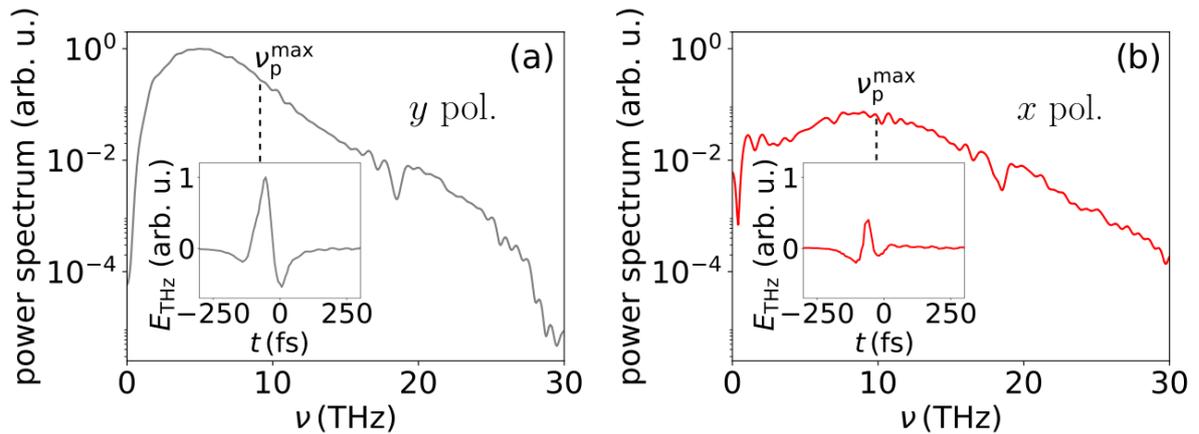


FIGURE 1.20 – Spectres THz expérimentaux obtenus à DTU par la méthode ABCD dans le cas où le champ laser est polarisé suivant (a) le grand axe de l'ellipse (selon y) ou (b) le petit axe de l'ellipse (selon x) dessinée par le profil transverse du faisceau laser. Les profils temporels des champs THz sont montrés en insert. La position de la fréquence plasma issue de la densité électronique maximale est indiquée en pointillés.

effet, la figure 1.20 montre les spectres THz dans les cas des modes polarisés suivant x ou y . Avec le mode laser polarisé selon y , le spectre est plutôt étroit et piqué à une fréquence ~ 5 THz. Dans le cas du mode polarisé selon x , le spectre est plus large mais aussi d'amplitude plus faible, et une résonance à ~ 10 THz correspondant à la fréquence plasma apparaît. Cette résonance pourrait donc être modifiée en changeant la densité électronique du plasma, rendant les spectres THz facilement modulables.

Une première explication simple est que si le champ laser est orienté suivant la direction de faibles gradients de plasma (selon y), la séparation de charges créée par déplacement des électrons par rapport aux ions est relativement faible. Le courant ainsi créé a une durée plus grande, ce qui est favorable à la production de basses fréquences dans le spectre. Dans le cas opposé, si le champ est orienté suivant les forts gradients de plasma, la force de séparation de charges est plus élevée ce qui donne des composantes opérant à plus hautes fréquences dans le spectre.

Ces spectres expérimentaux ont été confirmés par une étude théorique portant sur les micro-plasmas elliptiques [95]. À l'aide d'un modèle simple considérant le plasma comme une tranche infinie en (y, z) puis de simulations reprenant les équations de Maxwell résolues par un schéma de Yee en 2D puis 3D, on montre que le mode polarisé suivant x produit un spectre THz large piqué à la fréquence plasma, tandis que le mode polarisé suivant y génère des champs THz plus intenses et de plus basses fréquences.

Ce travail à la fois théorique et expérimental ouvre la voie vers une modulation fine des spectres THz, ce qui permettrait d'effectuer une spectroscopie sélective sur quelques THz.

1.2.3 Vers une détection à grande distance

Pour analyser des matériaux par spectroscopie THz sur des distances étendues, des lasers plus énergétiques sont nécessaires. Le laser utilisé pour le projet ALTESSE est le laser TRIDENT construit par Amplitude Technologies¹⁴. Il délivre des impulsions de 5 mJ, d'une durée à mi-hauteur de 45 fs, à un taux de répétition de 100 Hz. La longueur d'onde émise est toujours de 800 nm (amplificateur Ti:Sa). Ce laser a été livré en mars 2017 à l'ISL et loué pour une durée d'un an. Le laser TRIDENT a été installé dans une salle de tir à l'ISL, choisie pour faire des expériences sur plus de 10 mètres de propagation, adaptée à l'utilisation d'explosifs et à leur identification en atmosphère ambiante (donc bruitée et polluée). La figure 1.21 est une photographie de l'installation.

Les principales difficultés rencontrées au cours du projet ont été liées à l'environnement dans lequel a été installé le laser. En effet, d'une part, la chambre de tir n'est pas

14. http://www.amplitude-technologies.com/?fond=produit&id_produit=10&id_rubrique=1

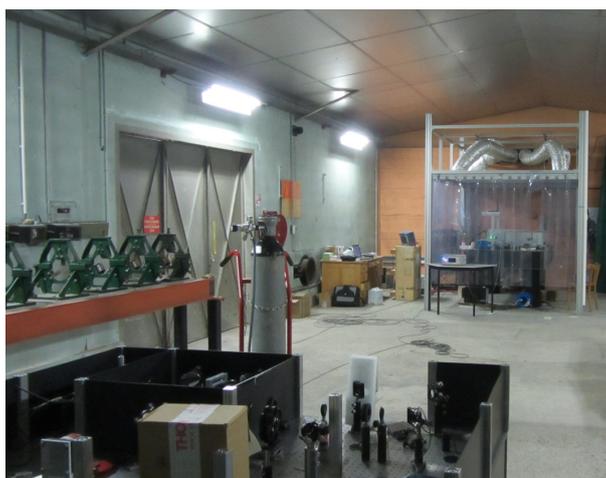


FIGURE 1.21 – Photographie de la chambre de tir à l'ISL dans laquelle a été installé le laser TRIDENT (à l'arrière plan, dans l'espace climatisé). Le système de production et de détection THz est visible au premier plan. Il est situé à une distance d'environ 15 m du laser.

conçue initialement pour recevoir un laser nécessitant un environnement contrôlé (propreté, température ambiante, stabilité du sol, ...). Cependant, un des objectifs du projet était aussi de montrer la faisabilité de la spectroscopie THz en milieu réaliste, c'est-à-dire non spécifiquement adapté à un laser femtoseconde.

D'autre part, dû aux fortes variations de températures pendant l'été ($\pm 5^\circ\text{C}$ dans la chambre de tir au cours d'une journée), la stabilité du laser a été fortement impactée, rendant la spectroscopie THz impossible à réaliser. Les variations de température étant moins importantes en hiver ($\pm 3^\circ\text{C}$), des spectres de différents explosifs n'ont pu être obtenus qu'en fin de campagne expérimentale pour une propagation laser sur plus de dix mètres.

En raison des instabilités du laser TRIDENT dans le tunnel de tir engendrant des désalignements du faisceau laser, il a été décidé dans un premier temps de ne propager sur plusieurs mètres que le fondamental. Les parties production (plasma créé par une impulsion laser à deux couleurs) et détection (méthode ABCD) THz ont été regroupées sur une même table optique éloignée du système laser. Seul le faisceau laser à 800 nm se propage sur environ 12 m et est ensuite focalisé sur 30 cm au voisinage du système de détection. La deuxième couleur est produite par l'insertion d'un cristal BBO quelques centimètres avant le point focal.

Les performances du laser TRIDENT ont été fortement impactées par la température et les vibrations dans la chambre de tir, conduisant à des ré-alignements nécessaires toutes les 30 min à 2 heures. D'autre part, le temps d'acquisition d'un spectre à DTU étant de 20 min, et le laser TRIDENT ayant un taux de répétition 10 fois moins élevé que le laser à

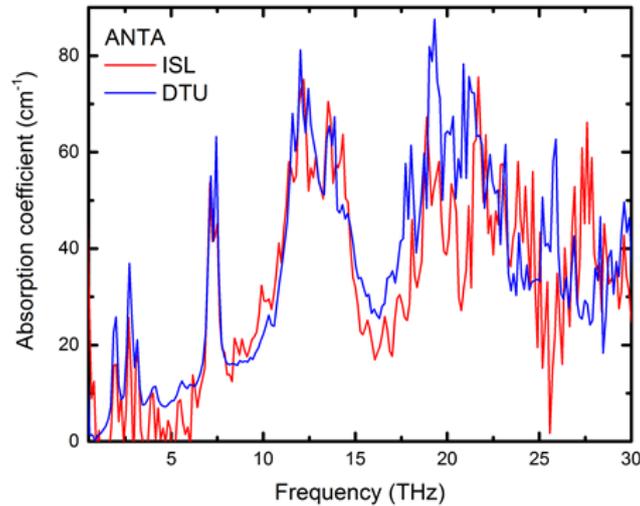


FIGURE 1.22 – Spectres de l'explosif ANTA obtenus à DTU sur une courte distance de propagation (courbe bleue) et à l'ISL après une propagation du faisceau pompe à 800 nm sur 12 m (courbe rouge). Dû à la plus faible cadence du laser TRIDENT (100 Hz par rapport à 1 kHz à DTU) et le temps d'acquisition réduit (< 10 minutes à cause du désalignement fréquent du laser), la résolution des spectres obtenus à l'ISL est dégradée. Elle permet cependant de reproduire les principaux pics d'absorption des spectres DTU plus fins jusqu'à 18-20 THz.

DTU, une résolution équivalente n'a pu être obtenue à l'ISL. Étant données les instabilités thermiques et d'alignement subies par le laser TRIDENT, les spectres n'ont pu être acquis que sur des temps courts de 6 min, et ont été reproduits trois fois pour validation.

En dépit de ces limitations, des spectres d'ANTA, de PETN et de TATB ont été obtenus jusqu'à 30 THz de bande spectrale. Les empreintes spectrales de ces matériaux énergétiques sont clairement reconnaissables jusqu'à 18-20 THz, *démontrant pour la première fois la faisabilité de la spectroscopie THz à distance en milieu réaliste avec des temps d'acquisition courts*. En guise d'exemple, la figure 1.22 compare les spectres d'ANTA obtenus à DTU (spectroscopie fine) et à l'ISL (spectroscopie grossière). Les principales raies sont identifiables malgré la résolution dégradée du spectre mesuré sur des temps d'acquisition plus courts et à grande distance.

Les mesures de spectroscopie THz en régime de filamentation n'ont pas pu être réalisées par manque de temps.

Les expériences menées à l'ISL avec le laser TRIDENT montrent donc la possibilité d'analyser des matériaux, explosifs ou simulants, à distance dans des conditions non optimales pour une spectroscopie THz-TDS par plasma-laser femtoseconde.

1.3 Problématique et organisation du mémoire

1.3.1 Présentation du sujet

L'enjeu pour des applications en spectroscopie est de produire des champs THz intenses et large-bande, afin de collecter un maximum de signatures spectrales sur les matériaux analysés. Une des meilleures méthodes pour répondre à ces deux critères est d'utiliser les interactions laser-plasma, pouvant produire des champs de plusieurs GV/m dans le plasma et avec des spectres pouvant s'étendre de 0.1 à 100 THz.

Cette thèse traite ainsi des aspects théoriques et numériques relatifs à la génération de rayonnement THz par laser femtoseconde dans l'air. Elle s'inscrit dans le cadre du projet ALTESSE étudiant expérimentalement la spectroscopie THz d'explosifs et de similis par laser. Du point de vue expérimental, ce projet a permis d'obtenir le premier spectre étendu avec une largeur de 60 THz utilisé pour la spectroscopie, de comparer pour la première fois les méthodes d'acquisition en transmission et en réflexion, de jouer sur la forme spatiale des faisceaux laser et leur polarisation elliptique pour moduler les spectres THz et enfin de réaliser une première détection d'explosifs à une distance de plus de 10 m en milieu bruité.

Le premier objectif de cette thèse est donc d'identifier clairement les mécanismes physiques mis en jeu dans la génération de rayonnement THz par interaction laser-plasma. Ensuite, il s'agira d'optimiser théoriquement et numériquement les spectres THz afin d'être utilisables pour des applications de spectroscopie résolue en temps et à large bande. Enfin, de nouveaux scénarios sont proposés, tels que le couplage d'impulsions laser chirpées ou encore l'utilisation de futurs lasers à CO₂.

1.3.2 Cadre de travail, financements et ressources informatiques

Ce travail de doctorat a été réalisé à la Direction des Applications Militaires en Ile-de-France du Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA-DAM-DIF). Il a été financé par le CEA et la Direction Générale de l'Armement (DGA) et effectué dans le cadre du projet ALTESSE financé par l'Agence Nationale de la Recherche (ANR/ASTRID). Les simulations numériques décrites dans ce mémoire ont été réalisées sur les supercalculateurs Occigen appartenant au Cines (Montpellier) et Curie appartenant au TGCC du CEA (Arpajon). Des projets GENCI¹⁵ et PRACE¹⁶ ont donné accès à ces ressources informatiques. Les simulations les plus récentes ont été réalisées sur la machine Yoccoz du CEA, dans le cadre des Grands Challenges.

15. Grand Equipement National de Calcul Intensif, projet CNARO 2016-057594 et A0040507594

16. Partnership for Advanced Computing in Europe, projet CAPITOL 2014-112576

1.3.3 Plan

Outre ce premier chapitre d'introduction générale, notre mémoire de thèse s'articule autour des trois principaux chapitres suivants.

Le chapitre 2 décrit les phénomènes physiques conduisant à la génération d'ondes THz par interaction laser-plasma, qui sont l'effet Kerr à basse intensité laser ($< 10^{13}$ W/cm²) et les photocourants si le champ laser est suffisamment intense pour ioniser les atomes de l'air. Leur implémentation numérique est ensuite traitée. Pour cela, on utilise un modèle 3D unidirectionnel permettant d'effectuer des simulations sur de grandes distances de propagation. Ce modèle UPPE (Unidirectional Pulse Propagation Equation) utilisé au cours de ce manuscrit pour les simulations 3D y est détaillé.

Le chapitre 3 est une première étude visant à caractériser l'influence d'un "chirp" (dérive en fréquences) appliqué aux impulsions laser sur le rendement en énergie THz. La combinaison de plusieurs impulsions laser retardées les unes par rapport aux autres permet de moduler le courant électronique dans le plasma, et ainsi rendre les rendements et spectres THz modulables. Ceux-ci pourraient bénéficier du meilleur couplage entre les deux couleurs apporté par ces combinaisons convenablement choisies, notamment en régime de filamentation sur de longues distances de propagation.

Le chapitre 4 est consacré aux performances de l'émission THz en fonction de la longueur d'onde laser fondamentale. En effet, des expériences et simulations préliminaires ayant montré une croissance des rendements THz avec la longueur d'onde laser, il est intéressant d'étudier précisément son influence. Tout d'abord, l'évolution des énergies THz est décrite pour des longueurs d'onde laser allant du proche au moyen infrarouge, jusqu'à 2 μm . Puis, dans une seconde partie, les champs THz induits par des sources laser à CO₂ opérant à la longueur d'onde de 10.6 μm sont étudiés. Une dernière partie porte sur la comparaison avec les résultats expérimentaux obtenus au cours du projet ALTESSE au CELIA et à DTU pour des longueurs d'onde laser de 0.8 à 2.6 μm .

Enfin, le chapitre 5 conclut ce travail et en décrit quelques perspectives futures.

Génération de rayonnement THz par interaction laser-plasma

Sommaire

2.1 Mécanismes physiques	31
2.1.1 Champ laser initial	31
2.1.2 Equations de Maxwell	33
2.1.3 Effets Kerr et Raman	34
2.1.3.1 Polarisation linéaire	35
2.1.3.2 Effet Kerr instantané	37
2.1.3.3 Effet Kerr retardé : la diffusion Raman	39
2.1.4 Photo-ionisation et modèle "Local Current"	42
2.1.4.1 Equation de Vlasov	42
2.1.4.2 Moments électroniques	44
2.1.4.3 Taux d'ionisation	46
2.1.4.4 Courant de pertes	51
2.1.4.5 Description du modèle LC, calculs analytiques	52
2.1.4.6 Dépendances théoriques avec les paramètres laser	55
2.1.4.7 Puissances rayonnées en champ lointain	61
2.1.5 Comparaison photocourants/effet Kerr sur les spectres et champs THz émis	62
2.2 Le modèle UPPE	65
2.2.1 Des équations de Maxwell aux équations unidirectionnelles	65
2.2.1.1 Comparaison LC/UPPE	68
2.2.2 Validation et limitations du modèle UPPE	69
2.2.2.1 Mécanismes physiques fins	70

2.2.2.2	Validation de l'approximation unidirectionnelle	71
2.2.2.3	Validation expérimentale	73
2.2.2.4	Avantages et limitations du modèle UPPE	76
2.3	Conclusion	76

Ce chapitre présente les différents mécanismes nonlinéaires agissant sur la production de champs THz au cours de la propagation d'une impulsion laser femtoseconde à deux couleurs dans l'air. L'impulsion laser, suivant son intensité, va pouvoir être auto-focalisée par effet Kerr, puis défocalisée dû à la génération de plasma, ce qui engendre la création d'un filament pouvant se propager sur de grandes distances. Les photocourants induits par le champ laser dans le plasma vont contenir une composante basse-fréquence provenant de la conversion des deux couleurs par le plasma. C'est cette composante basse-fréquence du courant qui sera la principale source de rayonnement THz lors de l'interaction laser-plasma. L'effet Kerr, par mélange à quatre ondes des deux couleurs du champ laser, pourra aussi, dans une moindre mesure, créer un champ THz. Un premier volet de ce chapitre se concentre sur la description physique de ces deux mécanismes, tandis que la deuxième partie traite de leur implémentation numérique.

2.1 Mécanismes physiques

Cette partie décrit les mécanismes physiques mis en jeu lors de la propagation d'une impulsion laser dans l'air, modélisée à partir des équations de Maxwell. Celles-ci présentent des termes nonlinéaires dus, d'une part, à l'ionisation des molécules de l'air par le champ laser, aux instants et positions où celui-ci est suffisamment intense, et, d'autre part, à l'effet Kerr qui correspond à la réponse nonlinéaire des molécules de l'air (électrons liés) lors du passage de l'impulsion laser. Ces deux mécanismes se combinent pour créer des filaments de lumière issus d'une succession de séquences d'auto-focalisation du faisceau par effet Kerr et de défocalisation plasma, permettant l'auto-guidage du faisceau laser sur des distances supérieures à sa distance naturelle de diffraction linéaire (longueur de Rayleigh). La filamentation peut être une dynamique recherchée dans la production de rayonnement THz pour réaliser une détection à distance. Les champs THz, dans les gammes d'intensités laser considérées de 10^{13-15} W/cm², sont principalement induits par des photocourants générés lors de l'ionisation de l'air. Afin de modéliser simplement les champs THz résultant de la photo-ionisation, on utilise un modèle dit de "courant local" ("local current" en anglais, abrégé LC) résultant des deux premiers moments électroniques de l'équation de Vlasov qui résout l'évolution de la distribution des vitesses électroniques dans le plasma. Le modèle LC sera utilisé au cours de ce manuscrit pour prédire des tendances sur la variation du rendement THz en fonction des paramètres du champ laser initial.

2.1.1 Champ laser initial

Nous décrivons la propagation dans l'air d'un champ laser \mathbf{E}_L à deux couleurs – un fondamental et son second harmonique – tous deux polarisés linéairement selon la même direction¹ dans le plan orthogonal (\mathbf{e}_x) à la direction de propagation (\mathbf{e}_z). Les profils spatial et temporel de ces deux composantes sont ici supposés gaussiens. Le champ laser s'écrit sous la forme suivante, où (x, y) désignent les variables spatiales transverses, z la variable selon l'axe de propagation, et t le temps centré sur le maximum de l'enveloppe de l'impulsion :

$$\mathbf{E}_L(x, y, z = 0, t) = \sum_n E_{0,n} e^{-(x^2+y^2)/w_{0,n}^2} e^{-2 \ln 2 t^2 / \tau_{0,n}^2} \cos(n\omega_0 t + \phi_n) \mathbf{e}_x. \quad (2.1)$$

1. Dans le cas d'une seconde couleur produite par un cristal β -BBO de type I, le rendement optimal de conversion vers la deuxième couleur est obtenu lorsque les polarisations des deux couleurs sont orthogonales en sortie du cristal. Cependant, la direction de polarisation du fondamental peut par la suite être changée en utilisant une lame demi-onde à double longueur d'onde, permettant d'avoir les deux couleurs polarisées linéairement selon la même direction.

$E_{0,n}$, $w_{0,n}$ et $\tau_{0,n}$ sont respectivement l'amplitude du champ, la largeur en $1/e$ du faisceau et la largeur temporelle de l'impulsion à mi-hauteur initiales de la n ème couleur. $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0$ est la pulsation (aussi appelée abusivement fréquence) du fondamental associée à la longueur d'onde λ_0 , et ϕ_n désigne le déphasage temporel de la couleur n .

En pratique, les différents harmoniques sont créés par passage du faisceau laser dans un cristal doubleur. Leur énergie et leur phase par rapport au fondamental peuvent être modulées en déplaçant le cristal sur l'axe optique, entre la lentille convergente et le point focal (voir schéma 1.4).

Pour modéliser l'émission de la deuxième couleur par un cristal doubleur, par exemple de bêta-borate de baryum (BBO), on aura dans l'équation (2.1) $w_{0,2} = w_{0,1}/\sqrt{2}$ et $\tau_{0,2} = \tau_{0,1}/\sqrt{2}$, la conversion d'une partie du fondamental en harmonique deux provenant de nonlinéarités quadratiques de type $\chi^{(2)}E^2$, où $\chi^{(2)}$ désigne la susceptibilité d'ordre deux du matériau. Cependant, pour des raisons de simplification, on pourra aussi considérer que le second harmonique est préalablement traité avant d'être recombinaé avec le fondamental [110], de sorte que la deuxième couleur pourra présenter le même diamètre et/ou la même durée d'impulsion que la première couleur. La phase de la première couleur sera par la suite considérée nulle, et la phase entre les deux couleurs sera $\phi = \phi_2 - 2\phi_1 = \phi_2$. Comme nous le verrons plus tard, la phase entre les deux couleurs est une donnée initiale importante, variant fortement le long de la propagation, et qui influe sur le rendement THz.

On note r le rapport en énergie du second harmonique par rapport au fondamental introduit dans le champ initial. Les amplitudes de chaque couleur sont donc $E_{0,1} = \sqrt{1-r}E_0$ et $E_{0,2} = \sqrt{r}E_0$.

D'autres couleurs peuvent être ajoutées suivant le même schéma. Si les amplitudes et les phases des couleurs sont correctement ajustées, il est possible d'accroître fortement le rendement THz, en rendant le champ laser très asymétrique en temps (par exemple le long d'un profil idéal en dents de scie) [39]. Cependant, il est moins facile expérimentalement de produire des harmoniques supplémentaires, puis d'assurer leurs superpositions spatiale et temporelle avec le fondamental.

Le champ laser ainsi créé se propage dans un gaz, que l'on considérera dans ce manuscrit, sauf mention contraire, être de l'air composé à 80% de diazote et 20% de dioxygène. Comme nous le verrons par la suite, c'est principalement le dioxygène qui est ionisé en priorité pour les champs laser considérés. C'est pourquoi seul ce composant pourra être parfois utilisé dans les simulations.

L'effet d'une lentille convergente placée en $z = 0$ peut être simulé en multipliant la transformée de Fourier du champ laser par $e^{i\omega(x^2+y^2)/2cf}$, où f est la distance focale de la lentille considérée dans le vide [19]. Le champ laser incident résulte de la transformée de Fourier inverse de l'expression obtenue.

2.1.2 Equations de Maxwell

La lumière étant une onde électromagnétique, le champ électrique, incluant la composante laser décrite dans la section précédente, est solution des équations de Maxwell appliquées aux milieux continus nonlinéaires. Le champ électrique \mathbf{E} évolue dans un milieu ionisable mais non magnétique, c'est-à-dire que la densité de charges ρ peut être non nulle, induisant une densité de courants \mathbf{J} , alors que l'aimantation est nulle. On note \mathbf{H} le champ magnétique associé. Dans les milieux continus, les équations de Maxwell s'écrivent :

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.2)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (2.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \quad (2.4)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.5)$$

où \mathbf{D} est l'induction électrique dépendant de la polarisation \mathbf{P}

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}, \quad (2.6)$$

et \mathbf{B} est l'induction magnétique définie pour une aimantation nulle par

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}. \quad (2.7)$$

Par la suite, \mathbf{H} et \mathbf{B} étant identiques à la constante μ_0 près, on appellera abusivement champ magnétique le vecteur \mathbf{B} .

En combinant les équations (2.2), (2.3), (2.6) et (2.7), on obtient :

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}. \quad (2.8)$$

Or, par application de la relation vectorielle :

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E} \quad (2.9)$$

et en égalisant les deux équations précédentes (2.8) et (2.9), puis en utilisant les équations (2.4) et (2.6), nous obtenons l'équation d'onde :

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \left(\frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} + \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \right) \quad (2.10)$$

avec

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho - \nabla \cdot \mathbf{P}}{\epsilon_0}. \quad (2.11)$$

Les équations (2.10) et (2.11) constituent les équations de propagation du champ \mathbf{E} .

Les sections suivantes visent à étudier les deux termes du membre de droite de l'équation (2.10), les courants issus de la photo-ionisation et les polarisations linéaire pour la dispersion et nonlinéaire pour l'effet Kerr. Le membre de gauche sera ensuite simplifié en ne considérant que la composante se propageant vers l'avant dans un modèle unidirectionnel.

2.1.3 Effets Kerr et Raman

La polarisation est composée d'une partie \mathbf{P}_L correspondant à la dispersion et l'absorption linéaires du milieu, et d'une partie nonlinéaire \mathbf{P}_{NL} correspondant à la réponse des molécules au passage du champ laser. Les effets nonlinéaires sont supposés faibles, tels que $|\mathbf{P}_{NL}| \ll |\mathbf{P}_L|$. L'air est considéré comme un milieu isotrope et homogène, c'est-à-dire que les propriétés du milieu ne changent pas selon le repère choisi et sont identiques en tout point de l'espace. Si de plus on se place loin des résonances du milieu, la transformée de Fourier en temps de la polarisation $\hat{\mathbf{P}}$ peut s'écrire comme une série de puissance du champ $\hat{\mathbf{E}}$ [6, 20] à la position \mathbf{r} et à la fréquence ω :

$$\hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}, \omega) = \sum_i \hat{\mathbf{P}}^{(i)}(\mathbf{r}, \omega), \quad (2.12)$$

où les projections suivant les vecteurs unitaires \mathbf{e}_μ , avec $\mu = x, y$ ou z , sont

$$\begin{aligned} \hat{P}_\mu^{(i)}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \sum_{(\mu_1, \dots, \mu_i)} \int_{(\omega_1, \dots, \omega_i)} \chi_{\mu, \mu_1, \dots, \mu_i}^{(i)} \left(-\sum_{k=1}^i \omega_k, \omega_1, \dots, \omega_i \right) \delta \left(\omega - \sum_{k=1}^i \omega_k \right) \\ \times \prod_{k=1}^i E_{\mu_k}(\mathbf{r}, \omega_k) d\omega_k, \end{aligned} \quad (2.13)$$

avec $\chi^{(i)}$ les tenseurs de susceptibilité à l'ordre i et $\delta(x)$ la distribution de Dirac classique.

Pour des molécules centrosymétriques, ce qui est le cas des molécules de l'air, les susceptibilités d'ordre pair s'annulent. De plus, on se limite à l'ordre 3. La polarisation linéaire est donc $\mathbf{P}_L = \mathbf{P}^{(1)}$ tandis que la polarisation nonlinéaire se réduit à $\mathbf{P}_{NL} = \mathbf{P}^{(3)}$.

De plus, la polarisation nonlinéaire contient une partie retardée causée par effet Raman [75, 89]. Le ratio de la partie retardée par rapport à la partie instantannée sera noté x_K . Sa composition sera détaillée plus tard.

2.1.3.1 Polarisation linéaire

Le tenseur de susceptibilité d'ordre 1 étant diagonal, la polarisation linéaire se simplifie en

$$\widehat{\mathbf{P}}^{(1)}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \widehat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, \omega). \quad (2.14)$$

La susceptibilité d'ordre 1 du milieu, $\chi^{(1)}$, définit la dispersion pour sa partie réelle et l'absorption du milieu pour sa partie imaginaire. On écrit aussi

$$\chi^{(1)}(\omega) = \epsilon(\omega) - 1 \quad (2.15)$$

où $\epsilon(\omega)$ est la permittivité diélectrique ou "constante diélectrique" du milieu.

Si les pertes sont négligeables, c'est-à-dire si $\chi^{(1)}$ est réelle, alors $\epsilon(\omega) = n^2(\omega)$ où n est l'indice linéaire de réfraction du milieu. On définit alors par

$$k(\omega) = n(\omega) \frac{\omega}{c} \quad (2.16)$$

le nombre d'onde du champ \mathbf{E} .

Pour l'air, nous commencerons par retenir l'indice de réfraction proposé par Peck and Reeder [74]. Afin d'avoir une description plus réaliste et prendre en compte les raies d'absorption de la vapeur d'eau, du dioxyde de carbone et de leur dérivés, nous utiliserons plutôt ensuite la base de données HITRAN [5].

HITRAN est une base de données en libre accès sur Internet qui regroupe les résultats expérimentaux sur les paramètres de raies spectrales de gaz et de polluants atmosphériques. Ces informations sont nécessaires pour résoudre les problèmes d'optique atmosphérique pour la modélisation et la visualisation de spectres d'absorption moléculaire. Les données HITRAN sont utilisées pour obtenir les spectres d'absorption des molécules d'eau et des éléments carbonés, ainsi que le spectre de dispersion optique induit par ces molécules. Ce dernier spectre complète le spectre semi-empirique de Peck et Reeder. Pour cela, on calcule les susceptibilités électriques de la vapeur d'eau et du dioxyde de carbone grâce à la formule donnée par Mathar [64] :

$$\chi_m(\omega) = 2N_m c^2 \sum_l \left[\frac{S_{ml}}{\omega_{0ml}} \left(\frac{1}{\omega + \omega_{0ml} - \frac{i\gamma_{ml}}{2}} - \frac{1}{\omega - \omega_{0ml} - \frac{i\gamma_{ml}}{2}} \right) \right], \quad (2.17)$$

où m désigne la vapeur d'eau ou le dioxyde de carbone, N_m est la densité moléculaire de m , liée à la pression partielle que l'on choisit; ω_{0ml} , S_{ml} et γ_{ml} sont respectivement la fréquence de la transition, son intensité et sa largeur à mi-hauteur donnés par HITRAN, pour une pression partielle et une température choisies. Ces susceptibilités électroniques

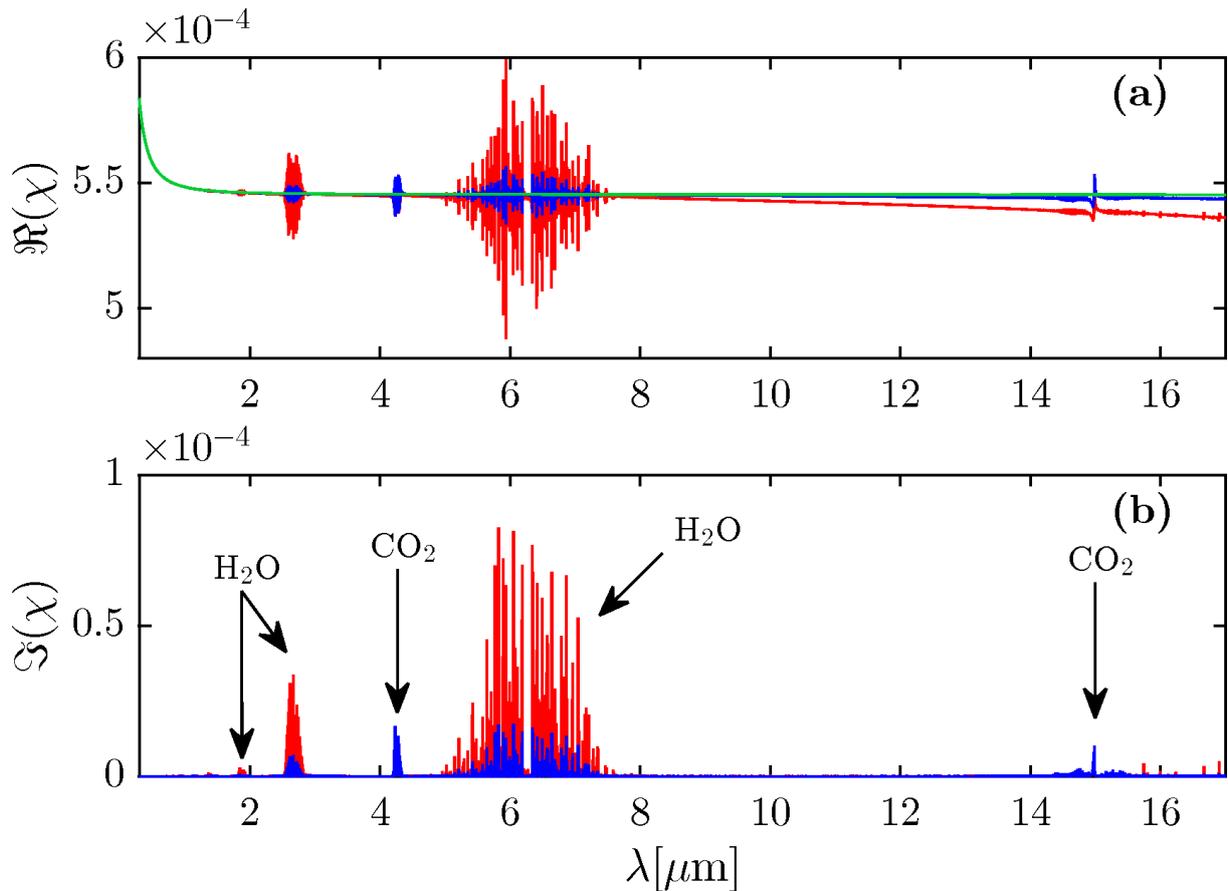


FIGURE 2.1 – Comparaison des parties (a) réelles et (b) imaginaires des susceptibilités de l’air basées sur la dispersion de Peck et Reeder en incluant ou non (courbe verte) les données HITRAN sur la vapeur d’eau, le dioxyde de carbone et leur dérivés. Lorsque les données HITRAN sont incluses, les courbes bleues et rouges distinguent ici pour un climat tempéré deux situations caractéristiques : l’“hiver” avec une température de 15°C et une humidité de 20% (courbes bleues), et l’“été” avec une température de 25°C et une humidité de 60% (courbes rouges).

partielles permettent de construire la susceptibilité totale donnée par la figure 2.1.

La figure 2.1 compare les susceptibilités de Peck et Reeder avec ou sans les données HITRAN pour différentes températures ambiantes et humidités relatives. L’humidité relative correspond au rapport entre la pression partielle et la pression saturante de la vapeur d’eau. À partir d’une telle carte de dispersion, différentes conditions climatiques pourront donc être analysées. Pour les zones tempérées à altitude nulle, nous considérerons que l’hiver est caractérisé par une température de 15°C et une humidité de 20%, et l’été par une température de 25°C et une humidité de 60% [5, 83]. Remarquons à ce propos que les longueurs d’ondes optiques peuvent être absorbées autour de 2 et 3 μm , et entre 5 et 7 μm à cause de la vapeur d’eau, et autour de 4 μm par le dioxyde de carbone.

2.1.3.2 Effet Kerr instantané

L'effet Kerr optique correspond à la variation nonlinéaire de l'indice optique d'un milieu transparent donné lors de la propagation d'un champ suffisamment intense dans ce milieu. Dans sa version non dispersive, $\chi^{(3)}(\omega) = \chi^{(3)}(\omega_0)$, la polarisation nonlinéaire due à l'effet Kerr s'écrit

$$\mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_0) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)^3. \quad (2.18)$$

De même que pour la polarisation linéaire, le tenseur $\chi^{(3)}$ est considéré comme isotrope, ce qui permet de le ramener à l'une de ses composantes scalaires $\chi^{(3)}(\omega_0) = \chi_{xxxx}^{(3)}(\omega_0)$ utilisée dans l'équation (2.18).

En considérant un champ monochromatique de type onde plane $\mathbf{E}(t) = E_0 \cos(\omega_0 t) \mathbf{e}_x$, on trouve facilement

$$\mathbf{P}^{(3)}(t) = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3}{4} [3 \cos(\omega_0 t) + \cos(3\omega_0 t)] \mathbf{e}_x. \quad (2.19)$$

La polarisation nonlinéaire est alors composée de deux termes, l'un oscillant à la fréquence fondamentale, et l'autre à la fréquence de l'harmonique trois. Par mélange à quatre ondes, l'effet Kerr permet donc la génération de hautes harmoniques de fréquence $\geq 3\omega_0$. Le spectre devient d'autant plus enrichi si l'impulsion initiale comporte deux couleurs. En ajoutant la polarisation linéaire à l'expression (2.19), et en ne considérant que les termes oscillant à ω_0 , la polarisation totale associée à la réponse des électrons liés du milieu de propagation devient

$$\mathbf{P}_{\omega_0}(t) = \left(\chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^2 \right) \epsilon_0 \mathbf{E}(t). \quad (2.20)$$

On définit usuellement l'indice optique nonlinéaire comme [6, 20]

$$n_2 = \frac{3}{4} \frac{\chi^{(3)}}{c \epsilon_0 n_0^2}, \quad (2.21)$$

où $n_0 = n(\omega_0)$ est l'indice optique de l'air à ω_0 . Avec cette définition, la polarisation peut s'écrire sous la forme $\mathbf{P}(t) = (n_{\text{eff}}^2 - 1) \epsilon_0 \mathbf{E}(t)$, où $n_{\text{eff}} = n_0 + n_2 I_0$ est l'indice de réfraction effectif et $I_0 = c \epsilon_0 n_0 E_0^2 / 2$ est l'intensité pic. En supposant que les nonlinéarités sont faibles ($n_2 I_0 \ll n_0$), on retrouve

$$n_{\text{eff}}^2 - 1 \simeq n_0^2 - 1 + 2n_0 n_2 I_0 = \chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^2. \quad (2.22)$$

L'indice optique effectif augmente donc au cours de la propagation laser, et contraint les rayons lumineux à se réfracter sur l'axe optique : c'est le phénomène d'auto-focalisation [63, 18], induisant une compression spatiale du faisceau. Un faisceau laser verra son dia-

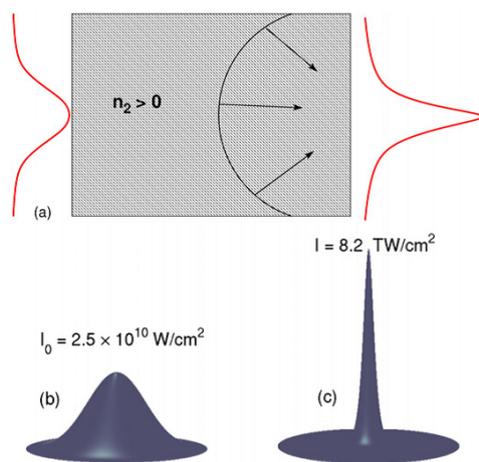


FIGURE 2.2 – (a) Schéma de l’auto-focalisation par effet Kerr. Si un milieu possède un indice non linéaire n_2 positif, alors le faisceau peut s’auto-focaliser. (b,c) Intensités (b) avant et (c) après auto-focalisation. Source : Bergé [18].

mètre transverse diminuer au cours de sa propagation dans le milieu non linéaire, et son intensité pic augmentera en conséquence, ce qui est illustré sur la figure 2.2. Si l’effet Kerr n’est pas saturé par des effets dissipatifs ou des termes non linéaires défocalisant, l’auto-focalisation conduit à un “effondrement” (“collapse” en anglais) de l’onde.

L’effet Kerr a donc pour effet d’augmenter l’intensité de l’impulsion laser, tout en générant des harmoniques d’ordre 3 et plus. L’équation (2.19) montre qu’avec une couleur et sans enveloppe, aucune basse fréquence n’est générée. En considérant à présent un champ laser avec deux couleurs tel que défini par l’équation (2.1) en $x = y = z = 0$, la polarisation Kerr basse-fréquence, c’est-à-dire ne contenant aucun battement à des fréquences optiques [ici ne contenant que des fréquences nulles associées à un courant continu ou “direct current” (DC) en anglais], s’écrit

$$P_K^{\text{dc}} = \frac{3}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} E_{0,1}^2 E_{0,2} \cos \phi. \quad (2.23)$$

Cette formulation laisse ainsi entrevoir la possibilité de produire un champ basse-fréquence (THz par rapport à des fréquences optiques PHz). Le champ THz généré est ici maximal pour une phase nulle entre les deux couleurs, et s’annule lorsque la phase relative est de $\pi/2$.

La figure 2.3 montre le spectre de la dérivée seconde en temps de la polarisation Kerr évaluée localement pour un champ laser à deux couleurs avec une phase relative nulle. Le spectre est large, de forme parabolique $\propto \nu^2$ ($\nu = \omega/2\pi$) car nul à la fréquence zéro, et maximal autour de 20 THz.

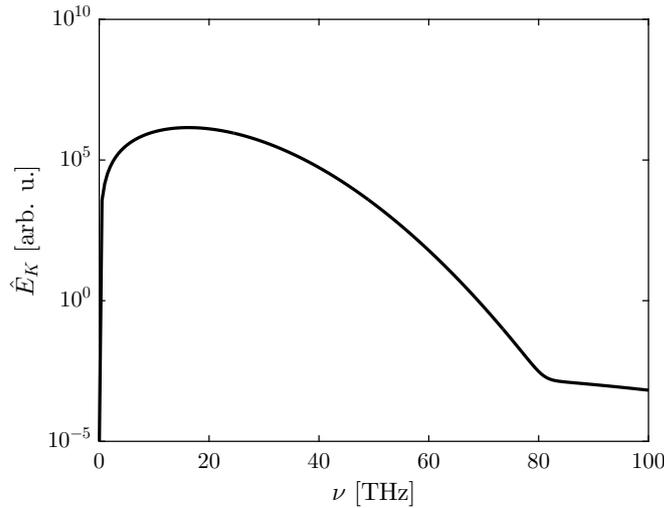


FIGURE 2.3 – Spectre de la polarisation Kerr donnée par l'équation (2.18) pour un champ laser à deux couleurs défini par l'équation (2.1) avec $x = y = z = 0$ et $\phi = 0$, pour une durée d'impulsion $\tau_0 = 60$ fs et une énergie (fluence en 0D) $U_L = 3$ J/cm², avec 10% dans la deuxième couleur.

2.1.3.3 Effet Kerr retardé : la diffusion Raman

La diffusion Raman correspond à la diffusion inélastique d'un photon dans un milieu, qui, lors du passage d'une onde optique, peut modifier légèrement la fréquence de l'onde initiale, notamment par des vibrations ou des rotations moléculaires caractéristiques de ses molécules. Dans le cas de l'air à pression atmosphérique pour des altitudes < 100 km, c'est la rotation des molécules de diazote (N_2) qui est le principal effet modifiant le champ laser [75]. Les vibrations linéaires du N_2 sont négligeables, car elles interviennent à des fréquences plus hautes.

La diffusion inélastique se fait au travers d'émissions Stokes et Anti-Stokes de photons. Les transitions Raman d'un état à un autre n'étant permises que si la polarisabilité des deux états est différente [20], les transitions de rotation permises sont $\Delta j = \pm 2$, où j est le nombre quantique rotationnel². Pour les vibrations, les transitions permises sont $\Delta n = \pm 1$, où n est le nombre quantique vibrationnel³. L'émission Stokes correspond au passage d'un niveau j à $j + 2$, et l'émission Anti-Sokes de $j + 2$ à j . Pour des molécules linéaires, ce qui est le cas pour le diazote de l'air, les niveaux d'énergie sont

$$E_j = j(j + 1)chB_0, \quad (2.24)$$

2. correspondant au moment angulaire total, $j = |l \pm s|$, où l est le nombre quantique secondaire azimutal et s le nombre quantique de spin

3. correspondant au nombre quantique principal, aussi noté v dans le cas de molécules

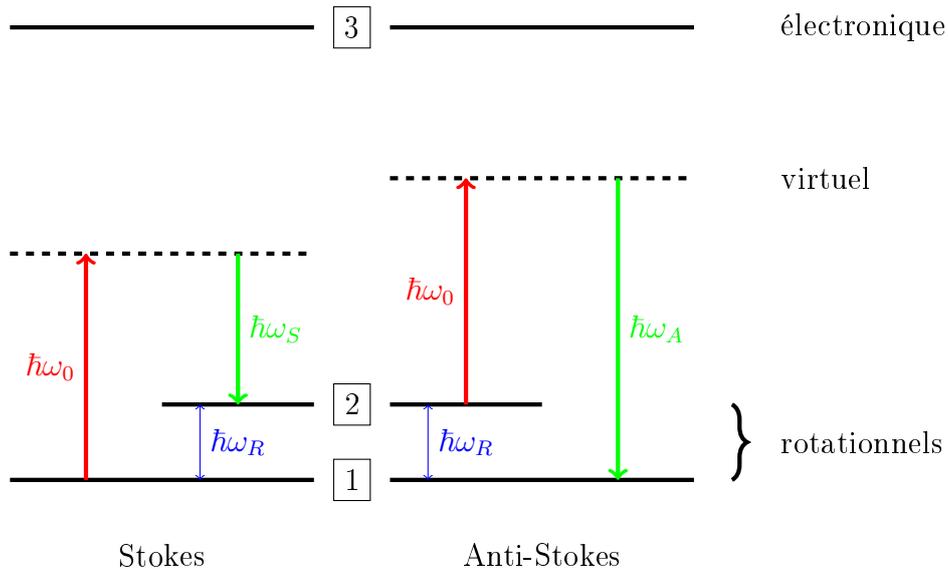


FIGURE 2.4 – Emissions Stokes (gauche) et Anti-Stokes (droite). ω_0 correspond à la pulsation du laser, $\hbar\omega_R$ à la différence d'énergie entre les deux niveaux rotationnels de la molécule, et $\hbar\omega_S$ et $\hbar\omega_A$ sont les énergies des photons Stokes et Anti-Stokes émis.

où c est la vitesse de la lumière, h la constante de Planck et B_0 une constante rotationnelle associée à chaque molécule, qui vaut $B_0 \simeq 2 \text{ cm}^{-1}$ pour le diazote [60]. La différence de fréquences intervenant dans les émissions Stokes et Anti-Stokes est alors $\pm(4j + 6)cB_0$, correspondant à 2.27 THz pour $j = 8$, qui est la raie Stokes dominante pour le diazote.

Les émissions Stokes et Anti-Stokes sont indépendantes de la fréquence laser, pourvu que celle-ci soit supérieure à la différence de fréquences des deux niveaux de rotation de la molécule. La figure 2.4 schématise ces deux types d'émission. On considère deux états rotationnels 1 et 2, loin de l'état électronique 3. En passant par un état virtuel, l'énergie d'un photon laser permet de passer de l'état 1 à 2 (resp. 2 à 1) dans le cas d'une émission Stokes (resp. Anti-Stokes). La fréquence laser est telle que l'état 3 ne peut être peuplé.

La diffusion Stokes correspond à l'émission d'un photon de fréquence $\omega_S = \omega_0 - \omega_R$, où ω_R est la différence de fréquence entre les deux états rotationnels de la molécule. La diffusion Anti-Stokes permet l'émission d'un photon de fréquence $\omega_A = \omega_0 + \omega_R$. L'état 2 étant initialement non peuplé, et faiblement peuplé au cours du temps par émission Stokes, la diffusion Anti-Stokes reste un processus négligeable et ne sera pas considéré par la suite.

Résolu avec le formalisme des matrices densités et les constantes de temps $\bar{\tau}_1$ et $\bar{\tau}_2$ [75, 89], la contribution de la diffusion Raman dans la polarisation nonlinéaire s'écrit, comme détaillé en Annexe A :

$$P_{\text{Raman}}(t) = x_K \frac{3}{2} \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t) \int_0^{+\infty} \frac{\bar{\tau}_1^2 + \bar{\tau}_2^2}{\bar{\tau}_1 \bar{\tau}_2^2} e^{-t'/\bar{\tau}_2} \sin\left(\frac{t'}{\bar{\tau}_1}\right) E^2(t-t') dt'. \quad (2.25)$$

Cette diffusion Raman correspond à un effet Kerr retardé par rapport au champ laser.

En considérant un champ laser à deux couleurs décrit par l'équation (2.1) sans fonction d'enveloppe ($w_{0,n}, \tau_{0,n} \rightarrow \infty$), la polarisation Raman pour les basses fréquences se réduit après simplifications trigonométriques à

$$P_{\text{Raman}}^{\text{dc}} = x_K \frac{3}{2} \epsilon_0 \chi^{(3)} E_{0,1}^2 E_{0,2} (T_1 \cos \phi + T_2 \sin \phi), \quad (2.26)$$

où T_1 et T_2 sont des constantes dépendant de $\bar{\tau}_1$, $\bar{\tau}_2$ et ω_0 [67], définies par

$$T_1 = \frac{\bar{\tau}_1^2 + \bar{\tau}_2^2}{4} \left\{ \frac{\bar{\tau}_2^2 + \bar{\tau}_1^2 (1 - 4\bar{\tau}_2^2 \omega_0^2)}{\alpha} + \frac{2\bar{\tau}_1 \omega_0 [\bar{\tau}_2^2 - \bar{\tau}_1^2 (1 + \bar{\tau}_2^2 \omega_0^2)]}{\beta} \right\}, \quad (2.27)$$

$$T_2 = \frac{\bar{\tau}_1^2 + \bar{\tau}_2^2}{4} \left\{ -\frac{4\bar{\tau}_1^2 \bar{\tau}_2 \omega_0}{\alpha} + \frac{2\bar{\tau}_1 \bar{\tau}_2^{-1} [\bar{\tau}_2^2 + \bar{\tau}_1^2 (1 + \bar{\tau}_2^2 \omega_0^2)]}{\beta} \right\}, \quad (2.28)$$

avec

$$\alpha = (\bar{\tau}_1^2 + \bar{\tau}_2^2)^2 + (2\bar{\tau}_1 \bar{\tau}_2 \omega_0)^2 (2\bar{\tau}_1^2 - 2\bar{\tau}_2^2 + 4\bar{\tau}_1^2 \bar{\tau}_2^2 \omega_0^2), \quad (2.29)$$

$$\beta = (\bar{\tau}_1^2 + \bar{\tau}_2^2)^2 + (\bar{\tau}_1 \bar{\tau}_2 \omega_0)^2 (2\bar{\tau}_1^2 - 2\bar{\tau}_2^2 + \bar{\tau}_1^2 \bar{\tau}_2^2 \omega_0^2). \quad (2.30)$$

Pour des longueurs d'ondes laser entre 0.8 et 3 μm , on montre que $|T_2| \simeq 0.02|T_1|$, et T_1 est négatif et de valeur absolue $|T_1| \leq 0.021$. Il est donc raisonnable de négliger T_2 , de sorte que l'on trouve

$$P_{\text{Raman}}^{\text{dc}} = x_K T_1 \frac{3}{2} \epsilon_0 \chi^{(3)} E_{0,1}^2 E_{0,2} \cos \phi. \quad (2.31)$$

T_1 étant négative et limitée à quelques pourcents, la polarisation Raman s'oppose à la polarisation Kerr instantanée en basse-fréquence. L'effet Raman permet donc a priori de modérer la génération de rayonnement THz par effet Kerr.

La figure 2.5 montre l'influence de l'effet Raman sur les spectres et champs THz par augmentation de son ratio x_K . Ces spectres sont construits à partir des termes de courant et de polarisation nonlinéaires $\partial_t \mathbf{J} + \partial_t^2 \mathbf{P}$ présents dans l'équation (2.10) et calculés localement pour un champ d'entrée gaussien à deux couleurs [équation (2.1)]. Les champs sont ensuite déduits des spectres par filtrage dans le domaine basse-fréquence $\nu \leq \nu_{\text{THz}} = 80$ THz. Les spectres locaux montrent que l'effet Raman réduit l'amplitude du champ THz créé. Plus le ratio de polarisation Raman est grand, plus le spectre est diminué, cette chute pouvant atteindre jusqu'à 4 ordres de grandeurs. Cependant, nos simulations 3D montreront plus tard que la polarisation Raman n'agit pas directement sur la production de rayonnement THz au cours de la propagation laser. De façon plus importante, l'ajout de l'effet Raman va modifier le spectre de l'impulsion optique via l'auto-modulation de phase et donc les photocourants générés [67], qui sont le mécanisme principal de production de rayonnement THz, comme nous le verrons dans la section suivante.

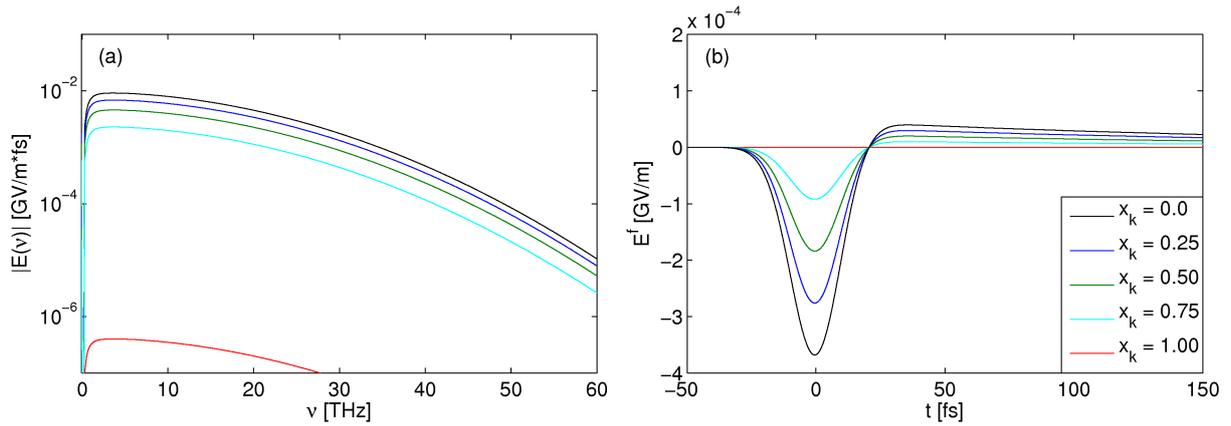


FIGURE 2.5 – Spectres (a) et champs THz (b) obtenus avec un modèle local incluant les photocourants (cf paragraphe 2.1.4.5), l’effet Kerr instantané et l’effet Raman, pour différents ratio x_K d’effet Raman.

2.1.4 Photo-ionisation et modèle “Local Current”

Lorsque le champ laser est suffisamment intense, des électrons peuvent être arrachés à leur atome par le processus de photo-ionisation. Celle-ci se produit de différentes manières. À faible intensité laser, c’est-à-dire en deçà de 10 TW/cm^2 , les électrons sont ionisés par augmentation successive de leur énergie par chaque photon laser transmis. Ce type d’ionisation se réfère à l’ionisation multiphotonique. À plus forte intensité, le potentiel atomique est abaissé par le champ laser, de sorte que l’ionisation se réalise par effet tunnel à travers la barrière de potentiel coulombien. Les électrons libérés oscillent alors dans le champ laser, générant un courant qui est un terme source dans les équations de Maxwell. Ce courant est calculé grâce aux équations de Vlasov. Sur les échelles de temps (sub-picoseconde) considérées ici, les ions sont supposés immobiles et n’interviennent pas dans le courant. C’est pourquoi nous étudierons par la suite uniquement les équations des moments électroniques.

2.1.4.1 Equation de Vlasov

L’équation de Vlasov permet de décrire les effets cinétiques d’un plasma, c’est-à-dire de modéliser l’évolution des distributions en espace-temps et vitesse des particules chargées du plasma. Pour établir cette équation dans le cas général, on part de l’équation du mouvement d’une particule i de vecteur position \mathbf{r}_i dans un plasma composé d’électrons libres et d’ions de charge quelconque :

$$\frac{d\mathbf{r}_i}{dt} = \mathbf{v}_i \quad (2.32)$$

$$\frac{d\mathbf{p}_i}{dt} = q_i(\mathbf{E}_i + \mathbf{v}_i \times \mathbf{B}_i), \quad (2.33)$$

où $\mathbf{p}_i = \gamma_i m_i \mathbf{v}_i$ est le moment de la particule i , m_i sa masse, $\mathbf{v}_i = \partial_t \mathbf{r}_i$ sa vitesse, q_i sa charge, et $\gamma_i = \sqrt{1 - |\mathbf{v}_i|^2/c^2}$ est le facteur de Lorentz relativiste. \mathbf{E}_i et \mathbf{B}_i désignent les champs électrique et magnétique vus par la particule i .

Pour chaque espèce s , on définit la valeur moyenne de sa densité N_s liée à la fonction de distribution de l'espèce f_s par

$$\langle N_s(t, \mathbf{r}) \rangle = \iiint f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p}) d\mathbf{p}. \quad (2.34)$$

De même, la valeur moyenne d'une grandeur A sera définie par

$$\langle A(t, \mathbf{r}) \rangle = \frac{\iiint A(t, \mathbf{r}, \mathbf{p}) f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p}) d\mathbf{p}}{\langle N_s(t, \mathbf{r}) \rangle}. \quad (2.35)$$

La densité moyenne de courant s'écrit alors :

$$J = \sum_s q_s \int \mathbf{v} f_s(\mathbf{v}) d\mathbf{v}. \quad (2.36)$$

L'approximation de Vlasov consiste à négliger la différence entre les champs moyens et les champs "microscopiques" propres à chaque particule. Cette différence importe lorsque les particules sont proches et que leurs interactions binaires sont non négligeables. Dans l'approximation de Vlasov, la fonction de distribution se conserve le long de la trajectoire de chaque particule et satisfait donc $d_t f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p}) = 0$. Cependant, dans notre cas, le champ laser est capable d'ioniser des électrons, et donc de modifier les fonctions de distribution de chaque espèce. Cela se traduit par l'ajout d'un terme source $S_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})$ dû à l'ionisation :

$$\frac{df_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{dt} = S_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p}). \quad (2.37)$$

On obtient alors à partir des équations (2.32) et (2.33) :

$$\frac{df_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{dt} = \frac{\partial f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial t} + \frac{d\mathbf{r}}{dt} \frac{\partial f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial \mathbf{r}} + \frac{d\mathbf{p}}{dt} \frac{\partial f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial \mathbf{p}} \quad (2.38)$$

$$= \frac{\partial f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial t} + \mathbf{v} \frac{\partial f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial \mathbf{r}} + q_s [\mathbf{E}(t, \mathbf{r}) + \mathbf{v} \times \mathbf{B}(t, \mathbf{r})] \frac{\partial f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial \mathbf{p}} \quad (2.39)$$

$$= S_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p}). \quad (2.40)$$

Pour tenir compte des champs microscopiques propres à chaque particule, on considère la fonction de distribution exacte $f_s^{\text{exacte}} = f_s + f_s^{\text{diff}}$ de l'espèce s , où f_s^{diff} est la fluctuation

de la distribution exacte à la distribution moyenne f_s .

En faisant la même décomposition sur $d_t \mathbf{p}^{\text{exacte}} = q_s [\mathbf{E}^{\text{exacte}}(t, \mathbf{r}) + \mathbf{v} \times \mathbf{B}^{\text{exacte}}(t, \mathbf{r})]$, nous obtenons

$$\frac{\partial f_s^{\text{exacte}}(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial t} + \mathbf{v} \frac{\partial f_s^{\text{exacte}}(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial \mathbf{r}} + \frac{d\mathbf{p}^{\text{exacte}}}{dt} \frac{\partial f_s^{\text{exacte}}(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial \mathbf{p}} = S_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p}). \quad (2.41)$$

En moyennant l'équation (2.41), l'équation (2.39) est retrouvée, auquel s'ajoute un terme de collision, provenant de la moyenne du terme $d_t \mathbf{p}^{\text{exacte}} \partial_{\mathbf{p}} f_s^{\text{exacte}}(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})$.

L'équation d'évolution de la fonction de distribution d'une espèce prenant en compte les collisions s'écrit donc

$$\begin{aligned} \frac{\partial f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial t} + \mathbf{v} \frac{\partial f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial \mathbf{r}} + q_s [\mathbf{E}(t, \mathbf{r}) + \mathbf{v} \times \mathbf{B}(t, \mathbf{r})] \frac{\partial f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial \mathbf{p}} \\ = S_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p}) + \left[\frac{\partial f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial t} \right]_{\text{coll}}, \end{aligned} \quad (2.42)$$

où $[\partial_t f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})]_{\text{coll}} = -q_s \langle [\mathbf{E}^{\text{diff}}(t, \mathbf{r}) + \mathbf{v} \times \mathbf{B}^{\text{diff}}(t, \mathbf{r})] \partial_{\mathbf{p}} f_s^{\text{diff}}(t, \mathbf{r}, \mathbf{p}) \rangle$.

Dans la suite de ce manuscrit, on considèrera le terme de collisions comme étant un terme de relaxation de la forme $[\partial_t f_s(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})]_{\text{coll}} = -(f_s - f_s^0)/\tau_s$, où τ_s est le temps de relaxation et f_s^0 la fonction de distribution vers laquelle f_s tend. Ce terme est associé à des collisions supposées élastiques pour lesquelles il n'y a ni création, ni pertes de particules.

2.1.4.2 Moments électroniques

Pour les intensités et durées laser considérées, seuls les électrons sont mis en mouvement, et nous négligeons le mouvement des ions. Les électrons ont des vitesses v_e non relativistes, et donc $\gamma_e = \sqrt{1 - v_e^2/c^2} \sim 1$. L'équation d'évolution de la fonction de distribution des électrons devient ainsi :

$$\begin{aligned} \frac{\partial f_e(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial t} + \frac{\mathbf{p}}{m_e} \frac{\partial f_e(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial \mathbf{r}} - e \left[\mathbf{E}(t, \mathbf{r}) + \frac{\mathbf{p}}{m_e} \times \mathbf{B}(t, \mathbf{r}) \right] \frac{\partial f_e(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial \mathbf{p}} \\ = S_e(t, \mathbf{r}, \mathbf{p}) + \left[\frac{\partial f_e(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial t} \right]_{\text{coll}} \end{aligned} \quad (2.43)$$

où $[\partial_t f_e(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})]_{\text{coll}} = -\nu_c f_e$ avec ν_c la fréquence de collision électron-neutre, les autres types de collisions étant négligés, notamment les collisions électrons-ions en raison des faibles états de charge des constituants de l'air. Le terme source est de la forme $S_e(t, \mathbf{r}, \mathbf{p}) = S_e(t, \mathbf{r})\delta(\mathbf{p} = 0)$, car les électrons créés ont une vitesse initiale supposée nulle.

En multipliant l'équation (2.43) par \mathbf{p}^d , $d \in \mathbb{N}$, et en intégrant sur \mathbf{p} , on obtient le moment d'ordre d .

Le *moment d'ordre zéro* correspond à l'équation de conservation de la densité électronique. Par propriété de la fonction de distribution qui doit être lisse et vérifier

$$|\mathbf{p}|^\alpha f(t, \mathbf{r}, \mathbf{p}) \xrightarrow{|\mathbf{p}| \rightarrow \infty} 0 \quad (2.44)$$

pour tout réel positif α , l'intégrale sur \mathbf{p} des termes $-e \left[\mathbf{E}(t, \mathbf{r}) + \frac{\mathbf{p}}{m_e} \times \mathbf{B}(t, \mathbf{r}) \right] \partial_{\mathbf{p}} f_e(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})$ et $[\partial_t f_e(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})]_{\text{coll}}$ est nulle. Le moment d'ordre zéro conduit donc à [88] :

$$\frac{\partial \langle N_e(t, \mathbf{r}) \rangle}{\partial t} + \frac{\partial \langle \mathbf{v} N_e(t, \mathbf{r}) \rangle}{\partial \mathbf{r}} = S_e(t, \mathbf{r}, \mathbf{p} = 0). \quad (2.45)$$

Le terme source est considéré comme non nul en $\mathbf{p} = \mathbf{0}$ et nul ailleurs. En négligeant le terme de convection $\partial_{\mathbf{r}} \langle \mathbf{v} N_e(t, \mathbf{r}) \rangle$ car $v \ll c$, et en adoptant les notations moyennées $A(t, \mathbf{r}) = \langle A(t, \mathbf{r}) \rangle$, nous obtenons ainsi l'équation source pour les électrons libres :

$$\frac{\partial N_e}{\partial t}(t, \mathbf{r}) = W(\mathbf{E})(N_a - N_e), \quad (2.46)$$

où $S_e(t, \mathbf{r}, \mathbf{p} = 0) = W[\mathbf{E}(t, \mathbf{r})][N_a - N_e(t, \mathbf{r})]$ est le terme source de la photo-ionisation, N_a est la densité initiale du gaz et $W(\mathbf{E})$ est le taux d'ionisation dépendant du champ \mathbf{E} .

L'équation d'évolution (2.46) est écrite pour une seule espèce hydrogénoïde, c'est-à-dire agissant comme si l'atome ne comportait qu'un seul électron. Afin de prendre en compte plusieurs espèces ionisables, par exemple le dioxygène et le diazote, il est nécessaire de calculer les densités électroniques induites par chaque espèce, puis de les sommer.

Par ailleurs, si l'impulsion laser est suffisamment intense, plusieurs couches électroniques peuvent être ionisées. Pour calculer la densité des électrons issus des différentes couches électroniques, nous résolvons le système d'équations suivant, portant sur les densités $N_i^{(Z)}$ des espèces ionisées Z fois et leur taux d'ionisation associé $W(\mathbf{E})^{(Z)}$:

$$\frac{\partial N_i^{(Z)}}{\partial t}(t, \mathbf{r}) = W(\mathbf{E})^{(Z)} N_i^{(Z-1)} - W(\mathbf{E})^{(Z+1)} N_i^{(Z)}, \quad (2.47)$$

pour $Z = 1, \dots, Z_{\text{max}}$, où Z_{max} est le nombre maximum d'électrons pouvant être libérés, et pour $Z = 0$

$$\frac{\partial N_i^{(0)}}{\partial t}(t, \mathbf{r}) = -W(\mathbf{E})^{(1)} N_i^{(0)}, \quad (2.48)$$

où $N_i^{(0)} = N_a$. La densité électronique se déduit alors des densités des différents ions par la relation $N_e = \sum_{Z=1}^{Z_{\text{max}}} Z N_i^{(Z)}$. En général, pour les intensités atteintes dans nos configurations, on considérera une seule ionisation possible.

Le *moment d'ordre un* est l'équation de conservation du moment. Elle s'écrit, par

intégration de l'équation (2.43) multipliée par \mathbf{p} :

$$m_e \frac{\partial \mathbf{v} N_e(t, \mathbf{r}, \mathbf{p})}{\partial t} + m_e \frac{\partial \mathbf{v} \otimes \mathbf{v} N_e(t, \mathbf{r})}{\partial \mathbf{r}} + e \mathbf{E}(t, \mathbf{r}) N_e + 2e \mathbf{v} \times \mathbf{B}(t, \mathbf{r}) N_e = m_e \mathbf{v} N_e \nu_c \quad (2.49)$$

où \otimes désigne le produit tensoriel. Les termes du second ordre en \mathbf{v} et la force de Lorentz seront négligés car $|\mathbf{v}| \ll c$.

Le moment d'ordre un devient ainsi, en posant $\mathbf{J} = -e N_e \mathbf{v}$:

$$(\partial_t + \nu_c) \mathbf{J} = \frac{e^2}{m_e} N_e \mathbf{E}. \quad (2.50)$$

2.1.4.3 Taux d'ionisation

La figure 2.6 illustre les différents régimes d'ionisation possibles lorsqu'un électron lié est soumis à un champ laser. Le potentiel coulombien de l'atome U_{at} est tracé en une dimension sur la figure 2.6(a), tel que

$$U_{\text{at}}(x) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0|x|}, \quad (2.51)$$

où Ze est la charge du noyau et x une dimension spatiale d'origine le centre du noyau. À ce potentiel vient s'ajouter le potentiel $U_{\text{laser}} = -eE_0x$ dû au champ laser d'amplitude E_0 . Le potentiel total $U = U_{\text{at}} + U_{\text{laser}}$ est tracé sur les figures 2.6(b-d) pour des amplitudes de champ croissantes.

Pour les champs de faible amplitude [figure 2.6(b)], l'électron va pouvoir s'échapper en acquérant successivement différents photons d'énergie $\hbar\omega_0$. Pour des amplitudes plus élevées [figure 2.6(c)], la barrière du potentiel coulombien est suffisamment déformée pour que l'électron puisse la traverser par effet tunnel. À des intensités extrêmes, l'amplitude du champ peut être tellement élevée que la barrière est abaissée sous le potentiel d'ionisation. L'électron peut alors directement être libéré [figure 2.6(d)]. C'est le régime dit d'"over-barrier ionization".

Keldysh a introduit un paramètre permettant de quantifier la possibilité pour un électron de traverser la barrière de potentiel par effet tunnel [49],

$$\gamma_K = \frac{\omega_0 \sqrt{2m_e U_i}}{eE_0}, \quad (2.52)$$

où U_i est l'énergie d'ionisation de l'atome considéré. Aux champs suffisamment forts, $\gamma_K \ll 1$, l'ionisation peut se faire par effet tunnel. Par contre, aux champs faibles, $\gamma_K \gg 1$, l'ionisation est multi-photonique. En termes d'intensité, la limite entre ces deux régimes se situe autour de quelques 10^{13} W/cm².

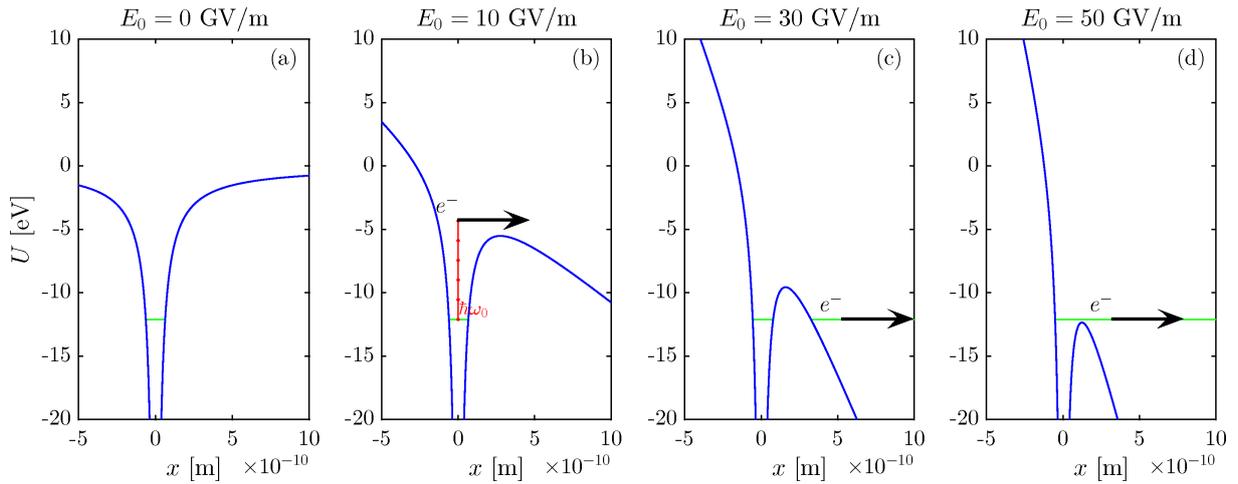


FIGURE 2.6 – Illustration en une dimension du potentiel coulombien du dioxygène (de charge effective $Z = 0.53$, i.e. $Z < 1$ [91]) (a) sans champ extérieur, puis en ajoutant un champ laser d’amplitude (b) 10, (c) 30 et (d) 50 GV/m. (b) L’électron s’échappe par ionisation multi-photonique. (c) Ionisation dans le régime tunnel. (d) Ionisation par abaissement de barrière sous l’énergie d’ionisation. Les niveaux verts correspondent au potentiel de la première ionisation du dioxygène (énergie d’ionisation $U_i = 12.1$ eV).

Dans la suite, nous présentons différents modèles d’ionisation. Le modèle construit par Perelomov, Popov et Terentev’ (que l’on appellera modèle PPT) [76], élaboré en 1966, est le modèle le plus complet car il prend en compte le régime multi-photonique atteint à basse intensité laser, et le régime tunnel à plus haute intensité pour des atomes hydrogénoïdes. Le modèle établi par ADK est la limite du modèle PPT en régime tunnel, généralisé pour des atomes quelconques.

Les taux d’ionisation seront exprimés en unités SI, les unités atomiques étant dénotées par l’indice “ $_{\text{au}}$ ”. Les valeurs de ces unités sont $\nu_{\text{au}} = 4.13 \times 10^{16}$ Hz, $U_{\text{au}} = 4.36 \times 10^{-18}$ J et $E_{\text{au}} = 5.14 \times 10^{11}$ V/m.

2.1.4.3.1 Modèle d’ionisation PPT Le modèle d’ionisation PPT, basé à l’origine sur la théorie de Keldysh, a été construit pour des atomes hydrogénoïdes, c’est-à-dire ne comprenant qu’un seul électron, et pour des champs laser à une couleur, faibles devant les champs atomiques. Du fait de sa validité pour une large gamme d’intensités, ce modèle sera le plus souvent utilisé dans les simulations 3D présentées. Le taux d’ionisation établi par Perelomov, Popov et Terentev’ s’écrit ainsi

$$W_{\text{PPT}}(E_0, \omega_0) = \frac{4\sqrt{2}}{\pi} \nu_{\text{au}} C(n^*, l^*, l, m) A_{\text{PPT}}(E_0, \omega_0) H_{\text{PPT}}(E_0, \omega_0) \quad (2.53)$$

où C est une constante dépendant des nombres quantiques atomiques principal effectif $n^* = Z/\sqrt{2U_i}$, secondaire effectif $l^* = n^* - 1$, secondaire azimuthal l , et magnétique m :

$$C(n^*, l^*, l, m) = \frac{2^{2n^*} (2l + 1)(l + |m|)!}{2^{|m|} |m|! (l - |m|)! n^* \Gamma(n^* + l^* + 1) \Gamma(n^* - l^*)}, \quad (2.54)$$

avec Γ désignant la fonction Gamma d'Euler classique. A_{PPT} est une fonction permettant de caractériser le régime multi-photonique :

$$A_{\text{PPT}}(E_0, \omega_0) = \frac{\gamma_K^2}{1 + \gamma_K^2} \sum_{\kappa=\lfloor v+1 \rfloor}^{\infty} \Phi_m \left(\sqrt{\frac{2\gamma_K(\kappa - v)}{1 + \gamma_K^2}} \right) e^{(\kappa - v) \left(\frac{2\gamma_K}{\sqrt{1 + \gamma_K^2}} - 2 \sinh^{-1} \gamma_K \right)}, \quad (2.55)$$

où v est le nombre réel de photons nécessaires pour que l'électron soit libéré

$$v = \frac{U_i}{\hbar\omega_0} \left(1 + \frac{1}{2\gamma_K^2} \right), \quad (2.56)$$

$\lfloor \rfloor$ désigne la partie entière et

$$\Phi_m(z) = \frac{e^{-z^2}}{|m|!} \int_0^z (z^2 - \xi^2)^{|m|} e^{|\xi|^2} d\xi. \quad (2.57)$$

Enfin, la fonction H_{PPT} permet de décrire le régime d'ionisation par effet tunnel,

$$H_{\text{PPT}}(E_0, \omega_0) = \frac{U_i}{U_{\text{au}}} \left[\frac{2(2U_i U_{\text{au}}^{-1})^{3/2}}{E_0 E_{\text{au}}^{-1} \sqrt{1 + \gamma_K^2}} \right]^{2n^* - 3/2 - |m|} e^{-2v \left(\sinh^{-1} \gamma_K - \frac{\gamma_K \sqrt{1 + \gamma_K^2}}{1 + 2\gamma_K^2} \right)}. \quad (2.58)$$

2.1.4.3.2 Ionisation multi-photonique La limite multi-photonique du taux d'ionisation PPT s'obtient en considérant $\gamma_K \gg 1$. Elle est valable pour des intensités laser faibles $I < 10^{13}$ W/cm². Dans cette limite, la fonction A_{PPT} s'écrit alors

$$A_{\text{MPI}}(E_0, \omega_0) = \sum_{\kappa=\lfloor v+1 \rfloor}^{\infty} \Phi_m \left(\sqrt{2(\kappa - v)} \right) e^{(\kappa - v)(2 - 2 \sinh^{-1} \gamma_K)}, \quad (2.59)$$

et H_{PPT} devient

$$H_{\text{MPI}}(E_0, \omega_0) = \frac{U_i}{U_{\text{au}}} \left[\frac{2(2U_i U_{\text{au}}^{-1})^{3/2}}{E_0 E_{\text{au}}^{-1} \gamma_K} \right]^{2n^* - 3/2 - |m|} e^{-2v(\sinh^{-1} \gamma_K - \frac{1}{2})}. \quad (2.60)$$

Or, $\sinh^{-1} x = \ln(x + \sqrt{1 + x^2}) \simeq \ln(2x) \rightarrow \infty$ quand $x \rightarrow \infty$. Donc, pour que le terme exponentiel dans A_{MPI} soit non nul, il faut que $\kappa - v$ soit proche de zéro. On ne garde donc que le terme de la somme avec $\kappa = \lfloor v + 1 \rfloor$. En posant $\kappa = \lfloor v + 1 \rfloor$, la fonction A_{MPI}

se réduit à

$$A_{\text{MPI}}(E_0, \omega_0) = \Phi_m \left(\sqrt{2(\kappa - \nu)} \right) \frac{e^{2(\kappa - \nu)}}{(2\gamma_K)^{2(\kappa - \nu)}}. \quad (2.61)$$

Dans la limite d'un nombre quantique atomique principal effectif $n^* = 1$ (impliquant $l^* = l = m = 0$), on a alors

$$H_{\text{MPI}}(E_0, \omega_0) = \frac{U_i}{U_{\text{au}}} \left[\frac{2(2U_i U_{\text{au}}^{-1})^{3/2}}{E_0 E_{\text{au}}^{-1} \gamma_K} \right]^{1/2} \frac{e^\nu}{(2\gamma_K)^{2\nu}} \quad (2.62)$$

et $C(n^*, l^*, l, m) = 2$. Le taux d'ionisation en régime multi-photonique s'écrit finalement

$$W_{\text{MPI}}(E_0) = \sigma_{\text{MPI}} E_0^{2\kappa}, \quad (2.63)$$

où

$$\sigma_{\text{MPI}} = \frac{16\sqrt{2}}{\pi} 2^{-3\kappa} \frac{\nu_{\text{au}}^{3\kappa} \hbar^{\kappa-1/2}}{E_{\text{au}}^{2\kappa}} \frac{U_i^{3/2-\kappa}}{\omega_0^{1/2+2\kappa}} e^{2\kappa-\nu} \Phi_0 \left(\sqrt{2\kappa - \nu} \right). \quad (2.64)$$

2.1.4.3.3 Ionisation par effet tunnel Un premier taux d'ionisation dans la limite tunnel a été établi par Landau [57] pour des atomes hydrogénoïdes. Ce taux dépend uniquement de l'amplitude du champ E_0 , mais pas de la longueur d'onde laser. Il s'écrit

$$W_{\text{QST}}(E_0) = \frac{4(U_i U_H^{-1})^{5/2} \nu_{\text{au}}}{|E_0 E_{\text{au}}^{-1}|} \exp \left[-\frac{2(U_i U_H^{-1})^{3/2}}{3|E_0 E_{\text{au}}^{-1}|} \right], \quad (2.65)$$

où $U_H = 13.6$ eV est l'énergie d'ionisation de l'hydrogène. L'indice QST signifie "quasi-static tunnelling". Du fait de sa simplicité, on utilisera le plus souvent le taux QST dans le modèle LC en substituant à E_0 un champ oscillant à haute fréquence.

2.1.4.3.4 Modèle d'ionisation ADK Le modèle d'ionisation établi par Ammosov, Delone et Kraïnov [8] en 1986 est la limite du modèle PPT en régime tunnel. Dans la formulation PPT, il convient donc de passer à la limite $\gamma_K \rightarrow 0$, conduisant à $A_{\text{PPT}}(E_0, \omega_0) \xrightarrow{\gamma_K \rightarrow 0} \sqrt{3\pi}/4$ et

$$H_{\text{ADK}}(E_0, \omega_0) = \frac{U_i}{U_{\text{au}}} \left[\frac{2(2U_i U_{\text{au}}^{-1})^{3/2}}{E_0 E_{\text{au}}^{-1}} \right]^{2n^* - 3/2 - |m|} e^{-\frac{2}{3} \frac{(2U_i U_{\text{au}}^{-1})^{3/2}}{E_0 E_{\text{au}}^{-1}}}. \quad (2.66)$$

Le taux d'ionisation ADK s'écrit finalement

$$W_{\text{ADK}}(E_0, \omega_0) = \sqrt{\frac{6}{\pi}} \nu_{\text{au}} C(n^*, l^*, l, m) \frac{U_i}{U_{\text{au}}} \left[\frac{2(2U_i U_{\text{au}}^{-1})^{3/2}}{E_0 E_{\text{au}}^{-1}} \right]^{2n^* - 3/2 - |m|} e^{-\frac{2}{3} \frac{(2U_i U_{\text{au}}^{-1})^{3/2}}{E_0 E_{\text{au}}^{-1}}}. \quad (2.67)$$

Cette formulation a ensuite été élargie pour des degrés d'ionisation (états de charge) quelconques Z .

2.1.4.3.5 Ionisation par avalanche Un terme d'ionisation par avalanche peut aussi être pris en compte pour des niveaux de densité élevés et/ou des durées d'impulsion suffisamment longues. Ce terme provient des collisions entre les électrons libres et les atomes neutres par Bremsstrahlung inverse. La section efficace de ces collisions s'écrit [18, 65, 50]

$$\sigma(\omega) = \frac{\mu_0 c e^2 \nu_c}{m_e (\nu_c^2 + \omega^2)}, \quad (2.68)$$

en fonction de la fréquence de collisions ν_c . L'ionisation par avalanche est prise en compte dans les solides où les temps de collisions sont proches de la femtoseconde, et elle est en général négligée dans les gaz, sauf pour les grandes longueurs d'onde, la section efficace σ variant en λ_0^2 . La résolution de l'équation (2.50) donne ainsi dans le domaine de Fourier

$$\hat{J} = \frac{e^2}{m_e (\nu_c^2 + \omega^2)} (\nu_c + i\omega) \widehat{N_e E}. \quad (2.69)$$

Les termes de courant s'écrivent alors dans l'équation de propagation (2.10)

$$\mu_0 \frac{\partial J}{\partial t} \xrightarrow{\text{TF}} \left(-\frac{i\omega\sigma}{c} + \frac{\omega^2}{c^2 N_c (1 + \frac{\nu_c^2}{\omega^2})} \right) \widehat{N_e E}, \quad (2.70)$$

où la densité critique plasma est

$$N_c = \frac{\omega_0^2 m_e \epsilon_0}{e^2}, \quad (2.71)$$

qui correspond à la valeur de la densité électronique pour laquelle le plasma devient opaque à l'onde laser. L'équation d'évolution de la densité électronique prenant en compte l'ionisation par avalanche se complète ainsi [65, 50] :

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = W(E)(N_a - N_e) + \frac{\sigma N_e I}{U_i}. \quad (2.72)$$

Ce terme supplémentaire d'ionisation par avalanche ne sera en général pas pris en compte dans nos simulations, excepté aux grandes longueurs d'onde. Dans le même esprit, nous ignorons en général les termes de recombinaison électrons-ions qui se développent sur des échelles nanosecondes [99].

La figure 2.7 compare les taux d'ionisation PPT, QST et ADK pour les molécules de dioxygène et de diazote. Dans le régime tunnel, les taux QST surestiment les taux PPT.

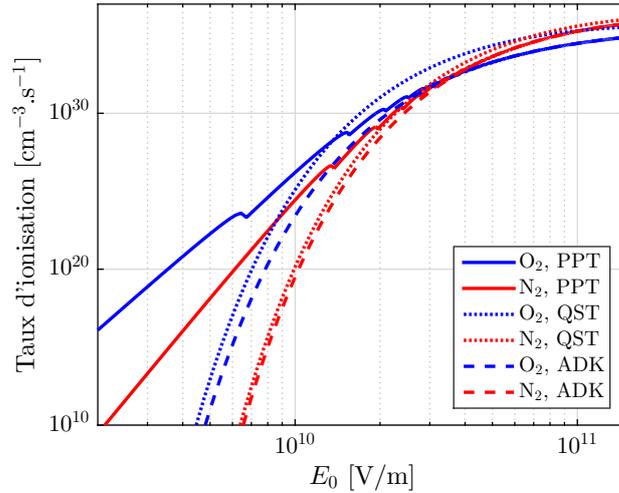


FIGURE 2.7 – Taux d’ionisation PPT, QST et ADK à 800 nm en fonction de l’amplitude du champ laser pour le dioxygène (20%) et le diazote (80%) de l’air à 1 bar.

Les taux ADK convergent bien vers les taux PPT aux fortes valeurs du champ E_0 .

Le champ oscillant rapidement, on peut remplacer $E_0 \rightarrow E(t)$ dans les taux d’ionisation pour obtenir les taux variant le long de l’impulsion laser. Les taux moyennés sur une période du champ laser fournissent alors des taux instantannés [40, 71, 80].

Ces taux ont été établis pour un champ monochromatique. Cependant, on considèrera ces taux toujours valides si l’on combine plusieurs couleurs, tant que les amplitudes de celles-ci sont suffisamment faibles par rapport au fondamental.

D’autres phénomènes peuvent aussi augmenter l’ionisation, comme l’interaction coulombienne à plusieurs corps faisant intervenir les électrons excités par le laser. Celle-ci sera abordée en dernière partie de ce mémoire (voir chapitre 4).

2.1.4.4 Courant de pertes

Une partie de l’énergie laser étant utilisée pour générer le plasma au cours de la propagation laser, les pertes correspondantes doivent être prises en compte.

Par conservation de l’énergie et pour des atomes hydrogénoïdes, nous utilisons le théorème de Poynting pour décrire l’évolution de la densité d’énergie \mathcal{W} gouvernée par

$$\frac{d\mathcal{W}}{dt} = \mathbf{J}_{\text{loss}} \cdot \mathbf{E} = U_i \frac{\partial N_e}{\partial t}, \quad (2.73)$$

où \mathbf{J}_{loss} est le courant de pertes par photo-ionisation correspondant à la quantité d’électrons extraits avec l’énergie U_i par unité de volume et de temps. Le courant de pertes

s'écrit donc, pour chaque espèce d'atome de densité initiale N_a :

$$\mathbf{J}_{\text{loss}} = \frac{\mathbf{E}}{|\mathbf{E}|^2} U_i W(\mathbf{E})(N_a - N_e). \quad (2.74)$$

Ce courant de pertes est introduit de manière auto-consistante dans l'équation d'onde (2.10) et donc dans les modèles numériques dérivés.

2.1.4.5 Description du modèle LC, calculs analytiques

Pour avoir une première évaluation du rayonnement THz issu de la photo-ionisation, nous utilisons le modèle LC issu des équations des moments d'ordre 0 et 1 de l'équation de Vlasov pour les électrons. Ce modèle, qui est zéro-dimensionnel (0D) puisqu'il ne prend en compte aucune variable d'espace, permet, malgré sa simplicité, d'expliquer certains comportements de base.

Kim *et al.* [51] ont montré à ce propos que la génération d'un courant d'électrons libres par la photo-ionisation est le processus dominant la création d'ondes THz par des impulsions laser à deux couleurs. Ce courant électronique résultant de la photo-ionisation est appelé *photocourant*. L'hypothèse principale du modèle LC est que le champ secondaire créé par les électrons oscillant dans le champ laser s'exprime sous la forme [45, 14]

$$E_J = g \frac{\partial J}{\partial t}, \quad (2.75)$$

où g est une constante géométrique, que l'on définit comme un facteur d'homogénéité entre le champ et la dérivée du courant. L'idée est de conserver tous les paramètres liés à la propagation constants. Le champ secondaire E_J est ensuite filtré pour les fréquences THz en deçà d'une fréquence de coupure, $\nu \leq \nu_{\text{THz}}$, par transformée de Fourier inverse.

Pour un petit volume de plasma ΔV , et un observateur placé à la distance $|\mathbf{r}|$ du plasma, la constante g est donnée, d'après la théorie de Jefimenko [45], par

$$|g| = \frac{\Delta V}{4\pi\epsilon_0 c^2 |\mathbf{r}|}. \quad (2.76)$$

Cette relation de proportionnalité interdit cependant d'obtenir des spectres ou des champs rayonnés évaluables quantitativement. C'est pourquoi nous exploiterons cette limitation et redéfinirons la constante g pour évaluer de façon pratique des taux de conversion relatifs. En supposant que le volume du plasma et la distance d'observation sont les mêmes pour les configurations comparées, nous poserons g comme étant la constante de normalisation

$$g = \frac{m_e}{e^2 N_a}, \quad (2.77)$$

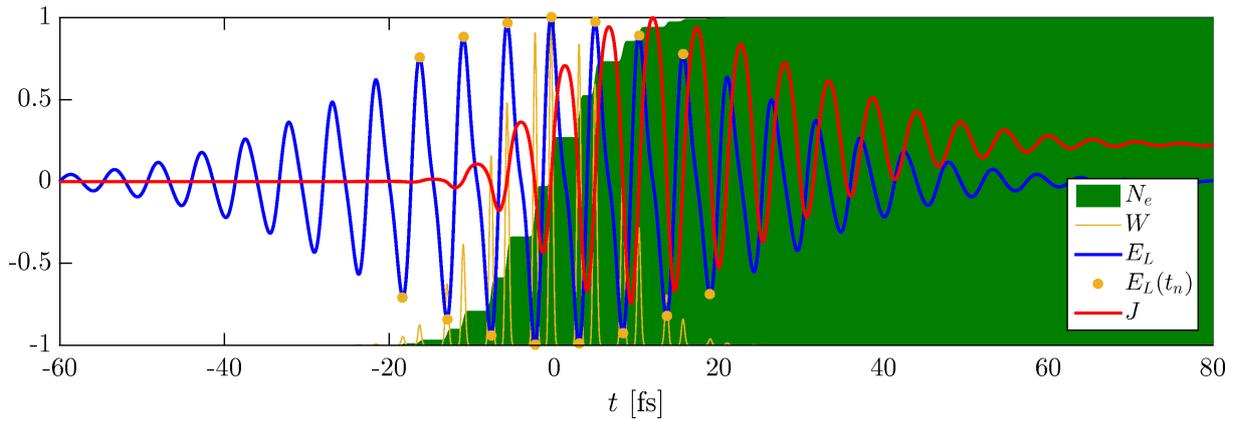


FIGURE 2.8 – Illustration du modèle LC. Le champ laser (courbe bleue) génère à ses extrema (points jaunes) des évènements d'ionisation par le taux d'ionisation (courbe jaune), faisant croître la densité électronique (aire verte) par sauts successifs. Les électrons ainsi libérés oscillent dans le champ laser, créant un courant électronique (courbe rouge) qui présente une composante basse-fréquence due à l'asymétrie du champ laser.

de sorte que la connaissance de la dérivée du courant électronique permettra de déduire à une constante près le champ THz émis localement. Celui-ci restera exprimé en unités arbitraires, puisque le champ secondaire rayonné et son taux de conversion laser-THz dépendent intrinsèquement de la constante choisie. Cependant, sa variation d'une configuration laser donnée à une autre pourra être aisément évaluée.

Le principe du modèle LC est le suivant. On considère un champ laser $E_L(t)$ [équation (2.1)] composé d'un certain nombre de couleurs, d'amplitude comparable à celle pouvant être atteinte dans un plasma formé par laser (typiquement 20-40 GV/m) et de durée de quelques dizaines de femtosecondes. A partir du champ $E_L(t)$, nous calculons la densité électronique N_e induite grâce à un taux d'ionisation $W(E_L)$. La densité électronique est la solution de l'équation (2.46), qui s'écrit

$$N_e(t) = N_a(1 - e^{-\int_{-\infty}^t W(t') dt'}). \quad (2.78)$$

Le taux d'ionisation W ayant la forme d'un peigne de dirac en temps où les valeurs non nulles sont localisées autour des maxima du champ (voir figure 2.8), la densité électronique est une fonction croissante par pas. On en déduit le courant électronique J , solution de l'équation (2.50) :

$$J(t) = \frac{e^2}{m_e} e^{-\nu_c t} \int_{-\infty}^t N_e(t') E_L(t') e^{\nu_c t'} dt'. \quad (2.79)$$

La figure 2.8 illustre le principe du modèle LC. Le champ laser E_L (courbe bleue) ionise le gaz autour de ses extrema les plus élevés (points jaunes), ce qui fait augmenter la densité électronique N_e (aire verte) par sauts successifs. Les électrons ainsi libérés oscillent

dans le champ laser, créant le courant J (courbe rouge). Le champ THz est proportionnel à la dérivée du courant J filtrée dans un domaine en fréquence THz.

En notant t_n les instants d'ionisation (voir leur calcul en Annexe B), correspondant aux extrema du champ laser, nous pouvons écrire la densité électronique sous la forme

$$N_e(t) \simeq \sum_n \delta N_n H_n(t - t_n), \quad (2.80)$$

où δN_n désigne l'amplitude des sauts successifs et H_n est une fonction de croissance par pas, $H_n(t) = [1 + \text{erf}(t/\tilde{\tau}_n)]/2$, où la durée du n ième évènement d'ionisation est

$$\tilde{\tau}_n = \left[\frac{3(U_H/U_i)^{3/2} |E(t_n)|^2}{|\partial_t^2 E(t_n)| E_a} \right]^{1/2}. \quad (2.81)$$

Cette durée d'ionisation est trouvée en faisant un développement de Taylor du champ laser autour de t_n :

$$|E(t)| \simeq |E(t_n)| - \frac{1}{2} |\partial_t^2 E(t_n)| (t - t_n)^2. \quad (2.82)$$

Le taux d'ionisation se décompose alors suivant les évènements d'ionisation

$$W(t) = \sum_n W_n(t) \simeq \sum_n W_n [|E(t_n)|] e^{-[(t-t_n)/\tilde{\tau}_n]^2}. \quad (2.83)$$

La fonction $H_n(t)$ tend vers la fonction de Heaviside si la durée $\tilde{\tau}_n$ de l'évènement d'ionisation est très courte, généralement de l'ordre de 0.1 fs. En intégrant par parties l'équation (2.79), et en posant

$$v_f(t) = -\frac{e}{m_e} e^{-\nu_c t} \int_{-\infty}^t E(t') e^{\nu_c t'} dt' \quad (2.84)$$

la vitesse des électrons libres créés en $t = -\infty$ et accélérés au temps t par le champ laser, nous obtenons

$$J(t) = -e N_e(t) v_f(t) + e \int_{-\infty}^t \frac{dN_e}{dt}(t') v_f(t') e^{\nu_c(t'-t)} dt'. \quad (2.85)$$

Le courant se décompose donc en deux contributions, $J = J_A + J_B$, admettant une partie oscillant principalement aux fréquences optiques

$$J_A(t) = -e N_e(t) v_f(t), \quad (2.86)$$

et une partie contenant les basses-fréquences

$$J_B(t) = e \int_{-\infty}^t \frac{dN_e}{dt}(t') v_f(t') e^{\nu_c(t'-t)} dt'. \quad (2.87)$$

Les courants J_A et J_B peuvent être approximés avec l'équation (2.80) en

$$J_A(t) \simeq -e \sum_n \delta N_n H_n(t - t_n) v_f(t) \quad (2.88)$$

et

$$J_B(t) \simeq e \sum_n \delta N_n v_f(t_n) e^{\nu_c(t_n-t)}. \quad (2.89)$$

La dérivée de ce dernier courant s'écrit alors, en dérivant l'équation (2.87) et en utilisant l'équation (2.80) :

$$\frac{\partial J_B}{\partial t}(t) \simeq e \sum_n \delta N_n \delta_n(t - t_n) v_f(t) - \nu_c e \int_{-\infty}^t \sum_n \delta N_n \delta_n(t' - t_n) v_f(t') e^{\nu_c(t'-t)} dt', \quad (2.90)$$

où δ_n est la dérivée de H_n . Le champ THz est donc principalement proportionnel à cette composante filtrée en basse-fréquence.

2.1.4.6 Dépendances théoriques avec les paramètres laser

Dans ce paragraphe, nous étudions à l'aide du modèle LC l'influence des principaux paramètres laser sur le rendement THz, simplement défini par

$$\eta_{\text{THz}} = \frac{\int_0^{\omega_{\text{THz}}} |\widehat{E}_J|^2 d\omega}{\int_0^{\infty} |\widehat{E}_L|^2 d\omega}, \quad (2.91)$$

où $\omega_{\text{THz}} = 2\pi\nu_{\text{THz}}$ est la fréquence de coupure dans le domaine THz.

Le champ laser E_L utilisé comporte deux couleurs et est défini sur l'axe de propagation selon l'équation (2.1). Dans ce qui suit, nous caractérisons l'efficacité de conversion laser-THz en fonction des divers paramètres laser : rapport r en énergie entre l'harmonique deux et le fondamental, leur phase relative ϕ , durée d'impulsion, etc. Nos impulsions laser sont gaussiennes, comme présentés dans l'équation (2.1) avec deux couleurs, le fondamental ayant pour longueur d'onde $\lambda_0 = 800$ nm. Les enveloppes gaussiennes en espace sont ignorées ($w_{0,n} \rightarrow \infty$). Sauf mention contraire, les deux couleurs ont une même durée d'impulsion $\tau_0 = 60$ fs et une fluence totale $U_L = 3$ J/cm², avec 10% dans la deuxième couleur, ce qui correspond à une impulsion d'amplitude de champ proche de 30 GV/m

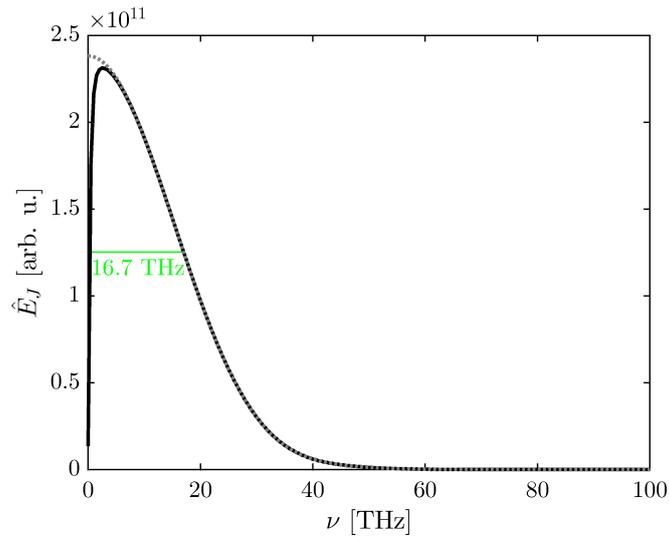


FIGURE 2.9 – (courbe noire solide) Spectre THz caractéristique obtenu avec le modèle LC. Sa largeur est inversement proportionnelle à la durée d’impulsion de 60 fs correspondant à 16.7 THz. La déplétion aux plus basses fréquences est liée aux collisions entre électrons et atomes avec $\nu_c = 2.86$ THz. (courbe grise pointillée) Spectre THz avec les mêmes caractéristiques mais sans collision ($\nu_c = 0$). Le spectre n’est pas déplété aux basses fréquences.

conduisant à une intensité de 140 TW/cm². Pour l’ionisation, on ne considère que la première du dioxygène ($U_i = 12.06$ eV) avec un taux d’ionisation QST. Le taux de collision ν_c est de 2.86 THz.

Les spectres THz obtenus avec le modèle LC sont de la forme montrée en figure 2.9. Les spectres typiques sont piqués à basses fréquences < 3 THz. La chute autour de $\nu = 0$ est due à la présence des collisions électrons-neutres, entraînant une relaxation des courants. La figure 2.9 compare des spectres THz avec et sans collisions électrons-neutres. Les collisions induisent une décroissance lente du courant électronique aux temps longs, ce qui se traduit dans le domaine fréquentiel par une chute du spectre en $\nu = 0$. En revanche, si l’on néglige les collisions, le spectre THz reste piqué en $\nu = 0$ (voir courbe grise pointillée).

2.1.4.6.1 Influence de r La figure 2.10(a) présente l’évolution du rendement THz en fonction du rapport r de second harmonique introduit. Les différentes valeurs de r sont introduites dans le champ laser, puis le rendement THz est calculé avec l’équation (2.91). Le ratio de deuxième couleur optimal pour l’efficacité THz est de $r = 0.3$. Augmenter ce rapport permet d’accroître l’énergie THz, tant que $r < 0.3$, ce qui est généralement le cas expérimentalement, le taux de conversion vers la deuxième couleur étant usuellement limité à 10-20 % en énergie en utilisant un cristal BBO. La décroissance du rendement

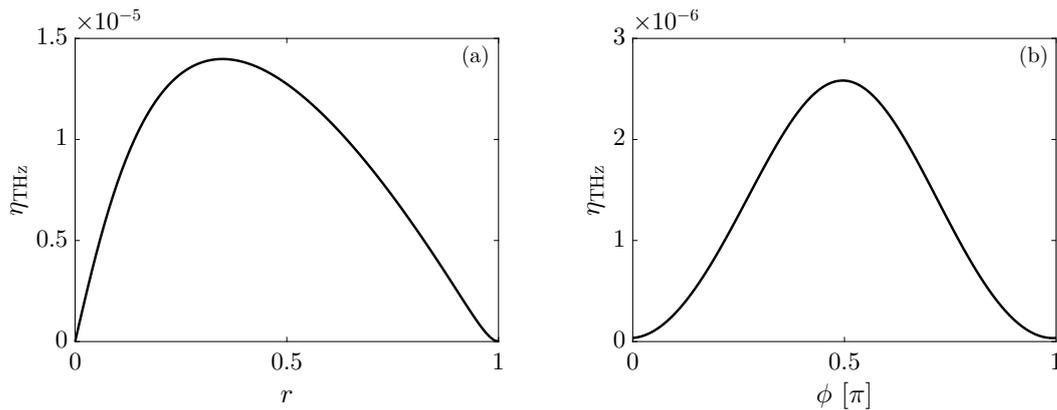


FIGURE 2.10 – (a) Rendement THz [équation (2.91)] en fonction du ratio de deuxième harmonique r , obtenu avec le modèle LC, pour un champ initial à deux couleurs de longueur d’onde fondamentale $\lambda_0 = 800$ nm, de durée $\tau_0 = 60$ fs et d’énergie (fluence en 0D) $U_L = 3$ J/cm². (b) Rendement THz versus la phase relative ϕ entre les deux couleurs du champ laser exprimée en π -radians.

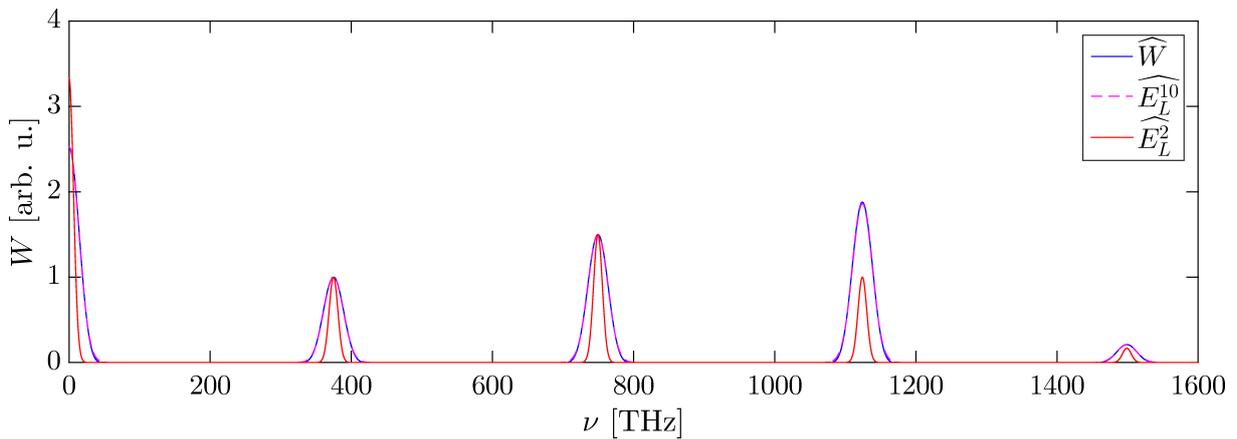


FIGURE 2.11 – Comparaison de la transformée de Fourier du taux d’ionisation avec celles de E_L^{10} et E_L^2 .

THz pour des ratios plus élevés est dû à une ionisation insuffisante par le fondamental.

On peut retrouver analytiquement ce résultat, en supposant que les instants d’ionisation ont lieu aux extrema du champ laser E_L , soit aux maxima de

$$E_L^2 = \frac{E_{0,1}^2}{2} [\cos(2\omega_0 t + 2\phi_1) + 1] + \frac{E_{0,2}^2}{2} [\cos(4\omega_0 t + 2\phi_2) + 1] + E_{0,1} E_{0,2} [\cos(3\omega_0 t + \phi_1 + \phi_2) + \cos(\omega_0 t + \phi_1 - \phi_2)]. \quad (2.92)$$

En effet, comme le montre la figure 2.11, le taux d’ionisation peut être approximé par une puissance entière de E_L . Pour des raisons de simplification, nous ne considérerons que la puissance deux du champ, dont les deux premiers harmoniques (ω_0 et $2\omega_0$) sont proches

de leur taux d'ionisation correspondant. En effet, seuls les deux premiers harmoniques de N_e , et donc de W , peuvent générer des basses-fréquences. Pour une réponse supposée perturbative de $W(t)$, la densité électronique peut donc s'écrire

$$N_e(t) \propto \int_{-\infty}^t E_L^2(t') dt' = \frac{E_{0,1}^2}{2} \left[\frac{1}{2\omega_0} \sin(2\omega_0 t + 2\phi_1) + t \right] + \frac{E_{0,2}^2}{2} \left[\frac{1}{4\omega_0} \sin(4\omega_0 t + 2\phi_2) + t \right] + E_{0,1} E_{0,2} \left[\frac{1}{3\omega_0} \sin(3\omega_0 t + \phi_1 + \phi_2) + \frac{1}{\omega_0} \sin(\omega_0 t + \phi_2 - \phi_1) \right], \quad (2.93)$$

où l'influence des enveloppes a été négligée. En ignorant en outre les collisions, le champ rayonné est simplement proportionnel à $\partial_t J \propto N_e E_L$. En ne considérant que les termes basse-fréquence ($\omega = 0$) dans le produit $N_e E_L$, c'est-à-dire en multipliant le premier et le dernier terme de l'équation (2.93) avec respectivement le second et le premier harmonique, il vient la dépendance

$$E_{\text{THz}} \propto \frac{3E_{0,1}^2 E_{0,2}}{8\omega_0} \sin(\phi_2 - 2\phi_1), \quad (2.94)$$

soit $E_{\text{THz}} \propto (1 - r)\sqrt{r} \sin \phi$, qui a un maximum en $r = 1/3$.

2.1.4.6.2 Influence de ϕ Si le champ laser comporte deux couleurs séparées par une phase $\phi = \phi_2$ ($\phi_1 = 0$), leur phase relative optimale pour la génération de rayonnement THz par photocourants est $\phi = \pi/2$, comme montré dans la figure 2.10(b). Celle-ci correspond à une impulsion asymétrique en temps. L'asymétrie peut être augmentée en ajoutant d'autres couleurs. La valeur de cette phase, comme décrit dans le paragraphe précédent, impacte directement le champ THz émis puisque $E_{\text{THz}} \propto \sin \phi$. Le rendement varie donc fortement avec la phase : il est en effet maximum pour $\phi = \pi/2$ et chute pour $\phi = 0$. La phase relative variant notablement au cours de la propagation laser, dû à la dispersion dans l'air et par interaction avec le plasma, il est nécessaire de choisir une phase initiale prenant en compte ces variations, de telle sorte que la phase optimale soit atteinte au niveau de la conversion de fréquence dans le plasma.

2.1.4.6.3 Influence de τ_0 La durée de l'impulsion laser est directement liée à la largeur du spectre du champ laser autour du fondamental et du second harmonique. Augmenter la durée de l'impulsion fait diminuer la largeur spectrale des harmoniques, qui, combinés avec les harmoniques respectifs de la densité électronique, permettent de générer le spectre THz, comme nous le verrons plus en détail dans le prochain chapitre. La largeur du spectre THz est ainsi inversement proportionnelle à la durée de l'impulsion laser, plus précisément à la région de l'impulsion où prennent place les événements d'ionisation

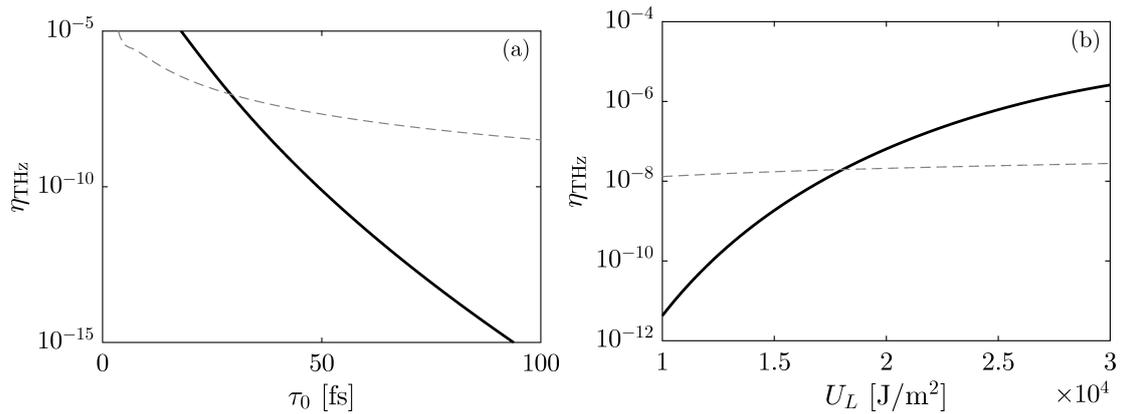


FIGURE 2.12 – Rendement THz avec la normalisation de l'équation (2.77) (courbes noires), ou avec une normalisation en fonction du niveau d'ionisation [courbes grises tiretées, $N_a \rightarrow \max_t(N_e)$ dans l'équation (2.77)]. (a) Rendement THz en fonction de la durée de l'impulsion laser pour une énergie $U_L = 1 \text{ J/cm}^2$. La durée de la deuxième couleur est considérée égale à celle du fondamental. (b) Rendement THz en fonction de l'énergie laser initiale pour une durée d'impulsion $\tau_0 = 60 \text{ fs}$.

comme indiqué en figure 2.9. À énergie constante, c'est-à-dire à intensité pic inversement proportionnelle à la durée d'impulsion, augmenter la durée de l'impulsion laser diminue donc le rendement THz comme montré sur la figure 2.12(a). Temporellement, avoir une impulsion courte permet d'augmenter l'asymétrie du champ et ainsi accroître le champ THz créé.

2.1.4.6.4 Influence de U_L Dans le modèle LC ignorant la dynamique transverse du faisceau, augmenter l'énergie laser revient, à durée d'impulsion fixée, à accroître l'intensité laser. Augmenter celle-ci permet de faire croître linéairement le rendement THz tant que la première ionisation n'est pas saturée, c'est-à-dire tant que $N_e < N_a$. Ensuite, les ionisations des couches électroniques successives doivent être prises en compte, ce qui peut contribuer davantage au rendement THz. La figure 2.12(b) montre en effet l'augmentation de 6 ordres de grandeurs lorsque l'énergie laser (fluence en 0D) est multipliée par trois pour une ionisation QST du dioxygène non saturée. Cet effet est moins marqué lorsque la propagation en 3D est prise en compte. Par comparaison, si la normalisation au travers de la constante g est modifiée de sorte à considérer les variations du niveau d'ionisation, les rendements THz restent du même ordre de grandeur quand l'énergie laser est triplée [voir figure 2.12(b)].

2.1.4.6.5 Influence de ν_{THz} Augmenter la fréquence de filtrage augmente logiquement l'énergie THz. Numériquement, le cut-off est généralement choisi de façon à ne pas prendre en compte une partie de l'élargissement spectral de l'onde laser pompe et ce,

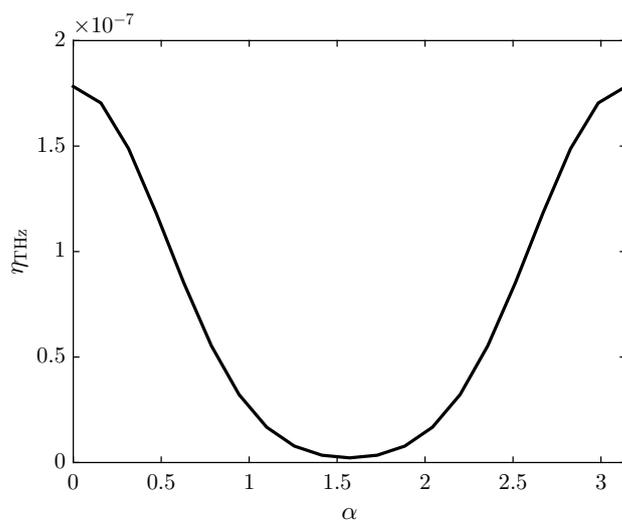


FIGURE 2.13 – Rendement THz en fonction de l'angle α entre les directions des polarisations des deux couleurs du champ laser.

afin d'isoler les contributions purement optiques de celles produites par conversion de fréquences. Expérimentalement, les mesures avec un détecteur pyroélectrique sont limitées à 12 THz, et peuvent atteindre 60 THz avec la technique ABCD.

Le filtre numérique est très souvent une simple fonction porte. Il peut-être amélioré en prenant un filtre causal, par exemple un filtre de Butterworth [24], qui a pour fonction de transfert dans le domaine de Laplace ($p = i\omega$) : $H(p) = H_0[\prod_{k=1}^n (p - p_k)/\omega_c]^{-1}$, où ω_c est la fréquence de coupure, n est l'ordre du filtre, H_0 est le gain, et $p_k = \omega_c e^{i(2k+n-1)\pi/2n}$. Ce type de filtre permet d'atténuer dans le champ THz les oscillations non physiques apparaissant à l'avant de l'impulsion. Le reste du champ THz, et notamment sa valeur maximale, reste inchangé en utilisant un tel filtre, physiquement plus réaliste.

2.1.4.6.6 Influence de la polarisation Dans ce paragraphe, nous examinons le cas de deux couleurs du champ laser polarisées linéairement suivant des directions différentes. La première couleur est toujours polarisée suivant l'axe x , mais la deuxième couleur est polarisée dans le plan transverse selon un angle α défini par le vecteur unitaire $\mathbf{e}_\alpha = \cos \alpha \mathbf{e}_x + \sin \alpha \mathbf{e}_y$. Le taux d'ionisation s'applique alors à

$$|\mathbf{E}_L| = \sqrt{[E_1(t) + \cos \alpha E_2(t)]^2 + [\sin \alpha E_2(t)]^2} \quad (2.95)$$

$$= \sqrt{E_1^2(t) + 2 \cos \alpha E_1(t) E_2(t) + E_2^2(t)}, \quad (2.96)$$

où $E_n(t) = E_{0,n} \cos(n\omega_0 t + \phi_n)$. Lorsque les deux couleurs sont colinéaires, la production de rayonnement THz est maximale. Elle diminue ensuite avec l'angle α formé par les

polarisations des deux couleurs, pour devenir minimale en $\alpha = \pi/2$. Cela est dû au fait que dans la densité électronique, seul le terme $2 \cos \alpha E_1(t)E_2(t)$ permet de générer une composante oscillant à ω_0 par mélange de fréquences (ainsi qu'une autre à $3\omega_0$), les deux autres termes $E_1^2(t)$ et $E_2^2(t)$ générant des composantes oscillant à 0, $2\omega_0$ et $4\omega_0$, de sorte que la composante basse-fréquence du produit $N_e \mathbf{E}_L$ est donnée par

$$\mathbf{E}_{\text{THz}} \propto \frac{3E_{0,1}^2 E_{0,2}}{8\omega_0} \cos \alpha \sin(\phi_2 - 2\phi_1) \mathbf{e}_x - \frac{E_{0,1}^2 E_{0,2}}{8\omega_0} \sin \alpha \sin(\phi_2 - 2\phi_1) \mathbf{e}_y. \quad (2.97)$$

Lorsque α est non nul, la norme de \mathbf{E}_{THz} diminue donc en raison du facteur $\cos \alpha$ appliqué au terme dominant suivant \mathbf{e}_x , ce qui est confirmé numériquement avec le modèle LC (voir figure 2.13). Il y a un facteur 9 en énergie THz entre $\alpha = 0$ et $\alpha = \pi/2$, ce qui est en accord avec, e.g., les figures 6 et 12 de la référence [93].

2.1.4.7 Puissances rayonnées en champ lointain

Afin de modéliser les puissances THz rayonnées en champ lointain, nous utilisons un modèle d'émission simple. On suppose que le courant THz, $\mathbf{J}(\mathbf{r}', \omega) = \mathbf{J}_0(\omega)$, existe et est uniforme dans un cylindre fin de plasma de volume V , de longueur L suivant z et de section \mathcal{A} . Nous calculons alors la puissance rayonnée par une telle répartition de courants [45, 94] selon l'expression standard dérivée du vecteur de Poynting de flux $\mathbf{S} = \frac{c}{\mu_0} |\nabla \times \mathbf{A}|^2 \frac{\mathbf{r}}{|\mathbf{r}|}$, de sorte que

$$P_{\text{far}} = |\mathbf{S}| = \frac{c}{\mu_0} |\mathbf{B}_{\text{far}}|^2, \quad (2.98)$$

où le champ lointain rayonné par le cylindre est donné par le champ magnétique [44] :

$$\mathbf{B}_{\text{far}}(\mathbf{r}, \omega) \simeq -i\mu_0 \frac{\omega}{c} \frac{\mathbf{r}}{|\mathbf{r}|} \int_V \mathbf{J}(\mathbf{r}', \omega) \frac{e^{i\frac{\omega}{c}|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{4\pi|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} d\mathbf{r}'^3 \quad (2.99)$$

avec V le volume du cylindre de plasma et \mathbf{J} le courant qui y circule. Le champ lointain rayonné hors du plasma est considéré comme se déplaçant dans le vide, ce qui donne $|\mathbf{E}_{\text{far}}| \simeq c|\mathbf{B}_{\text{far}}|$.

On remarque que pour un volume infinitésimal ΔV , on retrouve

$$\mathbf{E}_{\text{far}}(\mathbf{r}, \omega) \simeq i\omega g \mathbf{J}_0(\omega) \quad (2.100)$$

où g est la constante géométrique définie par

$$g = \Delta V \frac{e^{i\frac{\omega}{c}|\mathbf{r}|}}{4\pi\epsilon_0 c^2 |\mathbf{r}|} \quad (2.101)$$

et $\mathbf{J}_0(\omega)$ est le courant moyen dans ΔV .

En supposant que $|\mathbf{r}'| \ll |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ dans l'équation (2.99) et en sortant les termes $\mathbf{J}(\mathbf{r}', \omega)$ et $1/|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ de l'intégrale, qui est faite suivant les trois directions x , y et z , l'expression de P_{far} se décompose facilement sous la forme,

$$P_{\text{far}} \simeq \left| \frac{\mathbf{r} \times \mathbf{J}_0(\omega)}{|\mathbf{r}|} \right|^2 \left| \int_{-L/2}^{L/2} e^{i\frac{\omega}{c}z'(1-\frac{z}{|\mathbf{r}|})} dz' \right|^2 \frac{\mu_0 \omega^2}{16\pi^2 c |\mathbf{r}|^2} \left| \int_{\mathcal{A}} e^{-i\frac{\omega}{c}\frac{xx'+yy'}{|\mathbf{r}|}} dx' dy' \right|^2. \quad (2.102)$$

La puissance rayonnée en champ lointain dépend donc de trois termes : un terme directement lié au courant et à son orientation, et deux termes géométriques liés à la longueur et à la section transverse du plasma [94].

2.1.5 Comparaison photocourants/effet Kerr sur les spectres et champs THz émis

Comme nous l'avons vu dans les sections précédentes, l'effet Kerr et les photocourants peuvent conduire à la génération de rayonnement THz. En revanche, des estimations analytiques montrent que ces deux mécanismes ne peuvent être optimisés simultanément. Par exemple, la phase relative entre les deux couleurs permettant un rendement THz maximum grâce aux photocourants est de $\pi/2$, alors qu'elle vaut 0 si le champ THz est produit par effet Kerr. Il convient alors de comprendre le couplage entre ces deux mécanismes et d'identifier celui qui produit le plus de rayonnement THz, afin de l'optimiser.

L'effet Kerr provoque l'auto-focalisation du faisceau laser, qui est saturée par défocalisation plasma quand le champ devient suffisamment élevé pour ioniser les atomes de l'air. Si on ne considère que l'effet Kerr et la diffraction, l'équation de propagation (2.10) appliquée à l'enveloppe lentement variable du champ $E \propto U e^{i(k_0 z - \omega_0 t)}$ devient sous hypothèse paraxiale $|\partial_z U| \ll |k_0 U|$, $|\partial_t U| \ll \omega_0 |U|$:

$$\frac{\partial U}{\partial z} = \frac{i}{2k_0} \nabla^2 U + i \frac{\omega_0}{c} n_2 |U|^2 U. \quad (2.103)$$

En régime stationnaire, on peut alors définir une puissance à partir de laquelle l'auto-focalisation est possible. Pour des faisceaux gaussiens, cette puissance critique s'exprime sous la forme [6, 18]

$$P_{\text{cr}} = \frac{\lambda_0^2}{2\pi n_0 n_2} \quad (2.104)$$

et elle est calculée à partir de l'équilibre entre l'effet Kerr et la diffraction. Elle se réduit toutefois à la valeur

$$P'_{\text{cr}} = \frac{3.72 \lambda_0^2}{8\pi n_0 n_2} \quad (2.105)$$

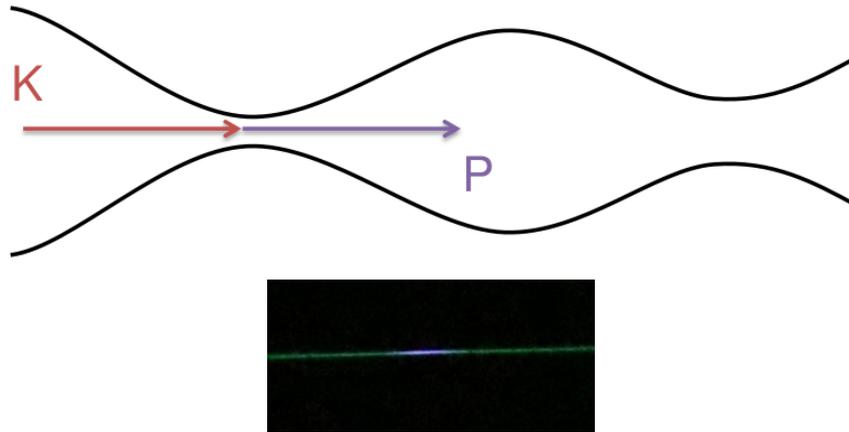


FIGURE 2.14 – (Haut) Schéma d'un filament optique. L'effet Kerr conduit à l'auto-focalisation du faisceau, qui est ensuite défocalisé par la création de plasma lorsque l'intensité dépasse le seuil d'ionisation. La succession d'évènements de focalisation et de défocalisation construit un filament qui peut s'étendre sur de grandes distances. (Bas) Photographie d'un filament de quelques millimètres de long obtenu au CELIA au cours du projet ALTESSE.

lorsqu'elle est évaluée sur le mode de Townes [18]. Lorsque la puissance initiale du faisceau laser est supérieure à cette puissance critique, le faisceau peut alors s'auto-focaliser sans présence de lentille convergente et conduire à la formation d'un filament. Le principe de la filamentation est illustré sur la figure 2.14.

La distance à laquelle l'auto-focalisation du faisceau a lieu a été calculée semi-empiriquement par Marburger [63]. Cette distance est fonction du rapport entre la puissance initiale P_{in} et la puissance critique P'_{cr} définie par l'équation (2.105). Plus ce rapport est important, plus le collapse aura lieu rapidement. La distance de collapse dépend aussi de la distance de Rayleigh,

$$z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda_0}, \quad (2.106)$$

qui est la distance caractéristique à partir de laquelle un faisceau gaussien est diffracté. Elle dépend par ailleurs de la présence éventuelle d'un système optique convergent, comme une lentille mince, qui permet de la diminuer si la distance focale f est suffisamment courte. Si la focale est grande, l'intensité maximale ne sera alors plus atteinte au foyer de la lentille, mais à un foyer nonlinéaire. La distance de collapse, qui est ce foyer nonlinéaire, s'écrit donc en fonction des paramètres précédents [63] :

$$z_c = \frac{0.367 z_0}{\sqrt{\left(\sqrt{\frac{P_{\text{in}}}{P'_{\text{cr}}}} - 0.852\right)^2 - 0.0219 + 0.367 \frac{z_0}{f}}}. \quad (2.107)$$

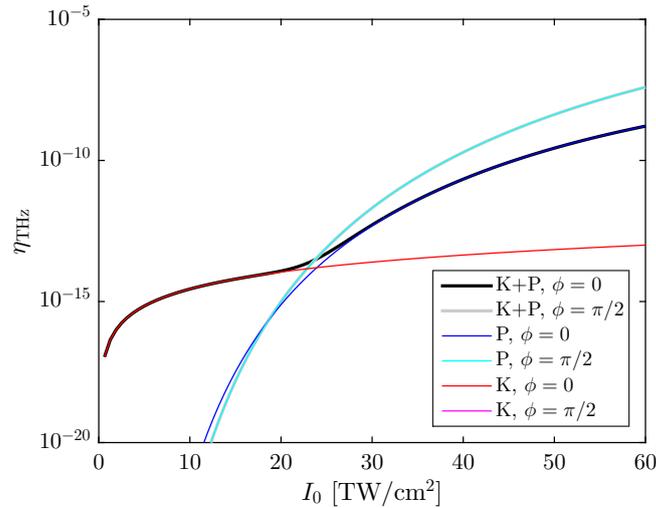


FIGURE 2.15 – Rendement THz η_{THz} [équation (2.91)] évalué avec un modèle local incluant les photocourants (P) et l’effet Kerr instantané (K) pour des impulsions laser à deux couleurs de durée 60 fs, de longueur d’onde fondamentale 800 nm et avec 10% d’énergie dans la deuxième couleur. Le rendement THz est tracé en fonction de l’intensité laser I_0 pour différentes configurations : effets plasma (P) ou Kerr (K) seuls, et combinaison des deux effets (P+K), pour des phases relatives entre les deux couleurs de 0 ou $\pi/2$.

En résumé, à intensité modérée (10^{12-13} W/cm²), plus précisément en deçà du seuil d’ionisation, l’effet Kerr permet de générer par mélange à quatre ondes des champs THz large-bande mais de faible amplitude [voir équation (2.23)]. À partir du seuil d’ionisation ($> 10^{13}$ W/cm²), les photocourants créés possèdent une partie basse-fréquence dans le régime THz qui est d’autant plus élevée que le champ laser est asymétrique [voir équation (2.94)].

Revenant à la production de rayonnement THz, la figure 2.15 montre l’évolution du rendement THz en fonction de l’intensité laser, obtenu avec le modèle LC auquel la contribution Kerr est ajoutée en effectuant le changement $\partial_t J \rightarrow \partial_t J + \partial_t^2 P_{\text{NL}}$. Les photocourants sont dominants dans la production de rayonnement THz pour des intensités typiques de 10^{13-15} W/cm². Cependant, l’effet Kerr joue sur la longueur et le diamètre du filament, ce qui alimente la propagation nonlinéaire de l’impulsion laser sur de grandes distances et contribue à modifier le spectre de l’impulsion laser, et donc en retour les photocourants. C’est à travers son impact dans le spectre laser que sa contribution devient appréciable.

En effet, l’effet Kerr permet un élargissement spectral grâce à l’auto-modulation de phase (“self-phase modulation”). Cet effet se comprend lorsque l’on résout

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} = i|\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} \quad (2.108)$$

qui correspond à la variation de phase introduite par effet Kerr [voir équation (C.2)]. Une

solution exacte est $\mathcal{E}(z) = \mathcal{E}_0 e^{i|\mathcal{E}_0|^2 z}$, qui démontre que la phase (nonlinéaire) varie avec l'amplitude du champ. Cette propriété conduit à un élargissement spectral symétrique selon la définition [6, 87]

$$\Delta\omega = -\frac{\partial}{\partial t} \arg(\mathcal{E}). \quad (2.109)$$

Dans cette section, nous avons décrit les différents mécanismes intervenant au cours de la propagation laser et influant la production de champs THz. La section suivante se concentre sur le modèle complet de propagation incluant tous ses mécanismes, linéaires et nonlinéaires, et sur sa description unidirectionnelle.

2.2 Le modèle UPPE

Cette section présente le modèle UPPE (équation unidirectionnelle de propagation d'impulsions ou "Unidirectional Pulse Propagation Equation") proposé il y a quelques années par Kolesik *et al.* [53, 52]. Ce modèle revient à ne sélectionner que la composante avant du champ électrique incluant le champ laser dominant et à assurer que les nonlinéarités sont découplées de toute composante arrière potentielle.

2.2.1 Des équations de Maxwell aux équations unidirectionnelles

En appliquant la transformée de Fourier en temps sur les équations (2.10) et (2.11), et en considérant le courant de pertes calculé dans le paragraphe 2.1.4.4, nous obtenons l'équation d'Helmholtz :

$$\nabla^2 \widehat{\mathbf{E}} + k(\omega)^2 \widehat{\mathbf{E}} = -\mu_0 \omega^2 \left[\frac{i}{\omega} (\widehat{\mathbf{J}} + \widehat{\mathbf{J}}_{\text{loss}}) + \widehat{\mathbf{P}}_{\text{NL}} \right] + \nabla(\nabla \cdot \widehat{\mathbf{E}}) \quad (2.110)$$

$$\nabla \cdot \widehat{\mathbf{E}} = \frac{\widehat{\rho} - \nabla \cdot \widehat{\mathbf{P}}}{\epsilon_0}, \quad (2.111)$$

où toute l'information sur la dispersion linéaire du matériau de propagation est contenue dans

$$k(\omega) = n(\omega) \frac{\omega}{c} = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)} \frac{\omega}{c}. \quad (2.112)$$

Avec l'équation de continuité $\nabla \cdot (\mathbf{J} + \mathbf{J}_{\text{loss}}) + \partial_t \rho = 0$, une simple transformée de Fourier fournit $\widehat{\rho} = -i \nabla \cdot (\widehat{\mathbf{J}} + \widehat{\mathbf{J}}_{\text{loss}}) / \omega$ dans l'équation (2.111) qui s'exprime alors comme suit :

$$\nabla \cdot \widehat{\mathbf{E}} = -\frac{\nabla \cdot \left[\frac{i}{\omega} (\widehat{\mathbf{J}} + \widehat{\mathbf{J}}_{\text{loss}}) + \widehat{\mathbf{P}}_{\text{NL}} \right]}{\epsilon_0 \epsilon(\omega)}, \quad (2.113)$$

car $\widehat{\mathbf{P}}_{\mathbf{L}} = \epsilon_0[\epsilon(\omega) - 1]\widehat{\mathbf{E}}$. En posant $\widehat{\mathbf{F}}_{\text{NL}} = \frac{i}{\omega} (\widehat{\mathbf{J}} + \widehat{\mathbf{J}}_{\text{loss}}) + \widehat{\mathbf{P}}_{\text{NL}}$, l'équation (2.110) devient

$$\nabla^2 \widehat{\mathbf{E}} + k^2(\omega) \widehat{\mathbf{E}} = -\mu_0 \omega^2 \left[\widehat{\mathbf{F}}_{\text{NL}} + \frac{\nabla(\nabla \cdot \widehat{\mathbf{F}}_{\text{NL}})}{k^2(\omega)} \right]. \quad (2.114)$$

En effectuant la transformée de Fourier spatiale en (x, y, z) du membre de droite, puis en décomposant le champ \mathbf{E} suivant ses trois composantes vectorielles, ce dernier s'exprime à partir du membre de droite :

$$-\mu_0 \omega^2 \left[\widehat{\mathbf{F}}_{\text{NL}} - \frac{\mathbf{k}(\mathbf{k} \cdot \widehat{\mathbf{F}}_{\text{NL}})}{k^2} \right] = -\mu_0 \omega^2 \left[\begin{pmatrix} \widehat{F}_{\text{NL}x} \\ \widehat{F}_{\text{NL}y} \\ \widehat{F}_{\text{NL}z} \end{pmatrix} - \frac{1}{k^2} \begin{pmatrix} \widehat{F}_{\text{NL}x} k_x^2 + \widehat{F}_{\text{NL}y} k_x k_y + \widehat{F}_{\text{NL}z} k_x k_z \\ \widehat{F}_{\text{NL}x} k_x k_y + \widehat{F}_{\text{NL}y} k_y^2 + \widehat{F}_{\text{NL}z} k_y k_z \\ \widehat{F}_{\text{NL}x} k_x k_z + \widehat{F}_{\text{NL}y} k_y k_z + \widehat{F}_{\text{NL}z} k_z^2 \end{pmatrix} \right], \quad (2.115)$$

où on note $\mathbf{k} = (k_x, k_y, k_z)$ et $\widehat{\mathbf{F}}_{\text{NL}} = (\widehat{F}_{\text{NL}x}, \widehat{F}_{\text{NL}y}, \widehat{F}_{\text{NL}z})$. Ce dernier terme mélange les composantes du champ électrique à travers celles des nonlinéarités.

La première simplification est de considérer que l'onde se propage essentiellement proche de l'axe de propagation, et donc que

$$k_{\perp}^2 \ll k^2 \quad (2.116)$$

où $k_{\perp} = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$ correspond aux composantes transverses du nombre d'onde de l'impulsion. Cela signifie que l'onde est faiblement diffractée, et donc que la dimension transverse du faisceau ($\sim 2\pi/k_{\perp}$) reste grande devant la longueur d'onde laser.

En négligeant les termes en $O(k_{\perp}^2/k^2)$ dans l'équation (2.115), il reste donc :

$$-\mu_0 \omega^2 \left[\widehat{\mathbf{F}}_{\text{NL}} - \frac{\mathbf{k}(\mathbf{k} \cdot \widehat{\mathbf{F}}_{\text{NL}})}{k^2} \right] = -\mu_0 \omega^2 \begin{pmatrix} \widehat{F}_{\text{NL}x} - \widehat{F}_{\text{NL}z} k_x k_z / k^2 \\ \widehat{F}_{\text{NL}y} - \widehat{F}_{\text{NL}z} k_y k_z / k^2 \\ \widehat{F}_{\text{NL}x} k_x k_z / k^2 + \widehat{F}_{\text{NL}y} k_y k_z / k^2 \end{pmatrix}. \quad (2.117)$$

À partir de l'équation (2.113), nous obtenons en outre que \widehat{E}_z , et donc $\widehat{F}_{\text{NL}z}$, est d'ordre $O(k_{\perp}/k)$. C'est pourquoi, en appliquant la condition (2.116) dans (2.117), on voit que le terme $\nabla(\nabla \cdot \widehat{\mathbf{F}}_{\text{NL}})/k^2$ est négligeable devant $\widehat{\mathbf{F}}_{\text{NL}}$, et que l'effet de mélange des composantes longitudinales et transverses est négligeable sur l'axe de propagation sous approximation paraxiale. En supposant que le champ laser est initialement polarisé transversalement suivant x , et en notant $\nabla_{\perp}^2 = \partial_x^2 + \partial_y^2$, l'onde laser préserve ainsi sa polarisation transverse de sorte que l'équation (2.110) peut s'écrire sous forme scalaire :

$$\left(\nabla_{\perp}^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + k^2 \right) \widehat{E} = -\mu_0 \omega^2 \widehat{F}_{\text{NL}}. \quad (2.118)$$

On posera alors $\widehat{F} * \widehat{E} = \widehat{F}_{\text{NL}}$, avec \widehat{F} une fonction regroupant les termes nonlinéaires et $*$ le produit de convolution fréquentiel.

Notons à présent

$$D_{\pm}(\omega) = \frac{\partial}{\partial z} \mp i\sqrt{k^2 + \nabla_{\perp}^2}, \quad (2.119)$$

où D_+ correspond à l'opérateur de propagation vers l'avant et D_- l'opérateur de propagation vers l'arrière. Par transformée de Fourier en (x, y) , les opérateurs deviennent $D_{\pm}(\omega) = \partial_z \mp ik_z$ avec $k_z = \sqrt{k^2 - k_{\perp}^2}$. L'équation (2.118) devient alors

$$D_+(\omega)D_-(\omega)\widehat{E} = -\mu_0\omega^2\widehat{F} * \widehat{E}. \quad (2.120)$$

Nous décomposons ensuite le champ \widehat{E} en une onde se propageant vers l'avant et une autre se propageant vers l'arrière, $\widehat{E} = \widehat{U}_+e^{ik_z z} + \widehat{U}_-e^{-ik_z z}$, où \widehat{U}_+ et \widehat{U}_- sont les transformées de Fourier des enveloppes vers l'avant et vers l'arrière, respectivement, d'où

$$D_+(\omega)D_-(\omega)\widehat{E} = e^{ik_z z} \left(\frac{\partial^2 \widehat{U}_+}{\partial z^2} + 2ik_z \frac{\partial \widehat{U}_+}{\partial z} \right) + e^{-ik_z z} \left(\frac{\partial^2 \widehat{U}_-}{\partial z^2} - 2ik_z \frac{\partial \widehat{U}_-}{\partial z} \right). \quad (2.121)$$

Dans ce qui suit, nous ne considérons que la composante *avant* de l'onde laser $\widehat{E} = \widehat{U}_+e^{ik_z z}$ et n'appliquons comme unique approximation que

$$D_-\widehat{E} = \frac{\partial \widehat{U}_+}{\partial z} e^{ik_z z} + 2ik_z \widehat{E} \simeq 2ik_z \widehat{E}. \quad (2.122)$$

Autrement dit, l'opérateur de propagation arrière agit sur l'enveloppe avant sous hypothèse de paraxialité. En remplaçant l'expression ci-dessus dans l'équation (2.118), on trouve l'équation UPPE

$$\frac{\partial \widehat{E}}{\partial z} = i\sqrt{k(\omega)^2 - k_x^2 - k_y^2} \widehat{E} + \frac{i}{2\sqrt{k(\omega)^2 - k_x^2 - k_y^2}} \mu_0 \omega^2 \left[\frac{i}{\omega} (\widehat{J} + \widehat{J}_{\text{loss}}) + \widehat{P}_{\text{NL}} \right]. \quad (2.123)$$

La diffraction transverse apparaissant dans les termes nonlinéaires peut être simplifiée à l'aide de la condition (2.116), pour obtenir l'équation suivante qui sera implémentée numériquement :

$$\frac{\partial \widehat{E}}{\partial z} = i\sqrt{k(\omega)^2 - k_x^2 - k_y^2} \widehat{E} + \frac{i}{2k(\omega)} \mu_0 \omega^2 \left[\frac{i}{\omega} (\widehat{J} + \widehat{J}_{\text{loss}}) + \widehat{P}_{\text{NL}} \right]. \quad (2.124)$$

Nous pouvons souligner ici que l'approximation (2.122) n'est pas nécessaire si des techniques de projection sont utilisées [53] ou si l'équation aux dérivées partielles (EDP)

(2.118) est traitée comme une équation différentielle ordinaire (EDO) inhomogène [10]. Dans ce deuxième cas, Andreasen et Kolesik [10] choisissent librement le paramètre ζ définissant le champ $\widehat{E} = \widehat{U}_+ e^{i\zeta z} + \widehat{U}_- e^{-i\zeta z}$ et le fixent par la condition de jauge $\partial_z \widehat{U}_+ e^{i\zeta z} + \partial_z \widehat{U}_- e^{-i\zeta z} = 0$. Cette méthode revient à traiter \widehat{U}_\pm par méthode de variation de la constante pour les EDO. Avec ces conditions, la dérivée seconde en z de \widehat{E} se limite à des dérivées premières en z de \widehat{U}_+ et \widehat{U}_- , ce qui est formellement équivalent, après calculs, à supprimer les dérivées secondes en z du champ total. Ce raisonnement revient à considérer les dérivées partielles comme des dérivées ordinaires.

L'implémentation numérique de l'équation (2.124) est détaillée en Annexe C. Le schéma numérique de base repose sur la méthode "split-step" spectrale. Le code numérique correspondant se nomme CUP3D ("Code for Ultrashort Pulses 3D"). Il est parallélisé. Programmé initialement en "Message Passing Interface" (MPI), il a été augmenté en "Open Multi-Processing" (OpenMP). Les tailles caractéristiques des simulations les mieux résolues réalisées au cours de cette thèse impliquent une durée de l'impulsion laser de l'ordre de 50 fs, pour une taille de faisceau initiale de quelques centaines de microns. Les intensités initiales sont de quelques TW/cm², et augmentent jusqu'à quelques centaines de TW/cm² au point focal. La résolution spatiale transverse est de 512 × 512 points pour une taille de boîte de 1 × 1 mm², soit $\Delta x = \Delta y \simeq 2 \mu\text{m}$. En temporel, la boîte peut être de 1 ps et contenir 16384 points ($\Delta t \simeq 0.06$ fs). Les distances de propagation réalisées sont de l'ordre du mètre, avec un pas adaptatif variant de 10⁻⁸ à 10⁻⁵ m. S'il y a 512 points transversalement, on utilisera 512 nœuds, contenant chacun 16 ou 24 cœurs selon la machine utilisée. Des performances de calcul sont données dans l'Annexe C.

2.2.1.1 Comparaison LC/UPPE

Les estimations réalisées avec le modèle LC ont pour but de prédire l'émission de rayonnement THz sans prendre en compte la propagation du champ laser. Ce modèle, simple et rapide, donne un ordre de grandeur des champs secondaires rayonnés qui sont émis pour une impulsion laser donnée en utilisant, par exemple, le modèle d'ionisation simple QST, ou un autre modèle d'ionisation plus complet. Il est basé sur l'hypothèse LC qui conjecture que, pour un petit volume de plasma, le champ THz émis est proportionnel à la dérivée temporelle du courant des électrons créés par ionisation. Les tendances trouvées avec le modèle LC sont ici comparées aux résultats de simulations UPPE qui résolvent l'équation (2.124) en trois dimensions. Les estimations LC peuvent aider à comprendre les résultats UPPE, en décomposant localement les différentes sources de rayonnement THz.

La figure 2.16 compare des spectres obtenus avec des simulations UPPE (courbes noires) et le modèle LC (image couleur). Le modèle LC reproduit plutôt bien les spectres des simulations UPPE, avec des variations similaires lors de l'augmentation de la durée de

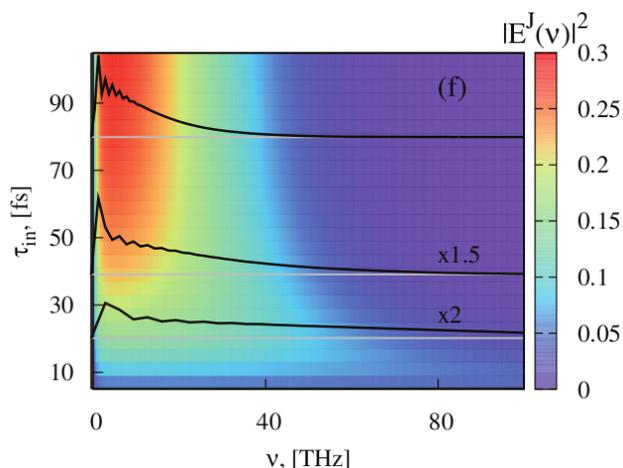


FIGURE 2.16 – Evaluations LC (couleur) et simulations UPPE (courbes noires) d’impulsions laser à deux couleurs en fonction de la durée à mi-hauteur τ_{in} à intensité pic fixée. Source : Babushkin [14].

l’impulsion laser $\tau_{\text{in}} \equiv \tau_0$. Les spectres UPPE sont généralement plus larges et présentent un pic aux basses fréquences < 2 THz.

La figure 2.17, à comparer avec la figure 2.5 de la section précédente qui illustre l’impact local de l’effet Raman, montre l’influence du même effet en régime de propagation focalisée ou collimatée. Les champs issus de simulations 3D [équation (2.124)] sont extraits sur l’axe de propagation et à la distance de production de rayonnement THz maximale. Ces champs sont ensuite implémentés dans un modèle local type LC auquel on ajoute les contributions Kerr et Raman par le changement $\partial_t \mathbf{J} \rightarrow \partial_t \mathbf{J} + \partial_t^2 \mathbf{P}_{\text{NL}}$ afin de décomposer les composantes THz issues des photocourants, de l’effet Kerr instantané et de l’effet Raman. Quatre simulations en 3D ont été réalisées pour cette figure, une contenant l’effet Raman ($x_K = 0.5$) et l’autre sans ($x_K = 0$), pour les deux régimes de propagation considérés (focalisé et collimaté). Nous remarquons que les contributions dans le spectre THz des effets Kerr et Raman sont faibles comme attendu, avec 1 à 3 ordres de grandeurs de moins que les contributions des photocourants. L’effet Raman diminue l’émission THz comme attendu dans le modèle LC (figure 2.5). En revanche, il module de façon notable les spectres THz le long de la propagation nonlinéaire, en agissant sur la phase du champ. Des oscillations apparaissent ainsi dans le spectre THz en régime focalisé, et la largeur du spectre est réduite en régime de filamentation.

2.2.2 Validation et limitations du modèle UPPE

Pour finir le présent chapitre, nous mentionnons rapidement quelques propriétés afférentes au modèle UPPE et argumentons sur la validité de ce dernier vis-à-vis de données expérimentales.

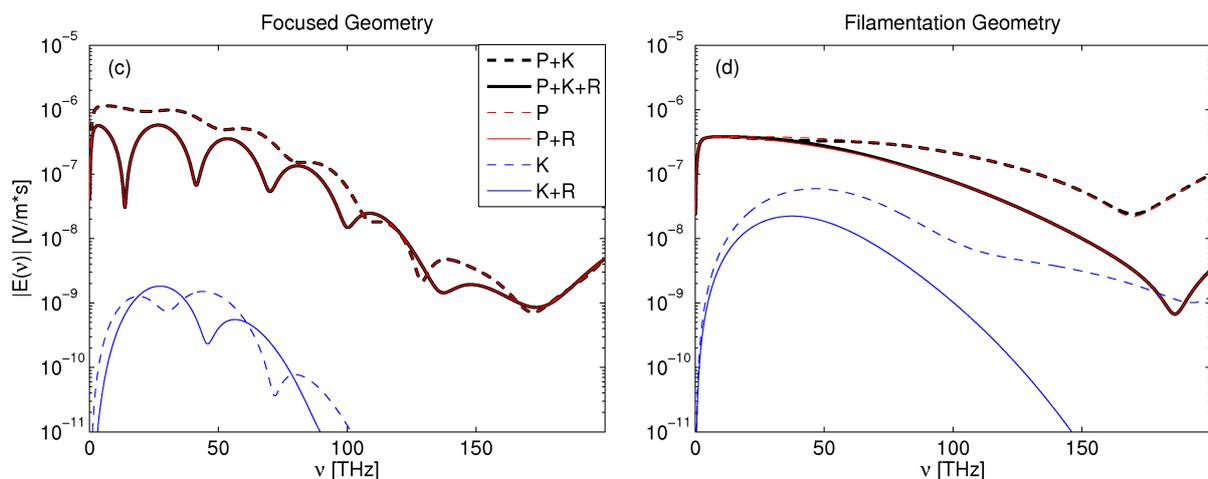


FIGURE 2.17 – (c,d) Spectres THz obtenus en prenant les profils temporels issus de simulations 3D en géométrie (c) focalisée ($f = 2.5$ cm, pour une largeur de faisceau initiale de 0.5 mm) ou (d) de filamentation et en appliquant localement les différentes sources issues des photocourants (P), de l'effet Kerr (K) et de l'effet Raman (R). Les impulsions initiales sont à deux couleurs, de durée 60 fs en régime focalisé et 40 fs pour le faisceau collimaté. Les intensités maximales atteintes sont d'environ 100 TW/cm^2 .

2.2.2.1 Mécanismes physiques fins

2.2.2.1.1 Génération d'harmoniques par photo-ionisation Si le champ laser comporte deux couleurs, le spectre de la densité électronique présente des composantes aux harmoniques élevés du champ laser par mélange de fréquences dans le plasma comme le montre la figure 2.18 réalisée pour un taux d'ionisation QST appliqué au dioxygène. Si le champ comporte une seule couleur, les harmoniques générés restent d'ordre pair, comme prédit par Brunel [22]. Dans ce cas, N_e est maximum à chaque demi-cycle optique, et donc de fréquence $2\omega_0$. Si le champ contient deux couleurs, des harmoniques d'ordre pair et impair peuvent être créés.

2.2.2.1.2 Modèle d'enveloppe En posant la représentation complexe $\mathcal{E} = Ue^{i(k_0z - \omega_0t)}$, où U est l'enveloppe du champ, l'équation (C.2) devient, en ne retenant que les termes oscillants à ω_0 et après introduction de la nouvelle variable en temps $t \rightarrow t - z/v_g$ avec $v_g = \partial_\omega k(\omega_0)$ désignant la vitesse de groupe de l'onde laser [21] :

$$\frac{\partial U}{\partial z} = \frac{i}{2k_0} T^{-1} \nabla_\perp^2 U + ik_0 U + i \frac{\omega_0}{c} n_2 T [(1 - x_K) |U|^2 + x_K \int h(t-t') |U(t')|^2 dt'] U - (J + J_{\text{loss}}) \quad (2.125)$$

Ici, $T = (1 + i\omega_0^{-1} \partial_t)$ est un opérateur permettant d'inclure toutes les dépendances temporelles de l'enveloppe au cours de la propagation. Cet opérateur induit des distortions spectrales associées à la diffraction et la nonlinéarité Kerr subies par l'impulsion.

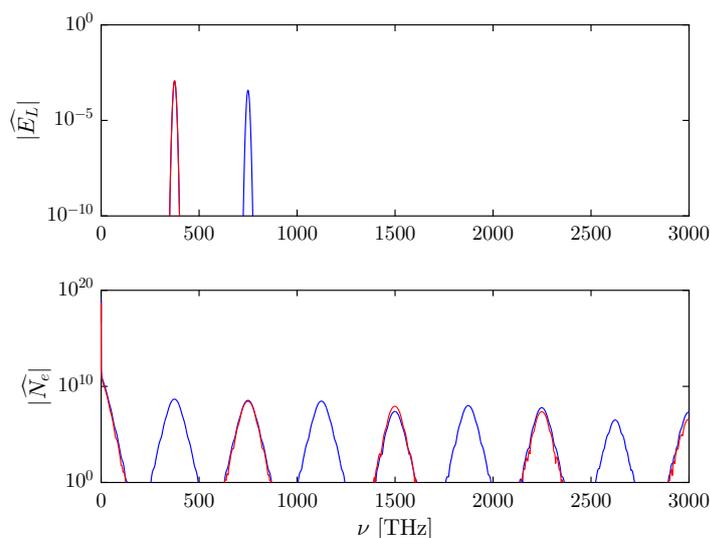


FIGURE 2.18 – Spectres du champ laser (haut) et de la densité électronique associée (bas) évaluée avec le taux d’ionisation QST du dioxygène pour une (courbes rouges) ou deux (courbes bleues) couleurs.

Focalisation espace-temps – La focalisation espace-temps (“space-time focusing”) vient du terme $i\sqrt{k(\omega)^2 - k_{\perp}^2}\widehat{\mathcal{E}}$ dans l’équation (C.2). Dans le modèle d’enveloppe, cette focalisation est prise en compte par l’ajout de l’opérateur T^{-1} devant le terme de diffraction, c’est-à-dire $T^{-1}\nabla_{\perp}^2 U$ qui provient d’un développement de Taylor sous hypothèse (2.116) et de l’application de la représentation en enveloppe complexe \mathcal{E} . Cet effet décrit la distortion de l’impulsion dans le plan (x, y, t) selon la fréquence ω considérée [29].

Auto-raïdissement – L’auto-raïdissement (“self-steepening”) vient du terme $T|U|^2 U$ produit par l’effet Kerr dans le modèle d’enveloppe. Si ce terme est suffisamment élevé (pour des impulsions de quelques cycles), il peut conduire à des chocs optiques lorsque les gradients temporels dans l’impulsion deviennent très élevés. De tels chocs se manifestent par un transfert rapide de puissance de l’avant à l’arrière de l’impulsion, où une pente singulière s’établit et élargit brutalement le spectre de l’onde optique vers les hautes fréquences (“blueshift”) [9].

2.2.2.2 Validation de l’approximation unidirectionnelle

Afin d’étudier la validité du code CUP3D, sa version simplifiée à une dimension (UPPE1D) a été comparée avec un code résolvant les équations Maxwell-fluide (MAXFLU) [34]. En effet, pour des raisons de rapidité, les codes de type UPPE ne résolvent que l’onde se propageant dans le même sens que le champ laser (propagation avant) et ils négligent l’onde se propageant vers l’arrière car celle-ci est supposée peu énergétique. En revanche, le code MAXFLU résout les équations de Maxwell complètes (2.10) et (2.11)

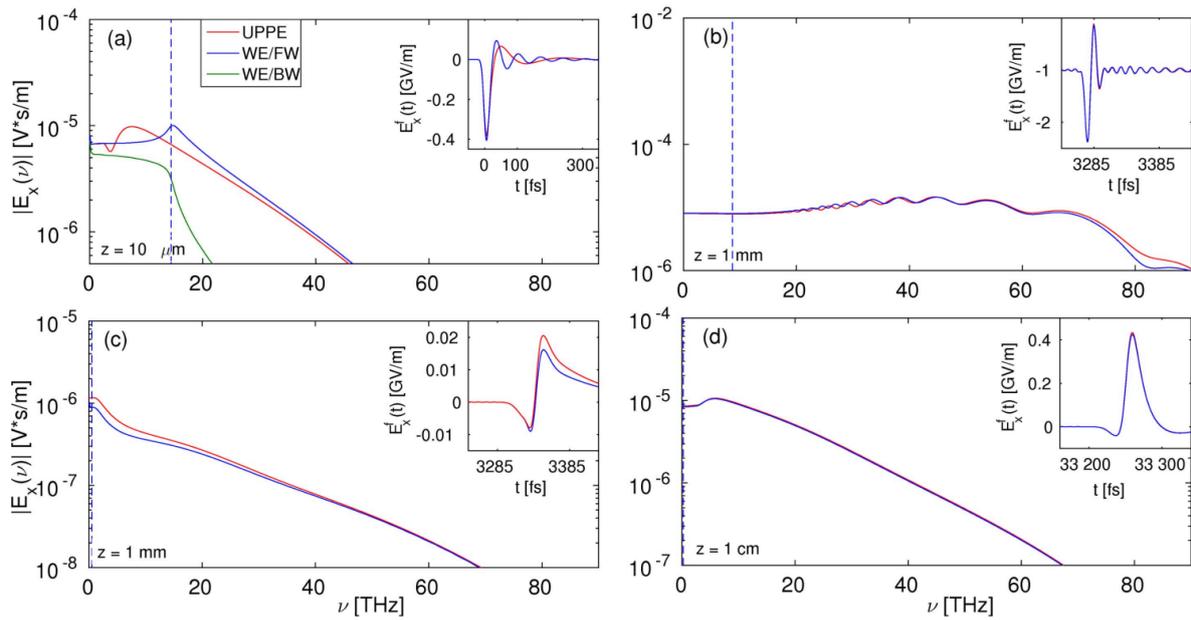


FIGURE 2.19 – (a,b) Spectres THz transverses après (a) $10 \mu\text{m}$ et (b) 1 mm de propagation dans de l'argon obtenus avec les codes MAXFLU (courbes bleues) et UPPE (courbes rouges) pour des impulsions à deux couleurs de 50 fs en durée à mi-hauteur et pour une intensité de $150 \text{ TW}/\text{cm}^2$. La ligne verticale indique la fréquence plasma à densité électronique maximale. Les inserts montrent les champs filtrés. La courbe verte indique le spectre de la composante se propageant vers l'arrière. (c,d) Même information pour une intensité de $50 \text{ TW}/\text{cm}^2$ et des distances de (c) 1 mm et (d) 1 cm . Source : Déchard [34].

en une dimension spatiale ($\partial_x = \partial_y = 0$) associées aux équations plasma fluides (2.46) et (2.50). Il prend en compte les deux sens de propagation, ce qui est plus réaliste mais très coûteux numériquement. La comparaison UPPE/MAXFLU, même en une dimension, permet donc de valider l'approximation unidirectionnelle faite pour UPPE.

La figure 2.19 compare à cette fin les spectres térahertz calculés par les deux codes modélisant la propagation 1D d'une impulsion laser à deux couleurs de 50 fs en durée FWHM, avec une fréquence fondamentale à $1 \mu\text{m}$ dans de l'argon.

Aux petites distances couvrant quelques épaisseurs de peau plasma $c/2\pi\nu_p$, où $\nu_p = \sqrt{N_e e^2 / (\epsilon_0 m_e)} / 2\pi$ est la fréquence plasma électronique, les spectres UPPE oscillent aux petites fréquences inférieures à ν_p (qui appartient au domaine THz), dû à la perte de la composante arrière. En effet la figure 2.19(a) montre les spectres obtenus au bout de $10 \mu\text{m}$ de propagation avec les modèles MAXFLU et UPPE. Cette figure montre aussi la composante arrière (courbe verte), qui est constante dans le domaine $\nu < \nu_p$ et chute au-delà. Contrairement aux spectres UPPE, les spectres MAXFLU sont piqués à ν_p (repérée par la ligne verticale en pointillés) et décroissent aux fréquences inférieures à cause de l'opacité plasma, comme attendu des modes propres d'un champ électromagnétique dans un plasma [69, 68], dont l'indice de réfraction optique $\propto \sqrt{1 - \nu_p^2 / \nu^2}$ admet une composante imaginaire causant l'absorption de l'onde avant au cours de sa propagation dans le plasma.

En revanche, aux grandes distances supérieures au millimètre, les spectres donnés par les deux codes se superposent quasiment [voir les figures 2.19(b,d)], car les effets non-linéaires, dont la photo-ionisation, dominent la dynamique spectrale dans la production de rayonnement THz (voir figure 2.19, courbes solides). Les spectres obtenus avec les modèles MAXFLU et UPPE convergent donc au bout de quelques millimètres de propagation en une dimension.

Cette étude permet ainsi de confirmer la validité des simulations UPPE sur de grandes distances (au moins en 1D), qui présentent l'avantage d'être plus rapides et moins coûteuses que les simulations MAXFLU.

2.2.2.3 Validation expérimentale

L'équation UPPE a aussi été validée à travers l'interprétation de différentes campagnes expérimentales, comme le montrent les figures 2.20 et 2.21. La première concerne l'étude de l'émission THz par des cellules d'argon à basse pression, réalisée en 2010 par Babushkin *et al.* [13]. La seconde compare les champs THz émis par effet Kerr et par les photocourants créés dans l'air. Elle a été réalisée en 2016 par Andreeva *et al.* [12].

Par ailleurs, cet accord a aussi été retrouvé au cours du projet ALTESSE lors de la comparaison de spectres expérimentaux obtenus à DTU et des simulations UPPE cor-

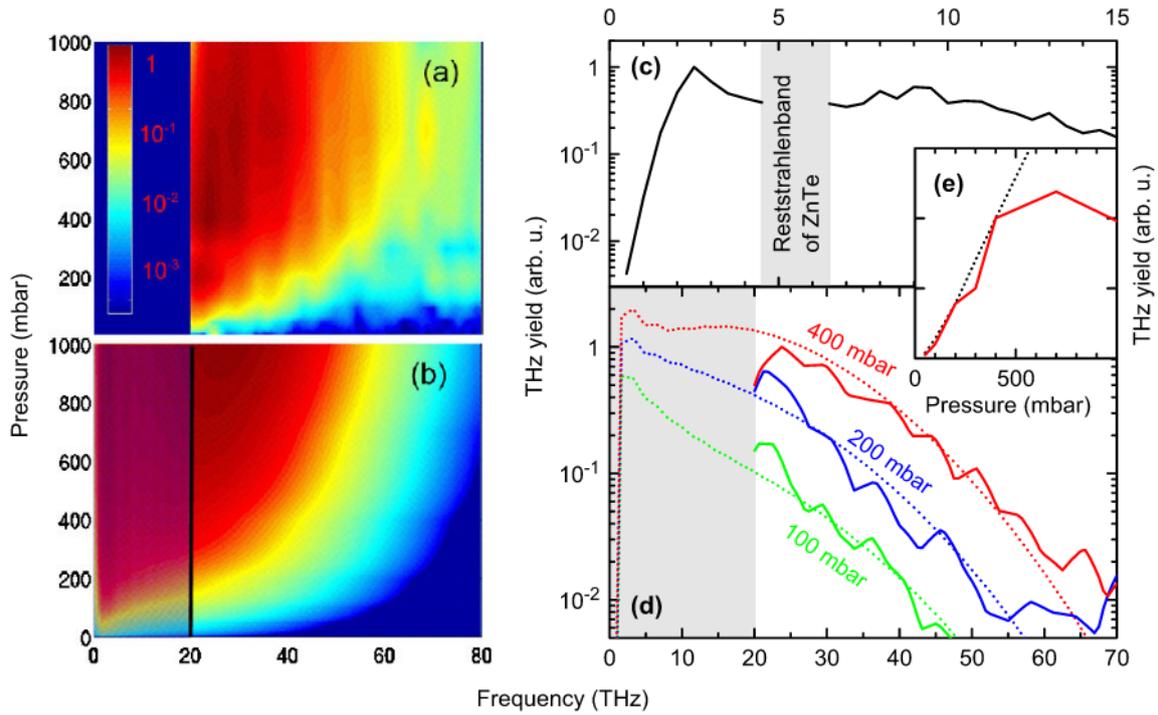


FIGURE 2.20 – (a,b) Spectres expérimentaux (a) et numériques (b) en fonction de la pression du gaz. (c,d) Spectres expérimentaux (traits pleins) et numériques (pointillés) pour différentes pressions. Les zones grisées indiquent des intervalles en fréquence inaccessibles expérimentalement. Source : Babushkin [13].

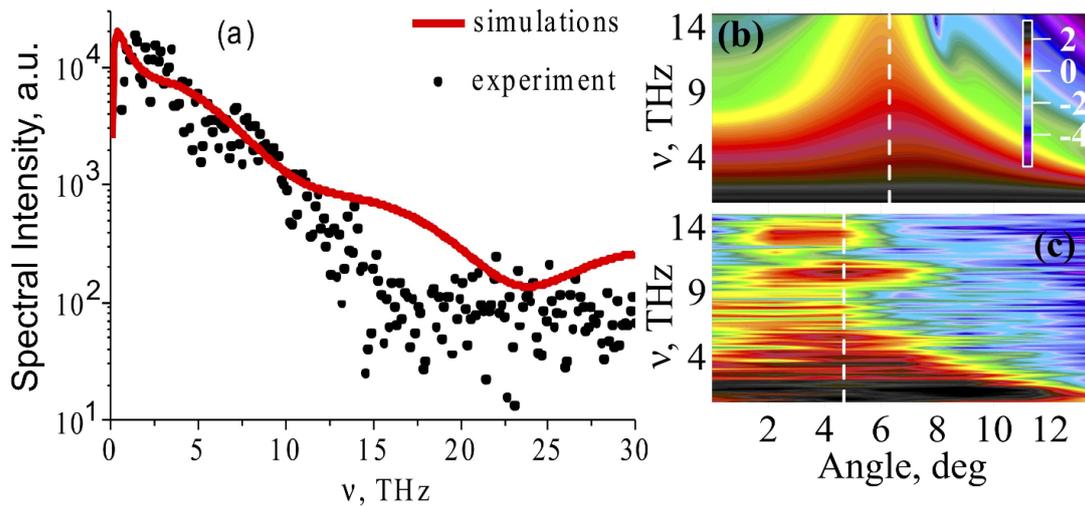


FIGURE 2.21 – (a) Spectre expérimental (points noirs) et numérique (courbe rouge) obtenu avec UPPE. (b) Spectre angulaire numérique. (c) Spectre angulaire expérimental. Source : Andreeva [12].

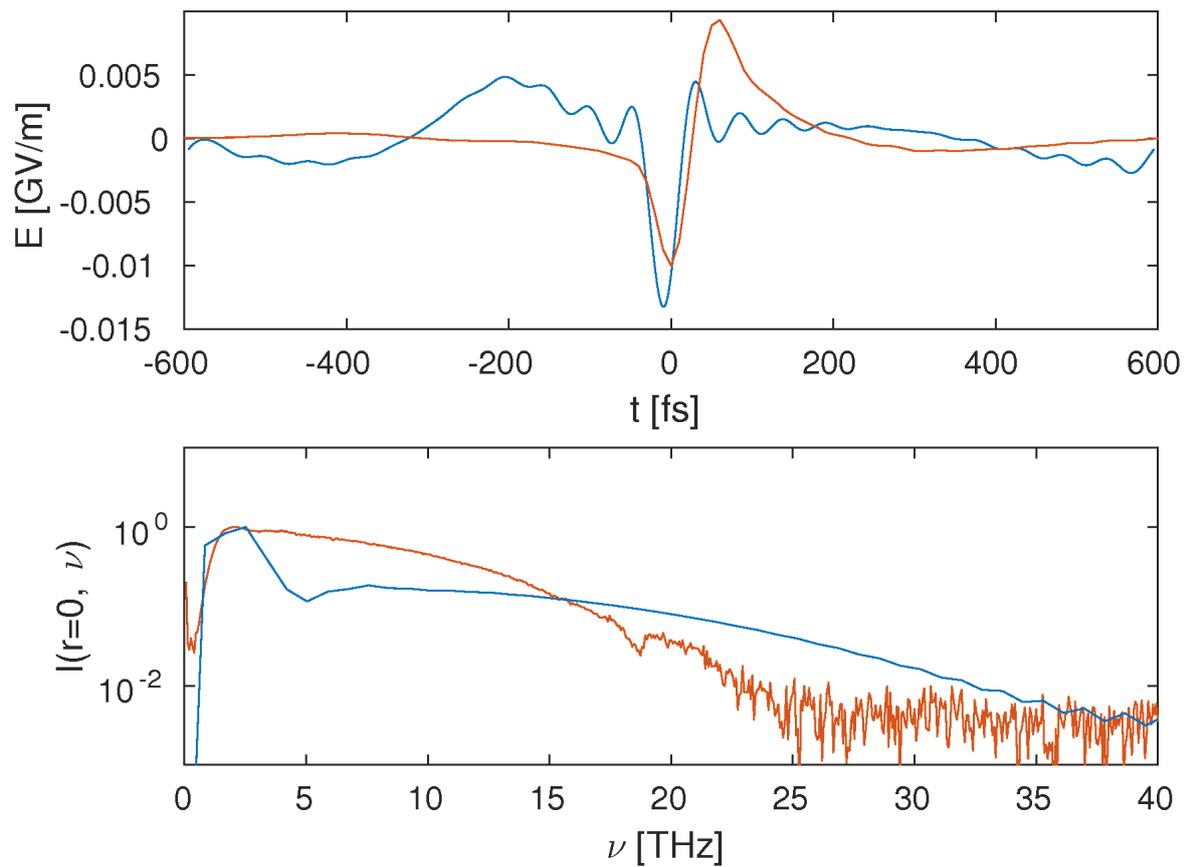


FIGURE 2.22 – Champs (haut) et spectres (bas) THz au point focal obtenus expérimentalement à DTU au cours du projet ALTESSE (courbes rouges), et avec des simulations UPPE 3D (courbes bleues).

respondantes. La figure 2.22 compare les champs et les spectres térahertz numériques et expérimentaux, obtenus au point focal du faisceau THz utilisé pour la spectroscopie d'explosifs et de similis (voir le montage sur la figure 1.10). Les simulations montrent un bon accord sur le champ THz mesuré, confirmant une amplitude de 0.01 GV/m, qui est la valeur maximale atteinte dans notre configuration expérimentale. Les différences observées dans les spectres peuvent être attribuées à la méthode ABCD utilisée expérimentalement pour détecter le champ THz, qui, à l'époque de ces premières mesures, coupait les spectres au-delà de 20 THz environ. D'autre part, pour des raisons numériques, la valeur de la distance focale et celle de la largeur initiale du faisceau ont été divisées par 10 par rapport aux données expérimentales.

2.2.2.4 Avantages et limitations du modèle UPPE

Le principal avantage de l'approche unidirectionnelle est qu'elle permet de réaliser des simulations sur de grandes distances pouvant atteindre plusieurs dizaines de mètres. Les calculs sont moins coûteux que la résolution complète des équations de Maxwell.

En revanche, l'approche UPPE est valide si l'hypothèse $k_{\perp}^2 \ll k(\omega)^2$ reste vérifiée. Dans le cas contraire, nous pensons que les termes non paraxiaux ne sont plus négligeables et l'approche scalaire peut être rendue invalide. Cette contrainte permet néanmoins d'étudier une large gamme de configurations laser et notamment la filamentation sur de grandes distances. Cependant, pour des configurations où le faisceau laser est très focalisé, cette hypothèse peut devenir caduque et le modèle UPPE invalide. Par exemple, pour des microplasmas où la taille transverse du faisceau est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde laser, l'approximation $k_{\perp}^2 \ll k(\omega)^2$ ($\nabla \cdot \mathbf{E} \simeq 0$) ne peut être appliquée, et des simulations résolvant les équations de Maxwell complètes doivent donc être réalisées [94, 93]. Cette alternative s'applique d'autant plus aux impulsions THz rayonnées que la condition $|\partial_{\perp} E_{\text{THz}}| \ll |E_{\text{THz}}/\lambda_{\text{THz}}|$ peut ne plus s'appliquer pour les très grandes longueurs d'ondes. L'approche UPPE doit aussi être limitée aux régimes non relativistes et dans lesquels les champs plasma longitudinaux peuvent être négligés. Pour des régimes d'intensités plus élevées, des codes particuliers et cinétiques, résolvant la propagation de macro-particules sur une grille où les champs sont calculés, sont plus appropriés [71].

2.3 Conclusion

En conclusion, nous avons décrit les principes physiques intervenant dans la génération de rayonnement THz par interaction laser-plasma. Le champ électrique incluant le champ laser se propageant dans l'air est ainsi régi par les équations de Maxwell, dans lesquelles

interviennent des termes nonlinéaires. Ces termes nonlinéaires sont composés tout d'abord de l'effet Kerr, correspondant à la réponse des électrons liés des atomes de l'air lors du passage du champ laser. Les termes Kerr se scindent en une partie instantanée et une partie retardée, induite par la diffusion Raman stimulée rotationnelle. Ensuite, les termes nonlinéaires contiennent aussi des termes de photo-ionisation, à l'origine d'un courant transverse des électrons libérés par le champ laser et produisant le plasma d'air. Ces "photocourants" peuvent être approchés grâce à un modèle LC basé sur l'hypothèse que, pour un petit volume de plasma, les champs THz émis sont proportionnels à la composante THz de la dérivée en temps du courant électronique dans le plasma. Les deux mécanismes nonlinéaires (Kerr et photocourants) peuvent se coupler pour créer des filaments, et ainsi produire des ondes THz à distance. Afin de les modéliser, l'approche UPPE est utilisée. Elle consiste à ne considérer que la partie se propageant vers l'avant du champ électrique, et suppose que l'onde se propage proche de l'axe de propagation. Cette approche est implémentée numériquement dans le code CUP3D qui sera utilisé dans la suite de ce mémoire. Elle a été validée au travers de nombreuses expériences relatives à la filamentation laser [53, 18] et de quelques autres sur la génération de rayonnement THz par des impulsions laser bicolores.

Ingénierie THz par dérive de fréquence et impulsions décalées en temps

Sommaire

3.1 Introduction	80
3.2 Critère “optique” pour évaluer l’efficacité de conversion laser-THz	84
3.2.1 Principe général	84
3.2.2 Configuration du champ laser incident	85
3.2.3 Un critère LC “tout-optique”	88
3.3 Simulations 3D en géométrie focalisée	93
3.4 Simulations 3D en régime de filamentation	95
3.5 Conclusion	100

Dans ce chapitre, nous étudions l’influence d’une dérive de fréquence, communément appelée “chirp”, et d’une combinaison de plusieurs impulsions à deux couleurs décalées en temps sur l’émission de rayonnement THz par un plasma d’air. À l’aide de simulations UPPE en trois dimensions, nous démontrons que deux impulsions chirpées peuvent augmenter le rendement THz si leur retard temporel est choisi judicieusement, en comparaison avec deux impulsions chirpées superposées, le tout en géométrie focalisée. Ce résultat est confirmé par des calculs analytiques issus du modèle LC introduit dans le chapitre précédent et revisité en termes de produit de convolution entre spectre optique incident et spectre de la densité plasma associée. En régime de filamentation, des simulations montrent qu’une impulsion chirpée peut émettre plus de rayonnement THz qu’une impulsion non chirpée, en raison du couplage plus efficace entre les deux couleurs maintenu le long de l’axe de propagation.

3.1 Introduction

Le “chirp” d’une impulsion optique se réfère à la dépendance en temps de sa fréquence instantanée $\omega(t) = \partial_t \phi(t)$, où ϕ est la phase d’oscillations rapides de l’impulsion. Si l’on considère une impulsion gaussienne de la forme $E(t) = E_0 e^{-t^2/T^2} \cos[\phi(t)]$, celle-ci sera dite chirpée linéairement si la fréquence instantanée s’écrit sous forme linéaire $\omega(t) = \omega_0 + 2Ct/T^2$, conduisant à une phase quadratique en temps $\phi(t) = \phi_0 + \omega_0 t + Ct^2/T^2$, où C est le coefficient de chirp et T la durée en $1/e^2$ de l’impulsion. Un chirp positif (négatif) implique que la fréquence instantanée croît (resp. décroît) en temps. Une impulsion acquiert un chirp dû aux effets dispersifs au cours de sa propagation dans les milieux transparents. Contrôler cette grandeur permet par exemple de comprimer en temps une impulsion optique brève [6, 70, 90].

La figure 3.1 illustre l’effet d’un chirp important sur une impulsion laser à une couleur (colonne de gauche) et deux couleurs (colonne de droite). Dans le cas d’un chirp positif, la fréquence est plus faible à l’avant de l’impulsion (temps négatifs) et plus forte à l’arrière (temps positifs), et inversement dans le cas d’un chirp négatif.

Le chirp est utilisé expérimentalement pour faire varier la durée d’une impulsion laser, et notamment dans la technique d’amplification par dérive de fréquence (“chirped pulse amplification” en anglais, abrégé CPA) [90]. Cette technique consiste à augmenter la durée de l’impulsion laser par introduction d’un chirp, puis d’amplifier l’impulsion par passage dans un matériau amplificateur. On recomprime enfin l’impulsion résultante à sa durée initiale la plus courte (appelée “transform limited” ou TL). L’augmentation de la durée de l’impulsion avant amplification est nécessaire afin de diminuer l’intensité pic laser et ne pas dépasser le seuil de dommage du matériau amplificateur. Les impulsions chirpées peuvent être réalisées expérimentalement en utilisant une paire de réseaux optiques qui vont introduire des chemins optiques différents selon la fréquence, et étaler l’impulsion en temps. En effet, l’élargissement spectral pour des impulsions gaussiennes

$$\Delta\nu = \frac{\sqrt{1 + C^2}}{\tau_C} \tag{3.1}$$

étant inchangé après l’introduction d’une dérive de fréquence, où C est le facteur de chirp et τ_C la durée de l’impulsion chirpée, la relation entre les durées d’impulsion avant (τ_0) et après (τ_C) cette opération est $\tau_C = \sqrt{1 + C^2} \tau_0$ à élargissement spectral constant.

Récemment, les performances THz atteintes par rectification optique dans les cristaux organiques ont été considérablement améliorées par l’utilisation de combinaison d’impulsions chirpées [101, 81]. L’idée principale était d’utiliser des impulsions laser modulées temporellement sur lesquelles l’énergie du faisceau est distribuée de manière appropriée,

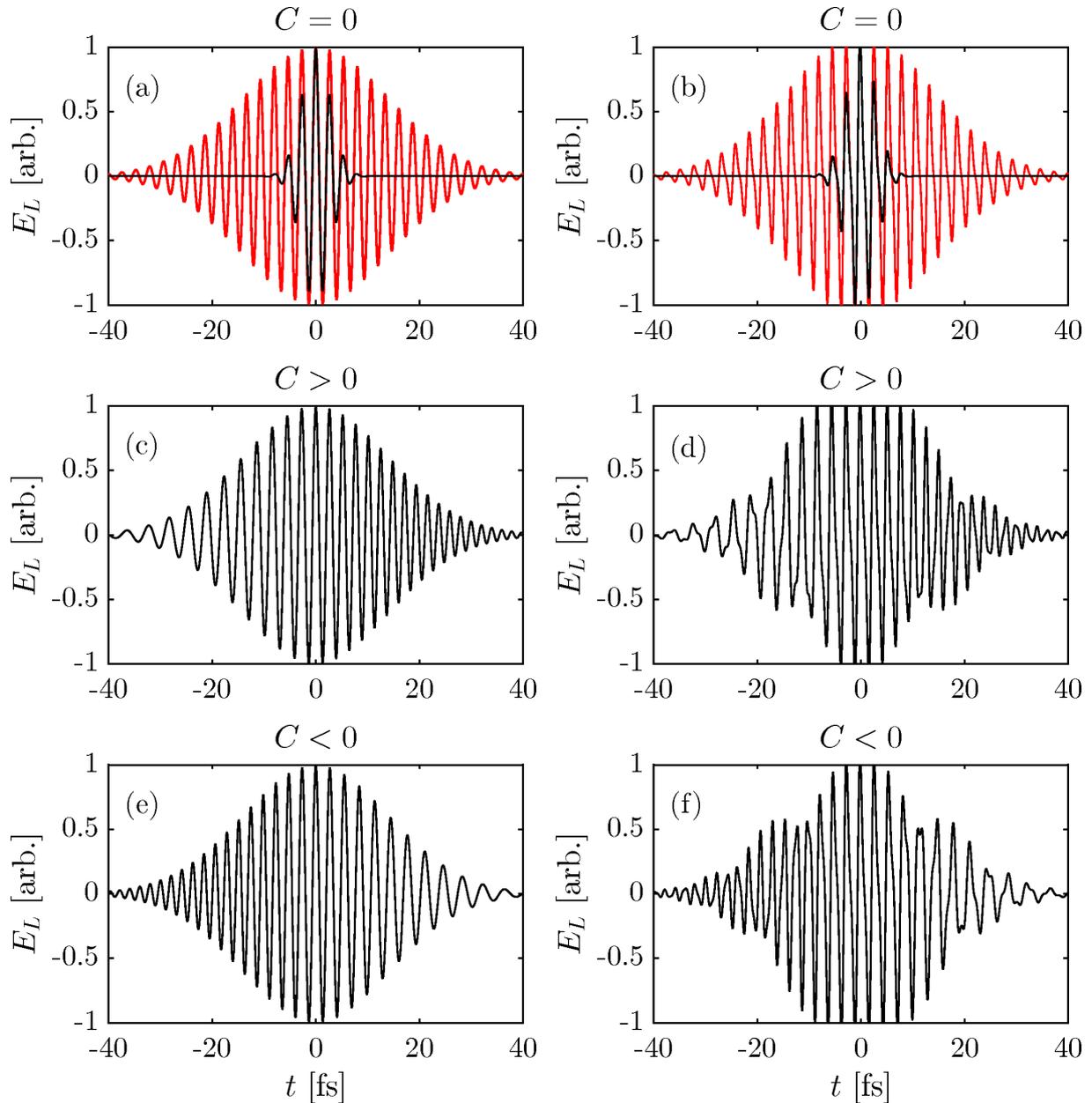


FIGURE 3.1 – Illustration de l’effet d’un chirp ($C = 5$) sur une impulsion laser à une couleur (colonne de gauche) ou deux couleurs (colonne de droite). Dans cette seconde configuration, les deux couleurs sont déphasées de $\pi/2$. (a,b) Profil temporel du champ sans chirp, de même durée $\tau_C = 20$ fs que les champs chirpés (courbe rouge), ou “transform limited” de durée τ_0 (courbe noire, voir texte). (c,d) Profil temporel du champ laser avec un chirp positif. (e,f) Profil temporel du même champ avec un chirp négatif.

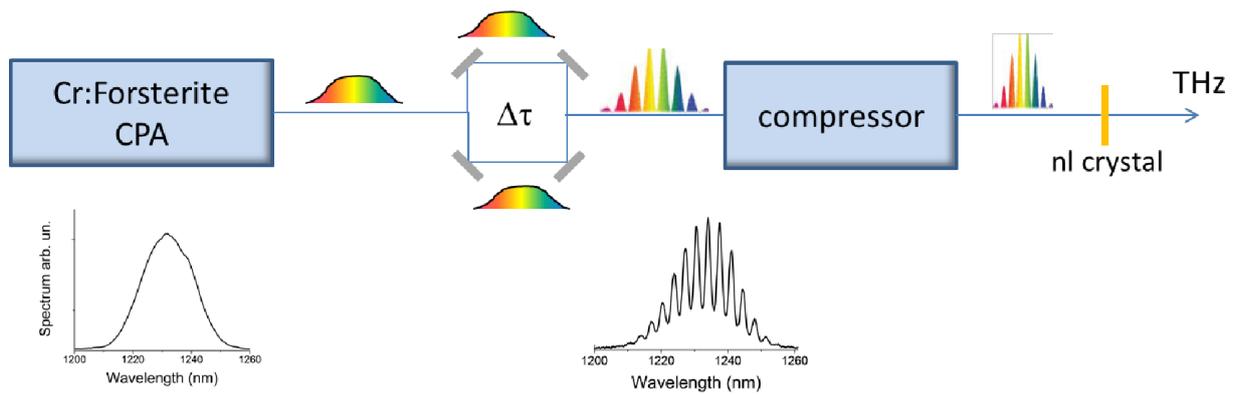


FIGURE 3.2 – Schéma expérimental et spectres associés pour la génération de rayonnement THz par mélange de deux impulsions chirpées dans un cristal organique. L'impulsion laser amplifiée d'un laser CPA Cr:forsterite est divisée et retardée au moyen d'un interféromètre de type Mach Zehnder avant sa recompression sur quelques picosecondes ou moins. La fréquence de battement des deux impulsions chirpées est sélectionnée en faisant varier le retard. Le spectre du fondamental est indiqué en insert, ainsi qu'un exemple de spectre contenant la fréquence de battement ce qui forme un train d'impulsions dans le domaine temporel. Ce train d'impulsions est utilisé pour la production de champs THz à bande étroite à partir d'un cristal organique nonlinéaire. Source : Vicario [101].

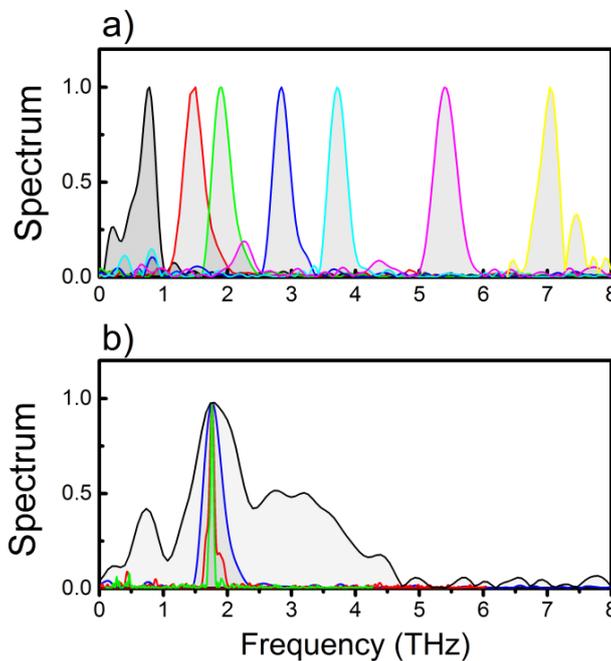


FIGURE 3.3 – Spectres THz obtenus par mélange de deux impulsions chirpées dans un cristal organique (DSTMS). (a) Influence du retard (de l'ordre de la picoseconde pour des impulsions de durée 4 ps) entre les deux impulsions sur la fréquence centrale des spectres. Plus le retard est important, plus la fréquence centrale est élevée. (b) Influence du chirp sur la largeur des spectres THz. Le chirp est varié de telle sorte que la durée des impulsions est augmentée de 120 fs à 20 ps, ce qui permet d'atteindre dans ce dernier cas une fine largeur de bande de 45 GHz. Source : Vicario [101].

afin de permettre une grande accordabilité dans la sélection des cycles d'oscillation THz, leur fréquence centrale et de façon à moduler leur largeur spectrale sur plusieurs octaves. Tout ceci en réalisant de forts rendements de conversion laser-THz avec des champs élevés > 0.1 GV/m, et en évitant d'atteindre le seuil d'endommagement du cristal par le choix de matériaux à larges surfaces d'interaction. Le schéma de principe expérimental d'un tel dispositif combinant deux impulsions laser chirpées est représenté sur la figure 3.2. Les spectres THz expérimentaux peuvent être fortement modulés, avec une fréquence centrale pouvant se déplacer sur une dizaine de THz [les spectres pouvant être soit larges dans le cas d'impulsions non chirpées (TL), soit réduits à des pics étroits d'extension inférieure à 1 THz dépendant du chirp] en fonction du retard appliqué entre les deux impulsions, comme le montrent les figures 3.3(a,b).

Comparés aux émetteurs à base de cristaux, les plasmas créés dans l'air par des impulsions femtosecondes à deux couleurs produisent des champs THz à bande ultra-large à partir de photocourants capables de fournir des intensités de champ élevées sans être limités par un seuil de dommages matériels. Leurs surfaces d'interaction restent petites, car définies par la tâche focale laser. Un autre avantage de cette technique est de créer une émission THz à distance en opérant dans le régime de filamentation [59, 33, 106]. Pour rendre la production de rayonnement THz par plasma d'air encore plus accordable et efficace, il est donc intéressant d'examiner les actions de techniques similaires de mise en forme d'impulsions sur les photocourants résultant de l'ionisation de l'air par des impulsions bicolores composées d'une fréquence harmonique fondamentale (FH) et de son second harmonique (SH). À ce sujet, il a été expérimentalement démontré que "chirper" une impulsion unique dans des filaments à deux couleurs améliore la génération d'ondes THz [107]. De plus, une augmentation de l'énergie THz a été rapportée plus tôt en utilisant des simulations particulières pour une seule couleur à haute intensité [105]. Par conséquent, combiner de manière appropriée plusieurs impulsions bicolores consécutives et modulées en phase devrait constituer une voie prometteuse vers des champs THz encore plus élevés.

À partir de la théorie LC, nous savons (cf chapitre 2) que les photocourants qui créent des spectres THz à large bande sont déterminés par le produit entre la densité électronique, qui augmente par pas dans le régime tunnel, et le champ électrique laser, accélérant les électrons aux instants d'ionisation. Nos estimations LC prévoient que le rendement THz des impulsions chirpées à deux couleurs peut être considérablement amélioré lorsqu'elles sont composées de sous-impulsions séparées par un retard approprié. Ces prédictions sont confirmées par des simulations 3D directes de faisceaux focalisés qui produisent des efficacités de conversion d'ordre de grandeur comparables aux résultats LC. Pour mieux comprendre cet effet, nous proposons une nouvelle méthode dérivée de la théorie LC et

basée sur le produit de convolution dans le domaine fréquentiel entre le champ laser et la densité électronique générée. Étant donné le spectre d'un champ laser d'entrée, l'efficacité potentielle de conversion laser-THz de ce dernier peut être rapidement testée en examinant simplement le spectre de la densité électronique associée aux couleurs principales du champ laser. Si on exploite des distances de propagation plus élevées, on constate que la filamentation laser modifie la distribution des impulsions d'entrée, affaiblissant ainsi la capacité prédictive de ce nouveau critère "optique". En dépit de cette limitation, nous verrons toutefois que les filaments chirpés bicolores augmentent localement le rendement THz grâce à un meilleur couplage entre les composantes FH et SH sur de longues distances de propagation. Cependant, les résultats de notre critère dit "optique" pourront encore s'avérer localement pertinents.

3.2 Critère "optique" pour évaluer l'efficacité de conversion laser-THz

3.2.1 Principe général

Afin de déterminer les meilleures configurations laser maximisant ou modulant les spectres THz, on développe un modèle issu de la théorie LC, qui ne prend donc pas en compte les effets de propagation et qui se base sur le couplage des composantes optiques du champ laser initial et de sa densité électronique associée. Au lieu d'exploiter la vitesse des électrons aux instants d'ionisations [39, 67, 14] comme nous le verrons dans le chapitre suivant, nous nous intéressons au produit de convolution entre le champ laser $\widehat{\mathbf{E}}_{\mathbf{L}}$ et sa densité électronique associée \widehat{N}_e^L autour des fréquences optiques $k\omega_0$, où k est ici un entier positif.

Ce produit de convolution est inhérent au modèle LC. En effet, à partir de l'équation (2.50), nous déduisons, à la constante g près, la transformée de Fourier du champ rayonné par le plasma :

$$\widehat{\mathbf{E}}_{\mathbf{J}}(\omega) = \frac{ge^2}{m_e(1 + i\nu_c/\omega)} \left(\widehat{N}_e^L * \widehat{\mathbf{E}}_{\mathbf{L}} \right) (\omega), \quad (3.2)$$

où $*$ désigne le produit de convolution fréquentiel.

Si les collisions sont négligées ($\nu_c \rightarrow 0$), le champ rayonné est donc proportionnel au produit de convolution en fréquence entre les spectres du champ laser et de la densité électronique associée. L'idée d'exploiter l'équation (3.2) est très simple : le produit de convolution entre une fonction f et une distribution de Dirac centrée en a étant $(f * \delta_a)(x) = f(x - a)$, si la transformée de Fourier en temps du champ laser est assimilée à une somme de Dirac centrés en $\pm k\omega_0$, la fréquence nulle (donc les fréquences basses

du spectre) sera produite par les termes de la forme $\widehat{\mathbf{E}}_{\mathbf{L}}(\pm k\omega_0)\widehat{N}_e^L(\mp k\omega_0)$, $k = 1, 2, \dots$, centrés sur les fréquences optiques. En optimisant la combinaison de ces termes, on peut donc anticiper et moduler le rendement THz basse-fréquence.

3.2.2 Configuration du champ laser incident

Nous considérons des combinaisons de K impulsions identiques séparées par un retard Δt et pouvant être chirpées en fréquence. Dans son expression la plus générale, le champ initial s’écrit donc sous forme vectorielle sur l’axe de propagation ($x = y = z = 0$) :

$$\mathbf{E}_{\mathbf{L}}(t) = E_0 \sum_{k=0}^{K-1} \sum_{n=1}^N F\left(\frac{t_k}{\tau_n}\right) \mathbf{E}_{\mathbf{n}} \cos\left(n\omega_0 t_k + \phi_n + 2C_n \ln 2 \frac{t_k^2}{\tau_n^2}\right), \quad (3.3)$$

où $E_0 = \sqrt{2I_0/c\epsilon_0}$ est l’amplitude du champ laser défini en fonction de son intensité I_0 , $t_k \equiv t - k\Delta t$ et $\mathbf{E}_{\mathbf{n}} = E_n \mathbf{e}_{\mathbf{n}}$ avec E_n et $\mathbf{e}_{\mathbf{n}}$ l’amplitude relative et le vecteur unité définissant l’état de polarisation de la n ième harmonique. La fonction F définie par $F(u) = \exp(-2 \ln 2 u^2)$ désigne l’enveloppe gaussienne imposée à chaque impulsion. La longueur d’onde du fondamental $\lambda_0 = 2\pi c/\omega_0$ est fixée à 800 nm. Chaque impulsion contient N couleurs avec des phases relatives ϕ_n . L’énergie (fluence en 0D) totale $U_L \equiv c\epsilon_0/2 \int_{-\infty}^{+\infty} |E_L(t)|^2 dt$ est maintenue constante, de telle sorte que, en fonction du nombre et de l’espacement des K sous-impulsions, l’intensité maximale peut varier d’une configuration à une autre.

Les durées et facteurs de chirp des différents harmoniques peuvent être choisis de différentes manières. Par exemple, chaque couleur peut avoir la même durée à mi-hauteur $\tau_n = \tau$ et le même facteur de chirp $C_n = C$. Ce choix garantit la même largeur spectrale des harmoniques avec ou sans chirp. Cependant, la phase d’un harmonique varie le long de l’impulsion, ce qui peut être préjudiciable à une génération de rayonnement THz optimale, les photocourants privilégiant un déphasage de $\pi/2$ entre les couleurs préservé tout le long du profil laser. En revanche, si la phase des couleurs est fixée en temps le long de l’impulsion, l’élargissement spectral des harmoniques diffère entre les couleurs lorsqu’un chirp est appliqué, ce qui peut rendre une superposition des couleurs plus difficile à mettre en oeuvre.

Les figures 3.4(a,b,c) illustrent ces différentes configurations pour deux sous-impulsions contenant chacune deux couleurs. Sur la figure 3.4(a), les deux sous-impulsions sont superposées ($\Delta t = 0$), la deuxième couleur est plus courte en temps que la première ($\tau_2 = \tau_1/\sqrt{2}$), soit $\tau_1 \simeq 165$ fs et $\tau_2 \simeq 117$ fs pour un facteur de chirp $C_2 = C_1 = 4$ affectant une impulsion TL ($C = 0$) de durée $\tau_0 = 40$ fs. Cette configuration est représentative d’un second harmonique généré par un cristal BBO [13]. La phase relative de $\pi/2$ est

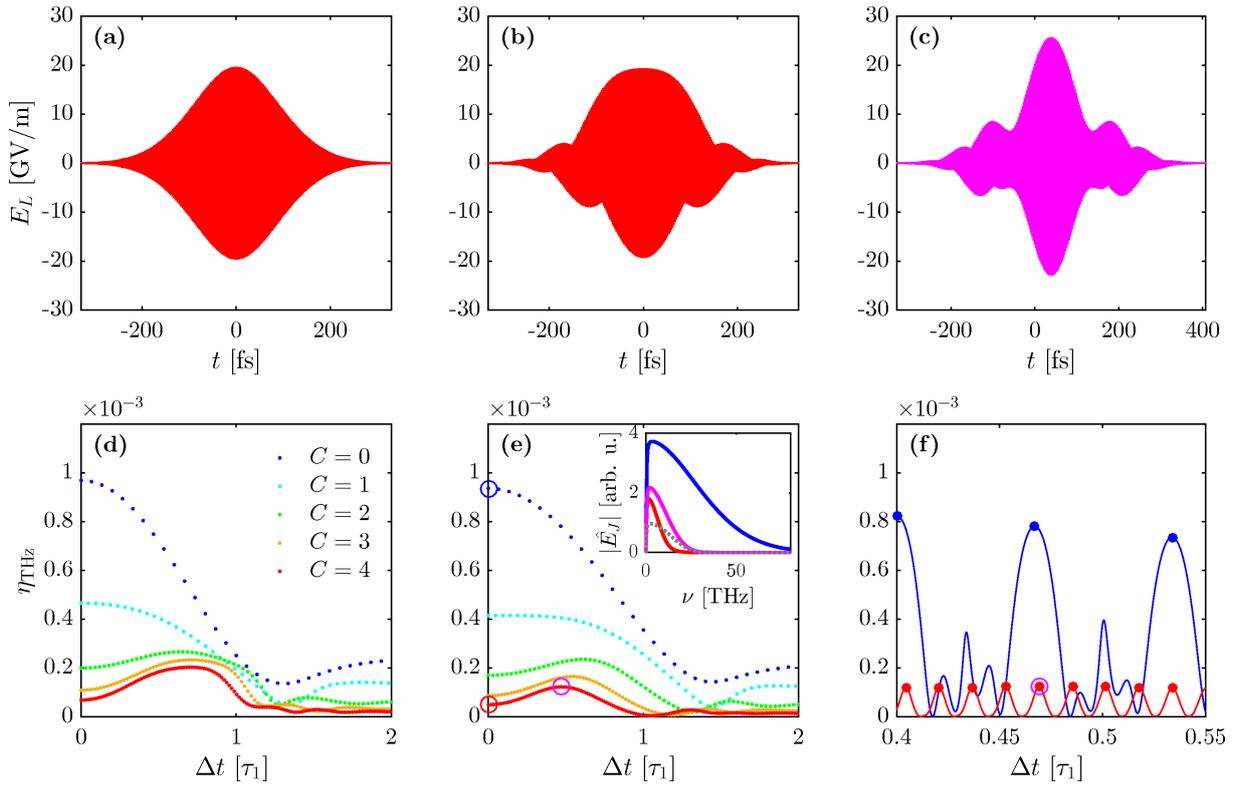


FIGURE 3.4 – (a,b,c) Profils des champs laser de l'équation (3.3) avec $K = N = 2$, $E_1 = \sqrt{0.9}$, $E_2 = \sqrt{0.1}$, $\phi_1 = 0$, $\phi_2 = \pi/2$, $C_1 = C_2 \equiv C = 4$ pour (a) $\tau_2 = \tau_1/\sqrt{2}$, $\Delta t = 0$, (b) $\tau_2 = \tau_1$, $\Delta t = 0$ ou (c) $\tau_2 = \tau_1$, $\Delta t = 0.47\tau_1$. (d,e,f) Efficacité de conversion η_{THz} [équation (2.91)] en fonction du retard entre deux sous-impulsions exprimé en cycle optique $2\pi/\omega_0$ pour différentes valeurs de chirp C_n et (d) $\tau_2 = \tau_1/\sqrt{2}$ ou (e) $\tau_2 = \tau_1$. Les trois cercles colorés représentent les configurations simulées en 3D dans les figures 3.6 et 3.7. Les trois spectres associés utilisant l'équation (3.2) sont tracés dans l'insert. La ligne en pointillés gris dans l'insert représente le spectre pour $C_1 = C_2 = 4$ et $\Delta t = 0.47\tau_1$. (f) Zoom de (e) sur des valeurs de retard Δt évoluant continûment.

constante le long de l'impulsion, mais l'élargissement spectral n'est pas le même entre les deux couleurs. La figure 3.4(b), au contraire, montre la même configuration mais avec une même durée d'impulsion entre les deux couleurs $\tau_2 = \tau_1 \simeq 165$ fs. Cette configuration ne permet pas de préserver une phase constante entre les deux couleurs le long de l'impulsion, à l'exception du centre, mais les largeurs spectrales sont les mêmes entre les deux harmoniques. Sur la figure 3.4(c), cette même configuration est tracée avec des sous-impulsions séparées par un retard non nul $\Delta t = 0.47\tau_1$, ce qui correspond à un nombre optimal entier de cycles optiques qui augmente la valeur maximale du champ laser et réduit sa largeur à mi-hauteur.

Pour prédire les meilleures configurations de champ laser, on utilise la définition du rendement THz donnée par l'équation (2.91), avec une fréquence de coupure $\nu_{\text{THz}} = 80$ THz dans tout ce chapitre. Par ailleurs, on rappelle que la constante g introduite dans le

champ \widehat{E}_J de l’équation (3.2) est une constante de couplage difficile à évaluer car dépendant du volume plasma. Nous souhaitons ici obtenir des évaluations de rendements THz relatives entre deux configurations. De plus, pour une même énergie initiale d’impulsion entre deux configurations, la défocalisation par le plasma en 3D est attendue limiter les intensités pics, ce qui contraint la densité électronique à des niveaux comparables entre les deux configurations étudiées [67]. Nous choisissons donc de fixer la constante g comme facteur de normalisation par rapport au maximum de la densité électronique atteinte :

$$g = \frac{m_e}{e^2 \max_t N_e^L}. \quad (3.4)$$

Une seconde et dernière étape de normalisation consiste à ajuster l’équation (2.91) à la valeur donnée par une configuration de base, c’est-à-dire par le champ THz issu de la simulation 3D de deux impulsions superposées et non chirpées en régime focalisé (voir section suivante).

L’efficacité de conversion laser-THz de l’équation (2.91) est tracée sur les figures 3.4(d,e) pour un paramètre de chirp identique pour chaque couleur $C_1 = C_2$, et un retard Δt entre les deux sous-impulsions. Sur cette figure, η_{THz} est représentée pour un retard discrétisé en unités de cycles optiques du fondamental $2\pi/\omega_0$ pour la même fluence initiale de 3.6 J/cm^2 . La durée de la deuxième couleur est $\tau_2 = \tau_1/\sqrt{2}$ sur la figure 3.4(d) et $\tau_2 = \tau_1$ sur la figure 3.4(e). L’efficacité de conversion est similaire pour les deux types d’impulsion, bien qu’une phase constante le long de l’impulsion permette d’atteindre des rendements un peu plus élevés. Cependant, pour des raisons de simplicité, en particulier pour la mesure du retard entre les impulsions en nombres entiers de cycles optiques du fondamental et des autres harmoniques, nous choisissons la configuration $C_2 = C_1 \equiv C$ et $\tau_2 = \tau_1 \equiv \tau$. Dans la suite, toutes les composantes optiques ont la même durée à mi-hauteur $\tau = \sqrt{1 + C^2}\tau_0$ avec $\tau_0 = 40 \text{ fs}$ désignant la durée la plus courte (TL). Sur la figure 3.4(e), on observe une augmentation de l’efficacité THz si $\Delta t = 0.47 \tau$ en utilisant un facteur de chirp $C = 4$, ce qui correspond à 29 cycles optiques exactement. Δt doit nécessairement être un nombre entier de cycles optiques pour pouvoir faire interférer les deux sous-impulsions constructivement et atteindre des rendements THz importants. En effet, la figure 3.4(f) détaille les variations à petite échelle dans l’efficacité de conversion laser-THz, quand Δt évolue continûment et n’est pas limité aux nombres entiers de $2\pi/\omega_0$. Ces modulations fines dans le rendement THz montrent que pour optimiser la génération de rayonnement THz à travers des photocourants, un contrôle précis du retard entre les deux sous-impulsions dans un intervalle d’un cycle optique est nécessaire. Par comparaison, l’insert de la figure 3.4(e) montre une diminution nette du spectre THz lorsque le retard est $\Delta t = 0.4 \tau$ (voir la courbe en pointillés gris), ce qui ne correspond pas à un

nombre entier de cycles optiques. De plus, comme le montre la figure 3.4(e), le retard optimal dépend de la valeur du facteur de chirp. En comparant cette figure avec la figure 3.4(d), on remarque que le retard optimal varie aussi avec la durée du deuxième harmonique (dans une moindre mesure), ainsi qu'avec la phase relative entre les deux couleurs (non montré).

3.2.3 Un critère LC “tout-optique”

Pour expliquer les résultats précédents, nous avons élaboré un traitement qui revisite le modèle “local current” (LC) à partir des spectres incidents : spectre laser et spectre de la densité plasma associée. Ce traitement se référant essentiellement aux composantes de Fourier des harmoniques du laser est appelé “tout-optique”. Pour l'introduire, nous négligeons l'influence des enveloppes gaussiennes et choisissons un champ laser (3.3) à deux couleurs non chirpé avec une enveloppe carrée, soit $F(t) = 0$ pour $|t| > \tau/2$, de durée à mi-hauteur τ considérée identique pour toutes les sous-impulsions. Nous omettons aussi la nature vectorielle du champ que nous supposons polarisé linéairement et avec la même direction pour toutes les couleurs. Le spectre du champ laser se décompose sur la somme des contributions centrées en $\omega = \pm n\omega_0$, modulée par la figure d'interférence des K sous-impulsions, soit,

$$\widehat{E}_L(\omega) = E_0 \frac{\tau}{2} e^{i(K-1)\omega \frac{\Delta t}{2}} \frac{\sin(K\omega \Delta t/2)}{\sin(\omega \Delta t/2)} \sum_{\pm} \sum_{n=1}^N a_n e^{\pm i\phi_n} \text{sinc} \left[\frac{\tau}{2} (\omega \pm n\omega_0) \right]. \quad (3.5)$$

En introduisant cette expression dans l'intégrale venant de la convolution en fréquence de l'équation (3.2)

$$\widehat{N}_e^L * \widehat{E}_L(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \widehat{N}_e^L(\omega - \omega') \widehat{E}_L(\omega') d\omega', \quad (3.6)$$

il est facile de montrer que cette intégrale est construite à partir des composantes spectrales de la densité électronique aux fréquences $\omega \pm n\omega_0$:

$$\left| \widehat{N}_e^L * \widehat{E}_L(\omega) \right| \approx \pi E_0 \left| \sum_{\pm} \sum_{n=1}^N a_n e^{\pm i\phi_n} \frac{\sin(nK\omega_0 \Delta t/2)}{\sin(n\omega_0 \Delta t/2)} \widehat{N}_e^L(\omega \pm n\omega_0) \right|. \quad (3.7)$$

Dans l'équation (3.7), nous appliquons l'approximation selon laquelle nos impulsions laser contiennent un grand nombre de cycles optiques, soit $\omega_0 \tau \gg 1$. Comme $(a/\pi) \text{sinc}(ax) \rightarrow \delta(x)$ quand $a \rightarrow +\infty$, le spectre de l'impulsion est piqué aux fréquences optiques, alors que le spectre de \widehat{N}_e^L est plus large autour de ces mêmes fréquences. En considérant la partie basse-fréquence $\omega \ll \omega_0$ de l'équation (3.7), on remarque que le spectre THz est principalement déterminé par (i) le spectre optique connu à partir de l'impulsion initiale,

et (ii) le spectre de la densité des électrons libres évaluée aux harmoniques optiques à l’intérieur de leur largeur de bande respective. L’équation (3.7) explique par ailleurs la perte d’efficacité THz illustrée par la figure 3.4(f) quand Δt n’est pas un multiple de $2\pi/\omega_0$, ce qui provient d’interférences destructives décrites par le rapport des deux fonctions sinus.

Un raisonnement similaire prenant en compte les enveloppes gaussiennes ne peut pas être fait aussi directement. Malgré cela, nous pouvons toujours avoir des prévisions dans la limite basse-fréquence. Tout d’abord, puisque E_L et N_e^L sont des fonctions réelles du temps, leur transformée de Fourier ont une partie réelle paire et une partie imaginaire impaire. La connaissance de leur spectre pour $\omega \geq 0$ est donc suffisante. En utilisant le développement de Taylor $f(\omega' - \omega) = \sum_j (-\omega)^j \partial_{\omega'}^j f(\omega')/j!$ dans l’intégrale de convolution de l’équation (3.6), nous obtenons dans la limite $\omega \rightarrow 0$:

$$|\widehat{E}_L * \widehat{N}_e^L|_{\omega \rightarrow 0} = 2 \left| \int_0^{+\infty} [\widehat{R}(\omega') + \widehat{I}(\omega')] d\omega' \right| + O(\omega^2), \quad (3.8)$$

où

$$\widehat{R} \equiv \text{Re}(\widehat{N}_e^L) \text{Re}(\widehat{E}_L) \quad (3.9)$$

et

$$\widehat{I} \equiv \text{Im}(\widehat{N}_e^L) \text{Im}(\widehat{E}_L). \quad (3.10)$$

Notons que, par rapport à une analyse en ondes planes admettant comme condition de validité $\omega \ll \omega_0$, notre équation (3.8) appliquée à des impulsions optiques avec des enveloppes temporelles est en principe valide si le spectre de $N_e^L E_L$ est piqué autour de $\omega = 0$. Dans l’équation (3.8), l’ordre en $O(\omega^2)$ vient du module au carré de la partie réelle de $\widehat{E}_L * \widehat{N}_e^L$ variant en $\sim O(1)$ et de la partie imaginaire variant en ω impliquant les termes croisés (Re-Im). Appliquer un développement de Taylor direct aux petits ω en prenant la racine carrée préserve la dépendance en $O(\omega^2)$ du module dans l’équation (3.8).

Lorsque les contributions du second ordre en ω^2 sont négligées, nous sommes alors les intégrandes de l’équation (3.8) autour des fréquences optiques dans un petit intervalle, par exemple $\epsilon = \pm\omega_0/10$, représentatif de l’élargissement spectral du fondamental. Cela nous conduit à extraire un facteur d’efficacité en amplitude sans dimension et normalisé de façon homogène avec l’équation (3.4) :

$$\gamma_{\text{THz}} \approx \frac{2 \left| \sum_n \int_{n\omega_0 - \epsilon}^{n\omega_0 + \epsilon} [\widehat{R}(\omega) + \widehat{I}(\omega)] d\omega \right|}{\max_t N_e^L \sqrt{U_L}}. \quad (3.11)$$

Pour mieux visualiser les poids séparés des contributions réelles et imaginaires, nous traitons cette quantité uniquement à partir du module du produit de convolution, ce

qui revient à évaluer en quelque sorte la racine carrée de l'équation (2.91). L'équation (3.11) est le résultat principal de cette nouvelle approche analytique. Elle indique qu'à partir de la connaissance des parties réelle et imaginaire du spectre du champ laser initial et de la réponse plasma associée aux fréquences optiques, nous pouvons en déduire les configurations d'impulsion optimales pour la génération de rayonnement THz.

La figure 3.5 montre différents exemples d'utilisation de l'équation (3.11).

Le premier illustre l'influence de la phase relative entre les deux couleurs sur le rendement THz. La figure 3.5(a) montre le facteur γ_{THz} dans lequel les intégrales de \hat{R} et \hat{I} ont été séparées. Trois valeurs de phase relative sont testées (0 , $\pi/4$ et $\pi/2$). Nous retrouvons le caractère nominal du déphasage de $\pi/2$ entre les deux couleurs pour la production de rayonnement THz par photocourants [58], qui induit une augmentation de N_e à la fréquence fondamentale, et donc de \hat{R} . Ce comportement s'explique de la même façon que dans le paragraphe 2.1.4.6.1 : comme l'ionisation a lieu aux extrema du champ laser, le taux d'ionisation est, au premier ordre, proportionnel au carré du champ contenant une impulsion à N couleurs, sans chirp et dans lequel l'influence de l'enveloppe a été négligée :

$$W(t) \propto E_L(t)^2 = \frac{E_0^2}{2} \sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^N E_n E_m \{ \cos[(n+m)\omega_0 t + \phi_n + \phi_m] + \cos[(n-m)\omega_0 t + \phi_n - \phi_m] \}. \quad (3.12)$$

La densité électronique, variant comme l'intégrale du taux d'ionisation, est donc proportionnelle à

$$N_e(t) \propto \frac{E_0^2}{2\omega_0} \sum_{n=1}^N \left\{ \sum_{m=1}^N E_n E_m \frac{\sin[(n+m)\omega_0 t + \phi_n + \phi_m]}{n+m} + \sum_{\substack{m=1 \\ m \neq n}}^N E_n E_m \frac{\sin[(n-m)\omega_0 t + \phi_n - \phi_m]}{n-m} + E_n^2 \omega_0 t \right\}. \quad (3.13)$$

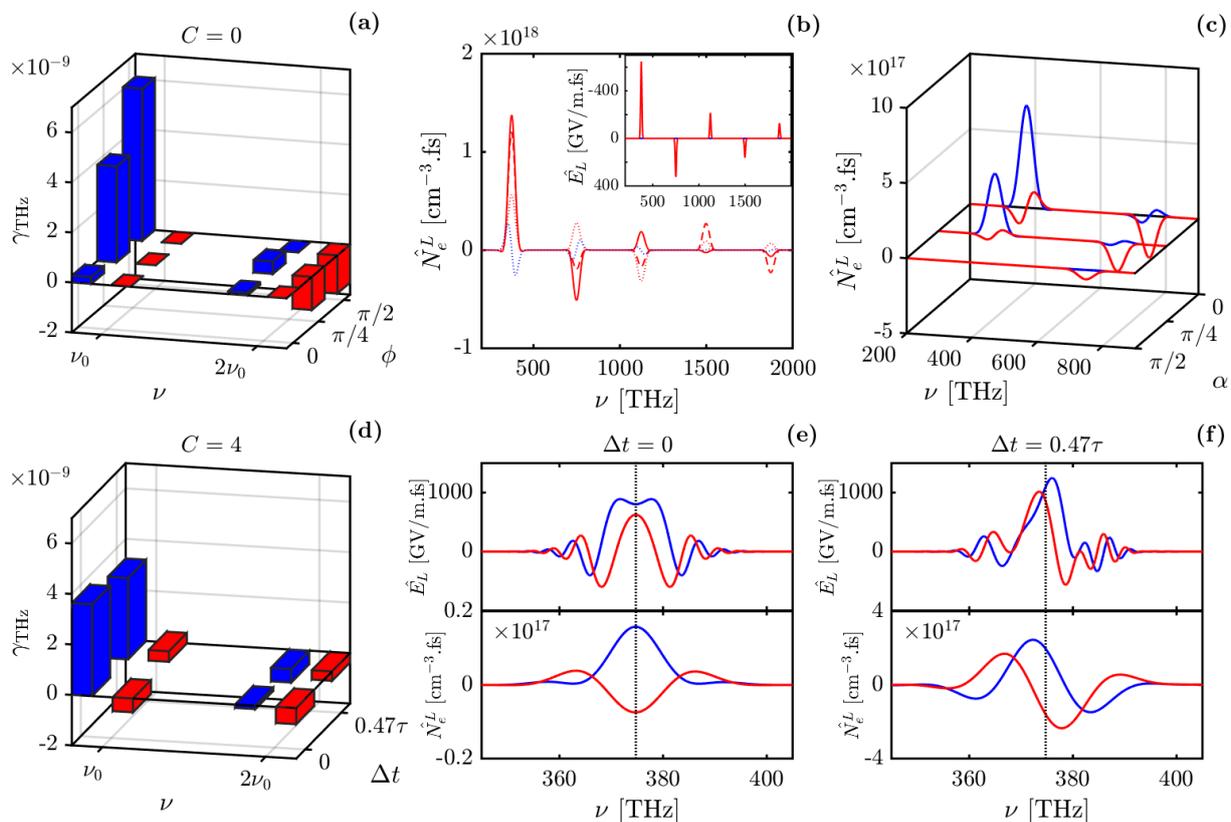


FIGURE 3.5 – Intégrales des contributions réelles (\hat{R}) et imaginaires (\hat{I}) de l’équation (3.11) tracées comme des cubes ou des courbes bleus ou rouges, respectivement. (a) Efficacité de conversion [équation (3.11)] pour des phases relatives de 0 , $\pi/4$ et $\pi/2$ pour des impulsions gaussiennes à deux couleurs non chirpées. (b) Spectre de la densité électronique pour un profil en dents de scie approché par deux (pointillés), quatre (tirets) ou huit couleurs (ligne solide). L’insert montre \hat{E}_L . Les courbes pointillées bleues correspondent aux parties réelles. (c) Spectre de la densité électronique pour deux couleurs avec un angle de polarisation α entre les deux couleurs variant entre 0 et $\pi/2$. La phase relative $\phi_2 - \phi_1$ est égale à $\pi/2$. (d) Efficacité THz issue de l’équation (3.11) pour deux impulsions chirpées ($C = 4$) superposées ou retardées de $\Delta t = 0.47\tau$. (e,f) Spectre du champ laser (haut) et de la densité électronique (bas) autour des fréquences FH pour deux impulsions chirpées ($C = 4$) étant soit (e) superposées ou (f) retardées par 0.47τ .

D'où

$$\begin{aligned}
 E_L(t)N_e(t) \propto & \frac{E_0^3}{4\omega_0} \sum_{n=1}^N \sum_{k=1}^N E_n E_k \times \\
 & \left\{ \begin{aligned}
 & \sum_{m=1}^N E_m \frac{\sin[(n+m+k)\omega_0 t + \phi_n + \phi_m + \phi_k] + \sin[(n+m-k)\omega_0 t + \phi_n + \phi_m - \phi_k]}{n+m} \\
 & + \sum_{\substack{m=1 \\ m \neq n}}^N E_m \frac{\sin[(n-m+k)\omega_0 t + \phi_n - \phi_m + \phi_k] + \sin[(n-m-k)\omega_0 t + \phi_n - \phi_m - \phi_k]}{n-m} \\
 & + 2\omega_0 t E_n \cos(k\omega_0 t + \phi_k) \end{aligned} \right\}. \quad (3.14)
 \end{aligned}$$

En ne gardant que les termes basses fréquences, soit $k = n + m$ dans le deuxième sinus, $k = m - n$ dans le troisième et $k = n - m$ dans le quatrième, il reste, après simplification,

$$\gamma_{\text{THz}} \propto \frac{1}{\omega_0} \sum_{n=1}^{N-1} \sum_{m=1}^{N-n} E_n E_m E_{n+m} \sin(\phi_n + \phi_m - \phi_{n+m}) \left(\frac{1}{n+m} - \frac{2}{m} \right), \quad (3.15)$$

ce qui se simplifie en $\gamma_{\text{THz}} \propto E_1^2 E_2 \sin(\phi_2 - 2\phi_1)/\omega_0$ dans le cas à deux couleurs.

Un deuxième exemple montre sur la figure 3.5(b) le spectre de la densité électronique calculée pour les premiers harmoniques d'une forme d'onde en dents de scie ("sawtooth" en anglais). Ce type de signal est connu pour maximiser le rendement THz pour un degré d'ionisation fixé [39]. Pour cette forme de champ laser, l'équation (3.3) s'écrit comme une unique impulsion ($k = 0$) impliquant un nombre croissant d'harmoniques avec $E_n = 1/n$ et $\phi_n = (-1)^n \pi/2$. La transformée de Fourier du champ laser est alors imaginaire pure avec des signes alternés, et donc seule la partie imaginaire de \widehat{N}_e^L contribue à l'efficacité THz. Plus on augmente le nombre d'harmoniques, plus la composante en ω_0 de la densité électronique est élevée. Par ailleurs, quand le nombre de couleurs augmente (ici jusqu'à huit), les harmoniques de \widehat{N}_e^L ont des signes et des amplitudes relatives qui coïncident de plus en plus avec ceux du champ laser, ce qui augmente le rendement THz. Cette croissance du rendement THz avec le nombre de couleurs est en accord avec ce qui avait été rapporté auparavant [39]. Cette propriété peut aussi être retrouvée en implémentant les amplitudes E_n et les phases ϕ_n d'un profil en dents de scie dans l'équation (3.15).

Le dernier exemple montré sur la figure 3.5(c) traite la nature vectorielle du champ laser à deux couleurs avec une phase relative de $\pi/2$. Dans cet exemple, la première couleur est polarisée linéairement suivant l'axe x , tandis que la seconde couleur a une

polarisation linéaire quelconque dans le plan (x, y) . On note α l'angle formé par les axes des polarisations des deux couleurs. Les amplitudes relatives (normalisées à E_0) des deux couleurs sont donc $\vec{E}_1 = E_1(1, 0)$, $\vec{E}_2 = E_2(\cos \alpha, \sin \alpha)$. Quand l'angle α augmente de 0 à $\pi/2$, la composante en ω_0 de la densité électronique chute. En effet, les événements d'ionisation ayant lieu aux maxima de $E_L^2(t)$, dont le fondamental est donné par $E_{L, FH}^2(t) \propto E_0^2 E_1 E_2 \cos(\omega_0 t + \pi/2) \cos \alpha$, le facteur d'efficacité peut donc s'écrire sous forme vectorielle $\vec{\gamma}_{\text{THz}} \propto E_1^2 E_2 \omega_0^{-1} (3 \cos \alpha, -\sin \alpha)$ [voir aussi l'équation (2.97)]. Par conséquent, lorsque les deux couleurs ont des axes de polarisation orthogonaux, le rendement THz chute, ce qui a été aussi rapporté dans les références [93, 11].

Enfin, nous appliquons notre critère (3.11) à l'étude d'impulsions laser chirpées et retardées entre elles. Les configurations sont celles montrées par la figure 3.4(e) où le facteur de chirp est $C = 4$ et les sous-impulsions sont soit superposées ($\Delta t = 0$), soit retardées ($\Delta t = 0.47\tau$). Les deux types d'impulsions ont la même énergie et une phase relative de $\pi/2$ entre les deux couleurs est appliquée. Le retard, quand il est non nul, est proportionnel à un nombre entier de cycles optiques comme recommandé dans les paragraphes précédents. Si l'on compare les figures 3.5(a) et 3.5(d), le facteur d'efficacité γ_{THz} avec $\Delta t = 0$ est plus faible pour une impulsion chirpée ($C \neq 0$) en raison de sa durée plus longue. En revanche, γ_{THz} est augmenté si l'on introduit un retard de 0.47τ entre les sous-impulsions chirpées, comme montré par la figure 3.5(d). Dans cette dernière configuration, une contribution positive de \hat{I} augmente γ_{THz} autour du fondamental. Le détail du produit de convolution donné par l'équation (3.8) est explicité sur les figures 3.5(e,f) autour du fondamental. Quand les deux sous-impulsions chirpées sont retardées de $\Delta t = 0.47\tau$, la partie imaginaire de \hat{N}_e^L a quasiment le même signe que \hat{E}_L . \hat{I} devient positive et augmente autour du fondamental, ce qui accroît ainsi le rendement total par rapport au cas $\Delta t = 0$. Il y a donc plus d'émission THz, ce qui justifie le gain rapporté dans la figure 3.4(e).

3.3 Simulations 3D en géométrie focalisée

Pour confirmer nos prévisions sur l'influence du chirp et du retard entre des sous-impulsions gaussiennes, nous avons réalisé des simulations UPPE [équation (2.123)] complètes incluant les photocourants, l'effet Kerr et l'effet Raman.

Pour l'effet Kerr, l'indice nonlinéaire a pour valeur $n_2 = 3.8 \times 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$ avec un ratio de 80% de réponse Raman [102, 112]. Le taux d'ionisation est celui de PPT appliqué à 80% de diazote et 20% de dioxygène.

Dans cette section, les impulsions sont focalisées par une lentille convergente de focale $f = 2.5 \text{ cm}$.

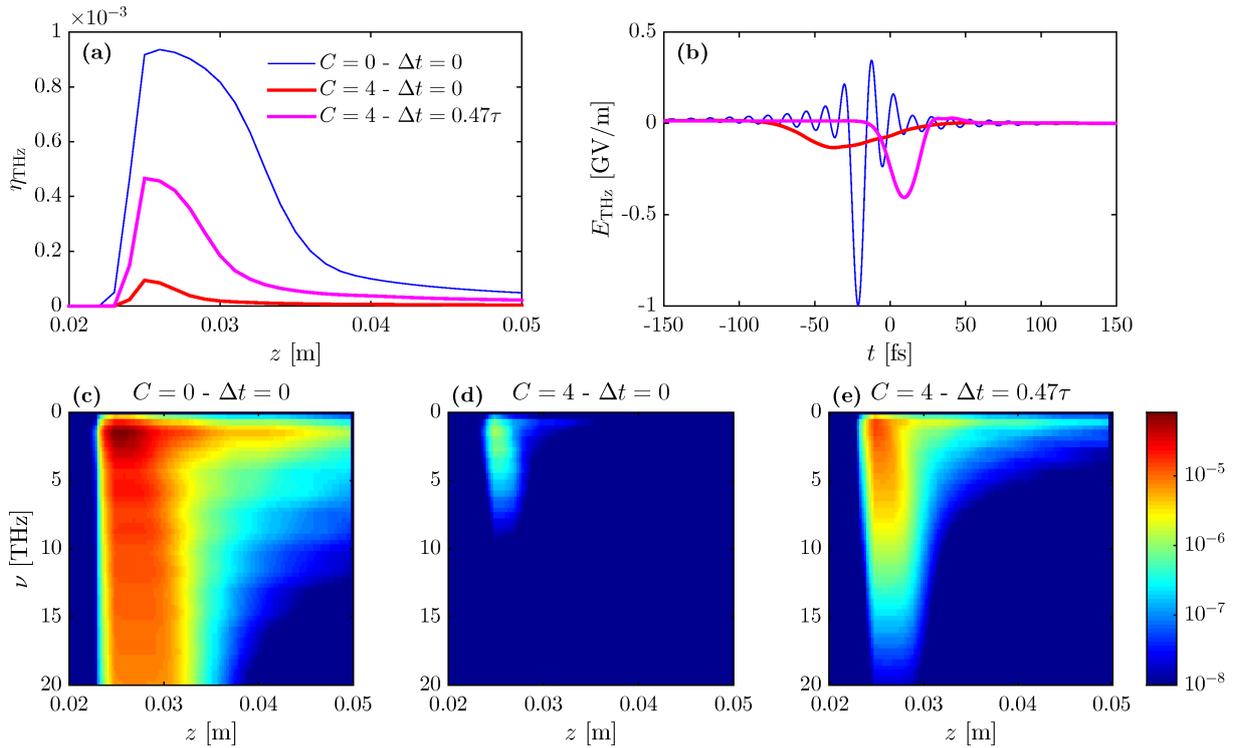


FIGURE 3.6 – (a) Efficacité de conversion laser-THz le long de l’axe de propagation obtenue à partir de simulations UPPE en régime focalisé ($f = 2.5$ cm) avec $C = 0$ (courbes bleues), $C = 4, \Delta t = 0$ (courbes rouges) et $C = 4, \Delta t = 0.47\tau$ (courbes magenta). (b) Champs THz sur l’axe correspondant calculés proches du plan focal ($z = 2.4$ cm) et filtrés dans la gamme de fréquences $\nu < 80$ THz. (c,d,e) Intensité spectrale moyennée transversalement (en unités arbitraires) et évoluant le long de l’axe de propagation pour (c) $C = 0$, (d) $C = 4, \Delta t = 0$ et (e) $C = 4, \Delta t = 0.47\tau$.

Trois configurations initiales sont utilisées : la première est une impulsion unique non chirpée ($C = 0$), les deux autres sont composées de deux sous-impulsions chirpées ($C = 4$) séparées par un retard qui est soit $\Delta t = 0$, soit $\Delta t = 0.47\tau$. Ces configurations sont représentées par des cercles sur les figures 3.4(e,f). Le champ initial est donné par l'équation (3.3) ($K = N = 2$) avec un profil transverse gaussien de largeur $w_0 = 0.5$ mm et une énergie de 0.2 mJ dont 10% de second harmonique. Les deux couleurs ont initialement le même contenu spectral, qu'elles soient chirpées ou non. La figure 3.6(a) montre la valeur numérique de l'équation (2.91) le long de l'axe de propagation, calculée à partir du champ THz simulé en 3D qui est extrait du champ électrique total par filtrage dans la fenêtre d'intérêt $\nu < 80$ THz. La variation de l'efficacité de conversion THz dans les trois configurations est en bon accord qualitatif avec notre efficacité de conversion basée sur la méthode LC et justifiée par notre critère "tout-optique". D'un point de vue plus quantitatif, *la propagation des impulsions amplifie les rendements de conversion jusqu'à 10^{-3}* . L'introduction d'un retard dans des impulsions chirpées identiques peut augmenter d'un facteur ~ 5 l'énergie THz résultante calculée pour $\nu < 80$ THz [figure 3.6(a)], qui affecte directement le champ THz [figure 3.6(b)]. Les figures 3.6(c, d, e) détaillent la propagation longitudinale des spectres THz moyennés sur la direction transverse et limités à 20 THz. Ceux-ci suivent les tendances indiquées dans l'insert de la figure 3.4(e). La largeur et l'intensité spectrales THz étant liées au nombre de cycles dans le champ laser ($\Delta\nu_{\text{THz}} \propto 1/\tau$), les impulsions chirpées présentent une largeur de bande plus étroite et des champs plus faibles. Cependant, les retarder mutuellement de 0.47τ [voir figure 3.6(e)] amplifie sensiblement le spectre THz et le champ émis, comme prévu précédemment par la figure 3.4(e). Notons, pour expliquer la figure 3.6(b), que le champ THz avec $C = 0$ présente un spectre THz plus large et développe donc des fréquences plus élevées que celles produites par les impulsions chirpées.

3.4 Simulations 3D en régime de filamentation

Dans cette section, nous étudions la propagation d'impulsions laser chirpées et retardées sur des distances de propagation plus grandes en régime de filamentation. Les paramètres laser et du milieu sont les mêmes que précédemment, excepté la largeur transverse initiale du faisceau qui est désormais de 1 mm. Le faisceau est collimaté ($f = +\infty$) et l'énergie laser est augmentée à 4.5 mJ avec 10% de SH. Comme en témoigne la figure 3.7(a), chirper de telles impulsions permet d'accroître la zone d'auto-focalisation et donc celle de génération de plasma [70] par augmentation du nombre de tranches de temps soumises à une auto-focalisation et à une ionisation. Bien que les impulsions non chirpées créent les densités plasma les plus élevées et les spectres les plus larges, les impulsions

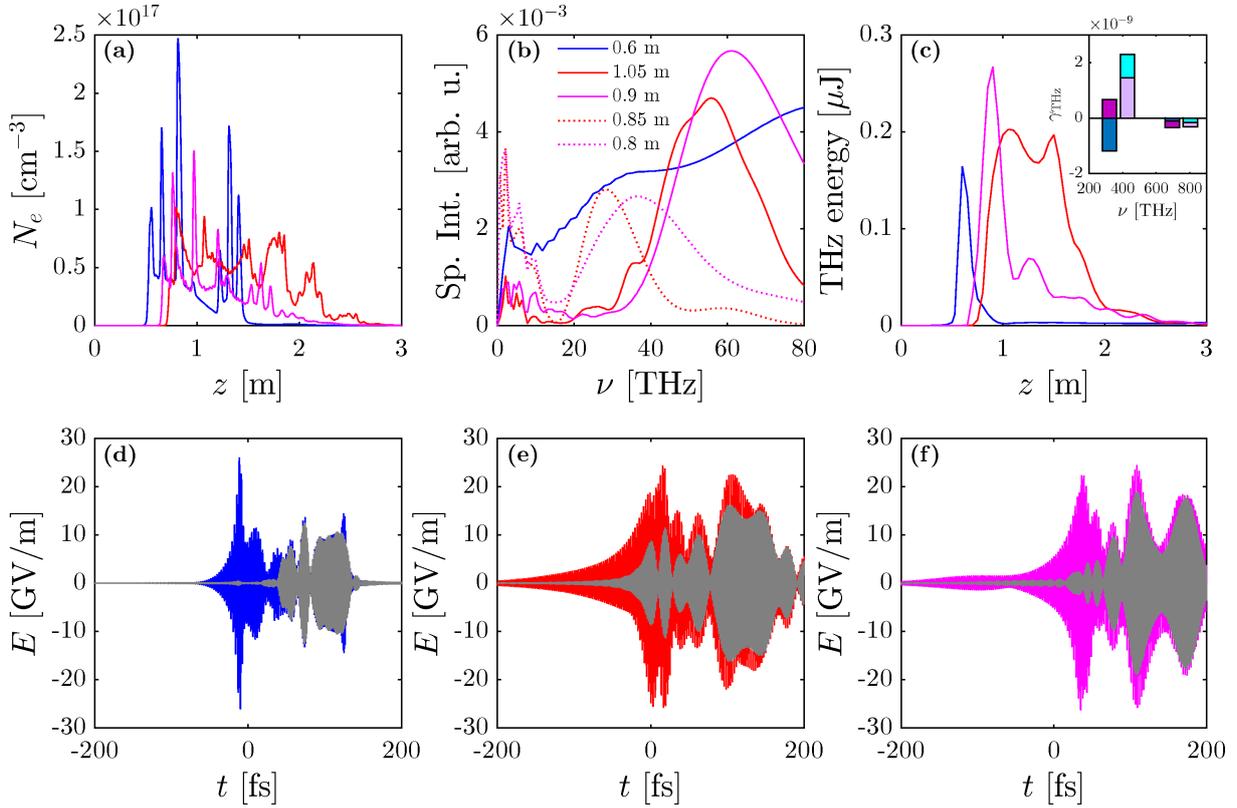


FIGURE 3.7 – Simulations 3D UPPE en régime de filamentation avec $C = 0$ (courbes bleues), $C = 4$, $\Delta t = 0$ (courbes rouges) and $C = 4$, $\Delta t = 0.47\tau$ (courbes magenta). (a) Densité électronique pic, (b) intensité spectrale moyennée dans le plan transverse et calculée aux distances d’émission THz maximale, et (c) énergie THz le long de l’axe de propagation ($\nu < 80$ THz). L’insert montre γ_{THz} pour $C = 0$ (carrés bleu foncé/clair) et $C = 4$ (carrés violet foncé/clair) avec $\Delta t = 0$ calculé avec le critère “tout-optique” à partir des données numériques des spectres du champ électrique et de la densité électronique aux distances d’émission THz maximale (les aires colorées foncées et claires font référence aux contributions \hat{R} et \hat{I} , respectivement). (d-f) Champ laser à $z = 1$ m (aires bleues, rouges ou magenta) avec la composante du second harmonique (aires grises) pour (d) $C = 0$, (e) $C = 4$, $\Delta t = 0$ et (f) $C = 4$, $\Delta t = 0.47\tau$.

chirpées aident à sélectionner une fenêtre THz plus étroite, centrée par exemple autour de 60 THz sur la figure 3.7(b). Notons que dans cette figure, les pics THz à basse fréquence ($\nu \rightarrow 0$) sont toutefois partiellement supprimés en raison de contraintes imposées par notre boîte spatiale numérique finie [67]. Les plus petites fréquences s'échappent en effet de la boîte dans la direction transverse et en temps à des distances de propagation suffisamment longues. Les impulsions chirpées retardent l'auto-focalisation par effet Kerr puisque leur puissance initiale est proportionnelle à $P_C = P_{C=0}/\sqrt{1+C^2}$. Elles accumulent plus d'énergie THz sur de longues distances de propagation [voir la figure 3.7(c)], où l'énergie THz maximale dépasse désormais celle délivrée par l'impulsion TL. Ce comportement est à nouveau en accord avec le facteur d'efficacité γ_{THz} [équation (3.11)] calculé à partir de nos données numériques prises à la distance d'émission THz maximale (voir insert), qui augmente considérablement près de la fréquence fondamentale. Le rendement THz est encore plus élevé quand on introduit un retard de 0.47τ entre deux sous-impulsions chirpées (courbe magenta). Ces propriétés sont mises en évidence par la figure 3.7(b), où les lignes pleines représentent les spectres THz calculés à l'émission maximale pour une fenêtre de 80 THz. Comme les rayonnements THz s'échappent de la boîte transverse au cours de leur propagation, les spectres des impulsions chirpées aux distances maximisant une plage de fréquences de 20 THz sont également tracés en lignes pointillées (cette distance reste inchangée pour $C = 0$). Ces spectres restent en accord avec ce qui a été présenté précédemment. L'augmentation du rendement THz par des impulsions chirpées s'explique physiquement par la dérive de la deuxième couleur à l'intérieur du champ total. En effet, le couplage en temps entre les deux couleurs du champ laser s'atténue par "walk-off" temporel (ou décalage dispersif) après propagation sur ~ 1 m [figure 3.7(d)], car la disparité de vitesse de groupe ($\simeq 81$ fs/m) entre les impulsions de 800 nm et 400 nm est relativement grande. En revanche, puisqu'un chirp module le contenu spectral des impulsions [voir, par exemple, les figures 3.5(e,f)], un couplage temporel efficace peut être maintenu sur de plus longues distances pour des impulsions chirpées, comme on peut le voir sur la figure 3.7(e). Un meilleur couplage au niveau le plus élevé des extrema est même obtenu quand on retarde initialement les deux impulsions chirpées [figure 3.7(f)].

Contrairement aux performances THz des impulsions focalisées qui se propagent sur quelques centimètres [voir figure 3.6(a)], utiliser la filamentation sur de grandes distances d'impulsions chirpées et retardées permet d'accroître le rendement THz comparés aux impulsions non-chirpées [figure 3.7(c)]. Nous attribuons cette propriété à une génération plus efficace d'un super-continuum créé par auto-modulation de phase qui enrichit le spectre THz sur de grandes distances. Un exemple illustratif est donné sur la figure 3.8, qui montre les spectres des impulsions correspondant aux figures 3.6(c,e) et aux figures 3.7(d,f) pour des propagations sur de courtes ou longues distances, respectivement, dans

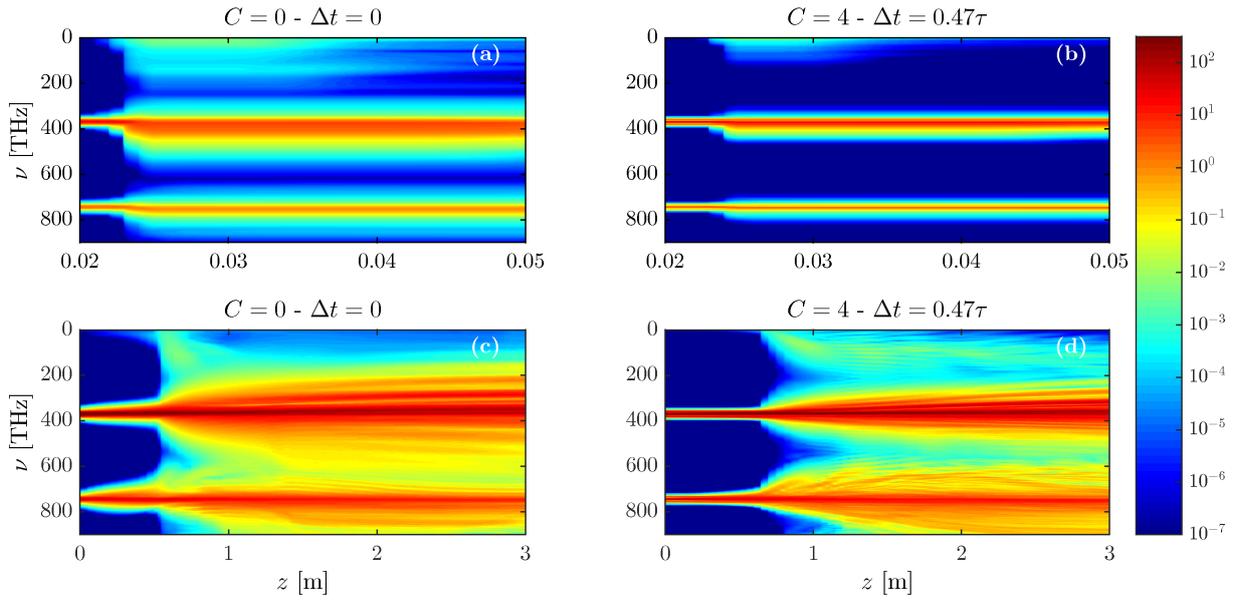


FIGURE 3.8 – Spectres le long de l’axe de propagation pour les impulsions simulées en figure 3.6 avec (a) $C = 0, \Delta t = 0$ et (b) $C = 4, \Delta t = 0.47\tau$ en régime focalisé. (c,d) Même information avec les configurations de la figure 3.7 en régime de filamentation. L’émission THz aux petites fréquences est amplifiée dans cette dernière configuration.

les cas $C = 0, \Delta t = 0$ et $C = 4, \Delta t = 0.47\tau$. Le spectre THz, qui est réduit lors de l’application d’un chirp en régime focalisé, semble bénéficier d’un meilleur couplage entre les composantes optiques élargies sur les grandes distances obtenues en filamentation.

La figure 3.9 montre les mêmes spectres en régime de filamentation que sur les figures 3.8(c,d) et inclut en outre le cas correspondant à la figure 3.7(e). La partie grisée correspond aux régions du spectre séparées du fondamental par un retard de plus de 2τ . Ce retard est calculé à partir de la phase des spectres $\phi(\omega)$ définie par $\hat{E}(\omega) = |\hat{E}(\omega)|e^{i\phi(\omega)}$. Le temps $t_0(\omega)$ correspondant est alors la dérivée fréquentielle de la phase $t_0(\omega) = d_\omega\phi(\omega)$. La figure 3.9 montre les zones du spectre où $t_0(\omega) - t_0(\omega_0)$ est supérieur à 2τ , intervalle en temps au-delà duquel les deux couleurs sont effectivement séparées. On remarque que dans le cas d’une impulsion non chirpée, les deux couleurs sont rapidement séparées temporellement, contrairement aux impulsions chirpées.

Enfin, la figure 3.10 montre des caractéristiques intéressantes sur le signe du facteur de chirp et des écarts temporels plus grands entre les sous-impulsions. Le rendement THz issu d’une impulsion chirpée positivement est plus élevé de $\sim 30\%$ que celui issu d’une impulsion chirpée négativement, comme détaillé sur la figure 3.10(a). Ceci est justifié par le fait que la phase relative entre les deux couleurs, calculée à partir de la phase spectrale $\phi(\omega) = \phi(2\omega) - 2\phi(\omega)$ à $\omega = \omega_0$, est plus proche de la valeur optimale de $\pi/2$ à la distance de production maximale de THz (voir la ligne verticale) dans le cas d’un chirp positif. Cette propriété a été vérifiée pour différentes configurations d’impulsions, et elle est en

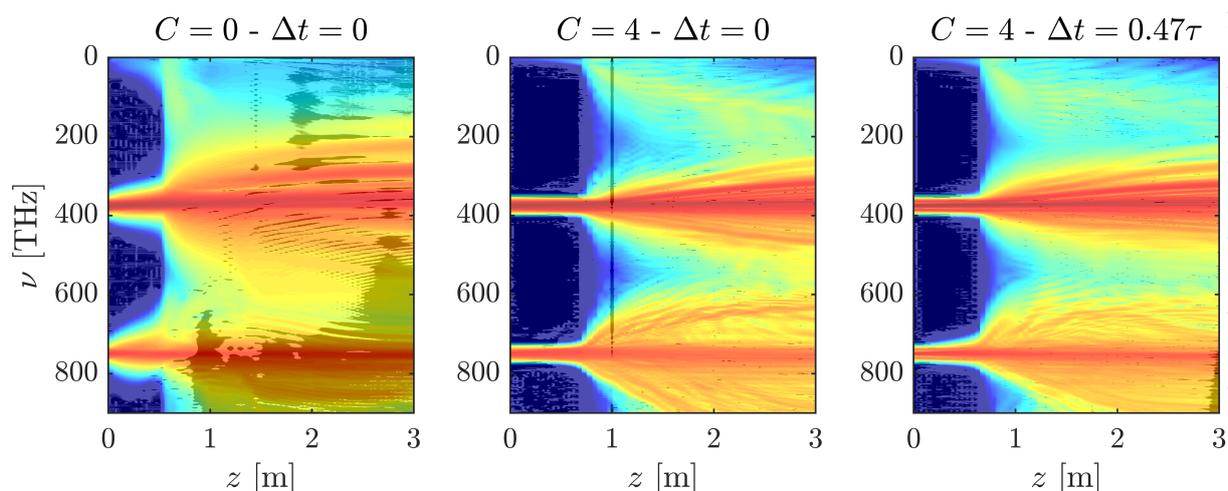


FIGURE 3.9 – Spectres le long de l’axe de propagation pour les trois configurations de la figure 3.7 en régime de filamentation. Les parties grisées correspondent aux régions du spectre séparées temporellement du fondamental de 2τ .

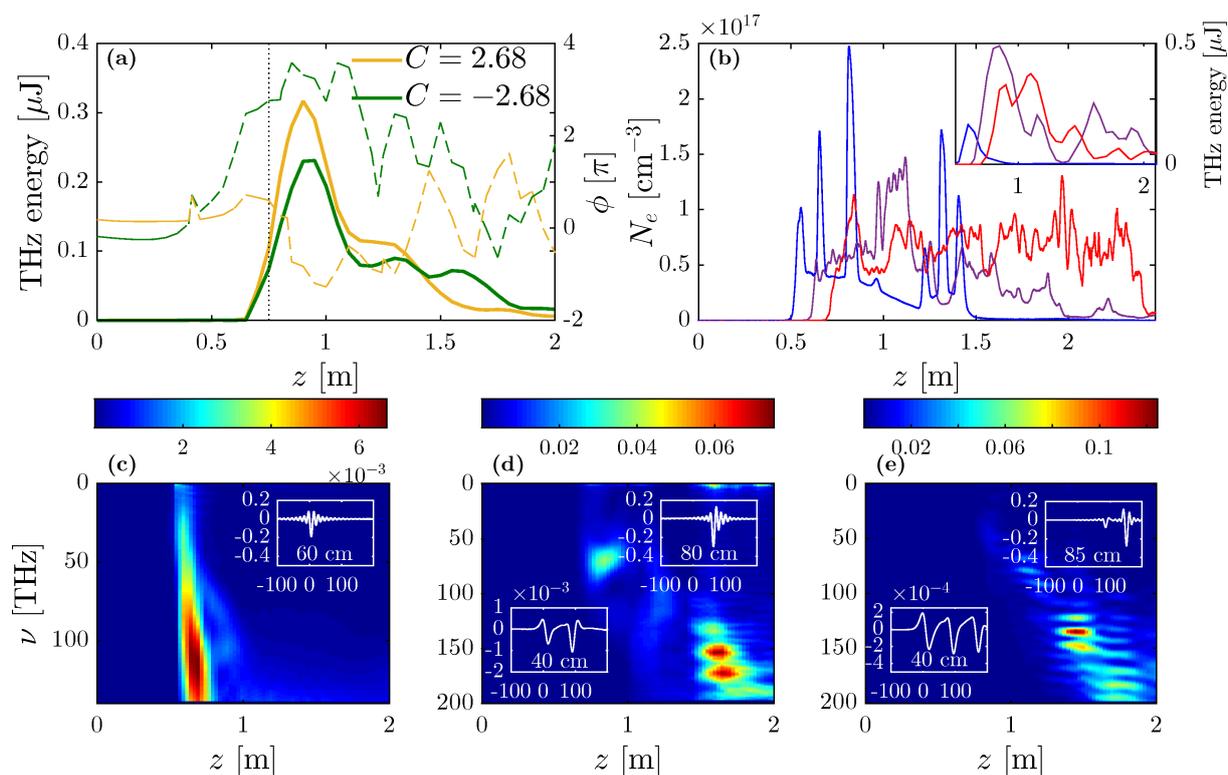


FIGURE 3.10 – (a) Rendement THz (courbes solides) et phase relative (tirets) le long de la propagation d’une unique impulsion chirpée avec $C = 2.68$ (courbes jaunes) et $C = -2.68$ (courbes vertes). Les lignes pointillées montrent la distance de production THz maximale. (b) Densité électronique pour $C = 0$ avec une (courbes bleues), deux (courbes violettes) ou trois (courbes rouges) impulsions séparées par un retard de 2τ . (c,d,e) Intensités spectrales correspondantes moyennées transversalement, variant le long de z pour (c) une, (d) deux et (e) trois impulsions. Les inserts montrent des champs THz caractéristiques ($\nu < 80$ THz) en GV/m en fonction du temps (exprimé en fs) aux distances indiquées.

accord avec les facteurs de gain obtenus en passant des chirps négatifs aux chirps positifs dans des observations expérimentales récentes [107].

D'autre part, la figure 3.10(b) montre le rendement THz de deux sous-impulsions séparées par un retard important de $\Delta t = 2\tau$. Cette séquence de deux sous-impulsions permet de multiplier par 3.5 le rendement THz sur des distances < 1 m par rapport à une unique impulsion, comme montré par l'insert de la figure 3.10(b). Ceci est dû à la combinaison de la deuxième impulsion avec l'ionisation créée par la première impulsion. En comparant les figures 3.10(c,d) et les champs montrés en insert, on voit qu'il est en outre possible de moduler la forme et l'amplitude des spectres THz en utilisant une succession de deux sous-impulsions. Des résultats similaires sont obtenus avec trois sous-impulsions [figure 3.10(e)].

Ces simulations montrent que travailler avec des trains d'impulsions femtosecondes peut fournir aux expérimentateurs des outils flexibles pour l'ingénierie THz à diverses fins de spectroscopie. Une configuration expérimentale possible inspirée de la figure 3.2 consiste à extraire d'abord l'harmonique deux d'un cristal BBO, à configurer sa durée et son état de polarisation au moyen de réseaux et de lames demi-onde appropriés, puis à le coupler colinéairement au fondamental à l'aide d'une ligne à retard [110]. L'étape suivante consisterait alors à lancer l'impulsion résultante à deux couleurs dans la structure expérimentale exploitée en figure 3.2 [101], c'est-à-dire à former des répliques des impulsions à deux couleurs au moyen d'un interféromètre de type Mach-Zehnder introduisant une seconde impulsion à retard variable Δt .

3.5 Conclusion

Pour conclure, les émissions de rayonnement THz par impulsions laser à deux couleurs peuvent être modulées par des techniques de chirp et de sous-impulsions multiples. Des simulations 3D de deux sous-impulsions retardées et chirpées ont mis en évidence une augmentation nette de l'efficacité de conversion laser-THz en géométrie focalisée, comparé à une seule impulsion gaussienne chirpée. Nous avons fourni un diagnostic simple – un critère tout-optique – permettant d'estimer l'augmentation potentielle de l'efficacité de conversion laser-THz en fonction de la connaissance des spectres du champ laser initial et de sa densité électronique uniquement. Ensuite, nous avons mis en évidence le rôle important des propagations longues pour exploiter pleinement les impulsions chirpées. Le couplage d'impulsions peut être très bénéfique dans les configurations de filamentation, car il permet un couplage plus efficace entre les deux couleurs sur des distances de propagation plus longues. La combinaison de plusieurs impulsions avec des retards appropriés rend le rendement et les spectres THz accordables dans les géométries de propagation focalisées et

collimatées. Ces techniques devraient être facilement implémentées dans des installations expérimentales dédiées à l'ingénierie THz pour la détection et l'identification de matériaux à distance.

Impact de la longueur d'onde laser sur l'émission de rayonnement THz

Sommaire

4.1	Introduction	104
4.2	Variation de la longueur d'onde laser dans le proche infrarouge (0.8 – 2.2 μm)	106
4.2.1	Calculs analytiques	107
4.2.2	Comparaison avec des simulations UPPE 3D	111
4.2.2.1	Validation des calculs théoriques	111
4.2.2.2	Généralisation pour différents paramètres de milieu	117
4.2.3	Conclusion	121
4.3	Variation de la longueur d'onde laser dans l'infrarouge lointain (0.8 – 10.6 μm)	122
4.3.1	Résultats du modèle LC	122
4.3.2	Simulations UPPE 3D	124
4.3.3	Ionisation coulombienne à plusieurs corps	131
4.3.4	Conclusion	134
4.4	Résultats expérimentaux et numériques du projet ALTESSE pour les grandes longueurs d'onde laser	134
4.4.1	Installations laser	136
4.4.2	Données expérimentales	137
4.4.3	Paramètres des faisceaux et génération de second harmonique	139
4.4.4	Résultats des simulations	144
4.5	Conclusion	147

4.1 Introduction

Afin d'avoir des champs THz utilisables pour des applications spectroscopiques, les rendements en énergie THz produits doivent être les plus élevés possibles. Des études antérieures [17, 31] ont montré des croissances numériques et expérimentales importantes de l'énergie THz avec la longueur d'onde laser.

À titre d'exemple, la figure 4.1 compare dans l'argon les rendements THz obtenus avec des longueurs d'onde de pompe de 0.8 et 2.0 μm . Entre ces deux simulations, tous les paramètres sont gardés constants, sauf la pression du gaz qui est augmentée de la pression ambiante à plus de 6 bar afin de garder constant le rapport entre puissance initiale et puissance critique d'auto-focalisation. L'énergie THz est ici augmentée d'un facteur 14 lorsque la longueur d'onde passe de 0.8 à 2.0 μm dans l'argon.

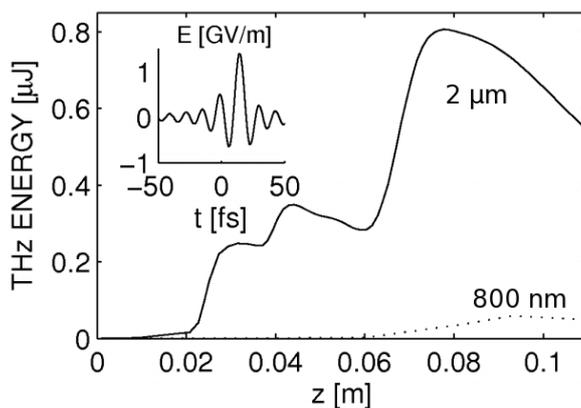


FIGURE 4.1 – Rendement THz d'un filament à deux couleurs avec un FH à 2 μm dans de l'argon à pression $p = 6.44$ bar (courbe solide). La courbe pointillée correspond à l'énergie THz émise par un filament à 800 nm dans de l'argon à 1 bar, les autres paramètres laser étant inchangés. L'insert montre le champ THz sur l'axe de propagation à $z = 7$ cm. Source : Bergé [17].

Cette croissance a aussi été observée expérimentalement dans l'air par Clerici *et al.* [31]. La figure 4.2 rappelle le schéma du montage utilisé, composé d'un faisceau pompe fondamental (abrégé dans ce qui suit FH) avec une longueur d'onde variant entre 0.8 et 2.0 μm , passant à travers des optiques focalisantes et un cristal doubleur BBO afin de créer le second harmonique (resp. SH). Les deux couleurs génèrent un plasma d'air de quelques millimètres de long, émettant un rayonnement THz analysé par la méthode ABCD (voir chapitre 1). Les énergies THz mesurées montrent une croissance moyenne en $\lambda_0^{4,6}$, où λ_0 est la longueur d'onde FH.

Plus récemment, Zhao *et al.* [115] ont aussi montré expérimentalement une variation de l'énergie THz avec la longueur d'onde laser lorsque celle-ci varie de 1.2 à 1.6 μm (voir figure 4.3, gauche). Ils montrent une croissance globale de l'énergie THz excepté

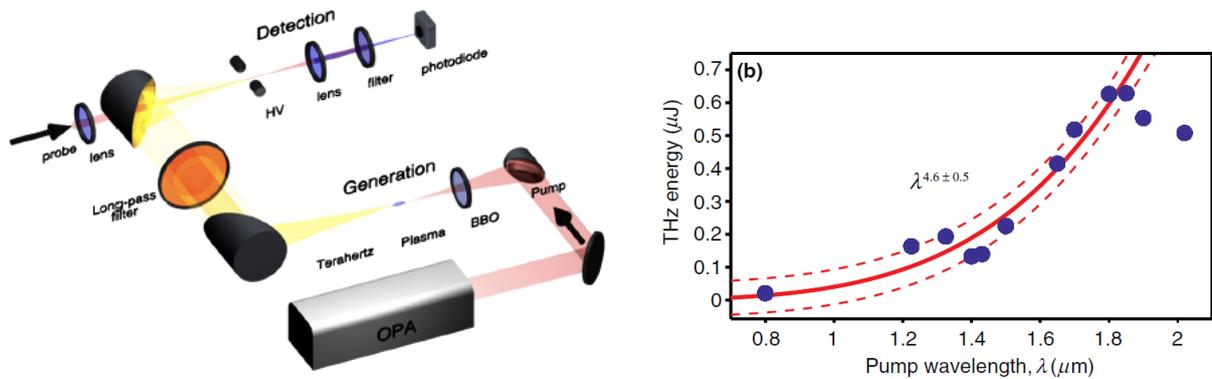


FIGURE 4.2 – (Gauche) Schéma expérimental, comprenant la partie génération et détection des champs THz, utilisé par Clerici *et al.* (Droite) Énergie THz en fonction de la longueur d’onde laser obtenue par le schéma précédent. Source : Clerici [31].

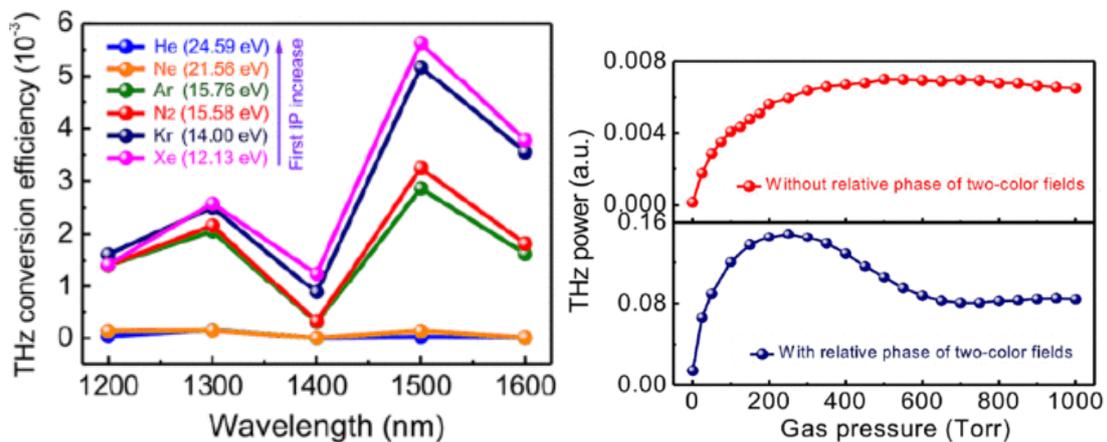


FIGURE 4.3 – (Gauche) Evolution de l’énergie THz obtenue par des plasmas formés dans différents gaz nobles (voir légende). Notons la chute de performance à $1.4 \mu\text{m}$, attribuée à un élargissement inexpliqué de la durée d’impulsion fournie par un système TOPAS à cette longueur d’onde. (Droite) Influence du contrôle de la phase relative entre les deux couleurs sur l’énergie THz en fonction de la pression du gaz noble (krypton) pour une longueur d’onde de $1.5 \mu\text{m}$. La courbe bleue est obtenue par le schéma classique à deux couleurs, tandis que pour la courbe rouge la phase entre les deux couleurs est ajustée grâce au passage de la deuxième couleur dans une ligne à retard. Source : Zhao [115].

à $1.4 \mu\text{m}$ où un élargissement de la durée d'impulsion fait chuter l'énergie THz. Le rôle crucial de la phase entre les deux couleurs est aussi montré, qui peut induire d'importantes fluctuations lorsqu'elle n'est pas contrôlée (voir figure 4.3, droite). Lorsque la pression du gaz est augmentée, l'énergie THz augmente quasiment monotoniquement si la phase est correctement contrôlée avec une ligne à retard. Dans le cas contraire, une décroissance du rendement THz peut être observée lors de l'augmentation de la pression.

Des longueurs d'onde laser plus élevées peuvent en outre être intéressantes d'un point de vue de la sécurité, notamment à $1.6 \mu\text{m}$, qualifiée de "sécure" pour l'œil, car ayant une absorption limitée pour la rétine, le cristallin et la cornée. Il est donc intéressant d'étudier l'impact des grandes longueurs d'onde laser opérant entre le proche et moyen infrarouge sur la propagation et la production de rayonnement THz.

Comme nous le verrons dans la première section, les croissances du rendement THz attendues localement sont en λ_0^2 si la phase relative entre les deux couleurs est la phase optimale de $\pi/2$ comme montré dans le chapitre 2 [voir figure 2.10(b)]. Par ailleurs, comme la puissance critique d'auto-focalisation varie quadratiquement avec λ_0 [voir équation (2.105)], si la puissance initiale est un nombre fixe de puissances critiques, l'énergie transportée dans le filament peut être plus élevée à grande longueur d'onde. Cette configuration est l'objet de la deuxième section, dans laquelle la longueur d'onde fondamentale est augmentée jusqu'à l'infrarouge lointain, longueurs d'onde pouvant être de nos jours atteintes par des lasers à CO_2 dont les rendements énergétiques et les durées (courtes) d'impulsion sont en constant progrès. Enfin, dans la troisième section, nous analysons les résultats expérimentaux obtenus au cours du projet ALTESSE, pour des longueurs d'onde laser comprises entre 1.2 et $2.4 \mu\text{m}$.

4.2 Variation de la longueur d'onde laser dans le proche infrarouge ($0.8 - 2.2 \mu\text{m}$)

Cette première étude vise à clarifier le rôle de la longueur d'onde FH et des nonlinéarités Kerr (instantanée et retardée) dans la génération d'impulsions THz produites par des filaments laser. Nous montrons numériquement que le mélange à quatre ondes a un impact sur le processus de génération THz sur de longues distances de propagation, même dans des régimes d'intensité où le mécanisme des photocourants est l'émetteur THz dominant. Nous démontrons également que la nonlinéarité Raman ne contribue pas en tant que source THz. Au moyen du modèle LC, nous expliquons en outre les variations de l'intensité du champ THz par rapport à la longueur d'onde fondamentale. Nous montrons l'absence de scaling universel, principalement dû aux fortes variations du rendement

THz avec la phase relative entre les deux couleurs, confirmé par nos simulations UPPE en géométrie focalisée et de filamentation.

4.2.1 Calculs analytiques

A partir du modèle LC dans lequel nous utilisons un taux d'ionisation QST appliqué aux molécules de dioxygène, nous expliquons l'influence d'une augmentation de la longueur d'onde laser sur les courants transverses dans le plasma.

Pour des impulsions à une couleur ayant la même énergie, doubler la longueur d'onde laser ne change pas la densité électronique maximale obtenue dans le régime tunnel, car le taux d'ionisation QST ne dépend pas de la longueur d'onde. En revanche, la vitesse des électrons libres [équation (2.84)] est doublée [14] de par sa dépendance évidente en $1/\omega_0$. La densité de courant électronique est donc à son tour doublée. Avec deux couleurs dont un FH dominant, cette évolution est maintenue. Cependant, la phase relative entre les deux couleurs ϕ importe beaucoup : N_e peut augmenter d'un facteur ~ 2 par exemple, à $100 \text{ TW}/\text{cm}^2$, pour deux couleurs superposées si $\phi = 0$. Ceci est dû au fait qu'à énergie constante, un déphasage nul entre les couleurs superpose les extrema des deux composantes optiques et produit des maxima de champs plus élevés par rapport à un déphasage non nul, mais qui ont lieu à la fréquence $\omega_0/2$, comme le montre la figure B.1(b). Avec une phase relative de $\pi/2$, le champ a une asymétrie temporelle autour de ses maxima [figure B.1(d)] et la densité de courants $J(t)$ développe une composante basse fréquence dû à l'augmentation par pas de la densité électronique, comme nous l'avons justifié dans le chapitre 2 (voir figure 2.8). Cette composante est alors la principale source de rayonnement THz [58]. Dans cette configuration, la densité électronique maximale est alors similaire à celle atteinte avec une seule couleur ; seule la répartition des pas de densité en temps diffère.

En suivant la théorie LC (voir chapitre 2, paragraphe 2.1.4.5), l'ionisation se fait à proximité des extrema de $E(t)$ aux instants $t_1, t_2, t_3, \dots, t_n$, auxquels la densité et le courant électroniques peuvent être approchés par $N_e(t) \simeq \sum_n \delta N_n H_n(t-t_n)$ et $J(t) \simeq J_A(t) + J_B(t)$ avec

$$J_A(t) = -e \sum_n \delta N_n v_f(t) H_n(t-t_n), \quad J_B(t) = e \sum_n \delta N_n e^{-\nu_c(t-t_n)} v_f(t_n). \quad (4.1)$$

Dans la suite des calculs, on néglige les collisions, soit $\nu_c \rightarrow 0$. Par ailleurs, si l'on intègre J_A sur un cycle optique de durée $T_0 = 2\pi/\omega_0$, on a, par intégration par parties et

en supposant $\tilde{\tau}_n \ll T_0$:

$$\int_t^{t+T_0} J_A(t') dt' = -e \sum_n \delta N_n \int_t^{t+T_0} v_f(t) H_n(t-t_n) dt' \simeq -e \sum_n \delta N_n \int_t^{t+T_0} r_f(t') \delta(t'-t_n) dt'. \quad (4.2)$$

où r_f dénote la position des électrons libres ($r_f = 0$ at $-\infty$) :

$$r_f(t) = \int_{-\infty}^t v_f(t') dt' = -\frac{e}{m_e} \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^{t'} E(t'') dt'' dt'. \quad (4.3)$$

D'où, pour les basses fréquences,

$$J_A(t) \simeq -e \sum_n \delta N_n r_f(t) \delta(t-t_n). \quad (4.4)$$

En utilisant les transformées de Fourier, on obtient dans le domaine basse-fréquences et dans la limite sans collision :

$$\mathcal{F}[\partial_t J_A](\omega) \approx \frac{-ie^2}{m_e} \sum_n \delta N_n \left[E_{\omega_0}(t_n) + \frac{1}{4} E_{2\omega_0}(t_n) \right] \frac{\omega}{\omega_0^2}, \quad (4.5)$$

et, à partir de l'équation (2.90),

$$\mathcal{F}[\partial_t J_B](\omega) \approx e \sum_n \delta N_n v_f(t_n) e^{i\omega t_n}, \quad (4.6)$$

où $E_{\omega_0}(t) = F(t/\tau_{0,1})\sqrt{1-r} \cos(\omega_0 t)$ et $E_{2\omega_0}(t) = F(t/\tau_{0,2})\sqrt{r} \cos(2\omega_0 t + \phi)$.

En négligeant l'influence des enveloppes ($F = 1$), les instants d'ionisation d'une impulsion à deux couleurs sont donnés par l'expression approchée (voir Annexe B)

$$\omega_0 t_n \approx n\pi - 2 \frac{\sqrt{r}}{\sqrt{1-r}} (-1)^n \sin \phi \quad (4.7)$$

au premier ordre en $r \ll 1$.

Nous supposons des sauts de densité identiques

$$\delta N_n \simeq N_a \left(1 - e^{-\sqrt{\pi} W [E(t_1)] \tilde{\tau}_1} \right) \equiv \delta N, \quad (4.8)$$

se produisant sur un grand nombre d'évènements d'ionisation $N \gg 1$. Dans la gamme de fréquences THz, $\omega \ll \omega_0$, et en utilisant $r \ll 1$, on peut évaluer à l'aide de l'expression (4.7)

$$\mathcal{F}[\partial_t J_A](\omega) \approx -\frac{ie^2 \sqrt{r}}{4m_e} N \delta N \frac{\omega}{\omega_0^2} \cos \phi, \quad (4.9)$$

$$\mathcal{F}[\partial_t J_B](\omega) \approx \frac{3e^2 \sqrt{r}}{m_e} \frac{\delta N}{\omega_0} \frac{\sin(N\omega\pi/2\omega_0)}{\sin(\omega\pi/\omega_0)} \sin\phi. \quad (4.10)$$

Exprimé en longueur d'onde, le spectre de la densité de courant électronique s'écrit donc

$$\mathcal{F}[\partial_t J](\lambda) \approx \frac{e^2 \sqrt{r}}{2\pi m_e c} \delta N \left[-\frac{i}{4} N \frac{\lambda_0^2}{\lambda} \cos\phi + 3\lambda_0 \frac{\sin(N\lambda_0\pi/2\lambda)}{\sin(\lambda_0\pi/\lambda)} \sin\phi \right]. \quad (4.11)$$

Les équations (4.9)-(4.11) montrent que $\partial_t J_A$, évoluant en λ_0^2 , et $\partial_t J_B$, évoluant en λ_0 , dominant pour des phases relatives entre les deux couleurs égales à $\phi = 0$ et $\phi = \pi/2$, respectivement. Les pas d'ionisation δN [équation (4.8)] augmentent, dans la limite $W[E(t_n)]\tilde{\tau}_n \ll 1$, linéairement avec la durée de l'ionisation $\tilde{\tau}_n \approx \tilde{\tau}_1$. Pour une durée d'impulsion fixée, le nombre de cycles optiques est diminué de moitié quand la longueur d'onde est doublée et comme $\tilde{\tau}_n \propto \omega_0^{-1}$, on a $\tilde{\tau}_{2\lambda_0}/\tilde{\tau}_{\lambda_0} \sim 2$. Le nombre d'évènements d'ionisation décroît en conséquence, soit $N_{2\lambda_0}/N_{\lambda_0} = 1/2$.

La figure 4.4 montre le rapport entre le champ THz induit par une impulsion à deux couleurs avec un FH à 1600 nm et une impulsion avec un FH à 800 nm. L'enveloppe en temps assurant des impulsions finies est prise en compte. Ce rapport est évalué par une méthode des moindres carrés ordinaire appliquée aux profils de champs THz calculés numériquement à partir du modèle LC pour des intensités ionisantes, c'est-à-dire supérieures à 50 TW/cm² dans l'air en régime tunnel. Cette méthode permet d'obtenir approximativement le rapport entre les maxima du champ THz le long de l'axe temporel. En comparaison, le rapport théorique $|\tilde{E}_{2\lambda_0}/\tilde{E}_{\lambda_0}|$ déduit de la transformée de Fourier inverse de l'équation (4.11) est tracé en une courbe noire solide. Il donne un facteur de gain qui varie entre 4 ($\phi = 0$) et 2 ($\phi = \pi/2$) avec une périodicité de π . Pour des impulsions gaussiennes [$F(u) = \exp(-2^{2\beta-1} \ln 2 u^{2\beta})$ avec $\beta = 1$], ce comportement est vérifié par les résultats LC (courbes rouges) de la figure 4.4(a), malgré des variations mineures causées par les effets d'enveloppe. Le rapport $|\tilde{E}_{2\lambda_0}/\tilde{E}_{\lambda_0}|$ reste moins sensible à la durée d'impulsion et à la longueur d'onde fondamentale qu'à la phase relative ϕ . Le facteur de gain maximum entre les amplitudes des champs THz est obtenu pour $\phi \approx 0$, ce qui souligne le rôle de la densité de courants J_A directement connectée au champ laser. En optant ensuite pour des profils super-gaussiens d'ordre 4 ($\beta = 4$), $|\tilde{E}_{2\lambda_0}/\tilde{E}_{\lambda_0}|$ varie encore avec la phase relative, mais évolue fortement et excède même la valeur 5 pour $\phi \leq \pi/10$ quand la durée à mi-hauteur est diminuée [figure 4.4(b)]. Nous attribuons ces changements à la raideur de l'enveloppe, qui rend les évènements d'ionisation pour des impulsions à 800 nm et 1600 nm non localisés exactement aux mêmes instants. Pour les paramètres laser choisis ici, le rapport r en intensité des deux couleurs a un impact limité sur les performances de gain.

Les figures 4.4(c) et 4.4(d) illustrent la croissance en énergie THz pour des durées

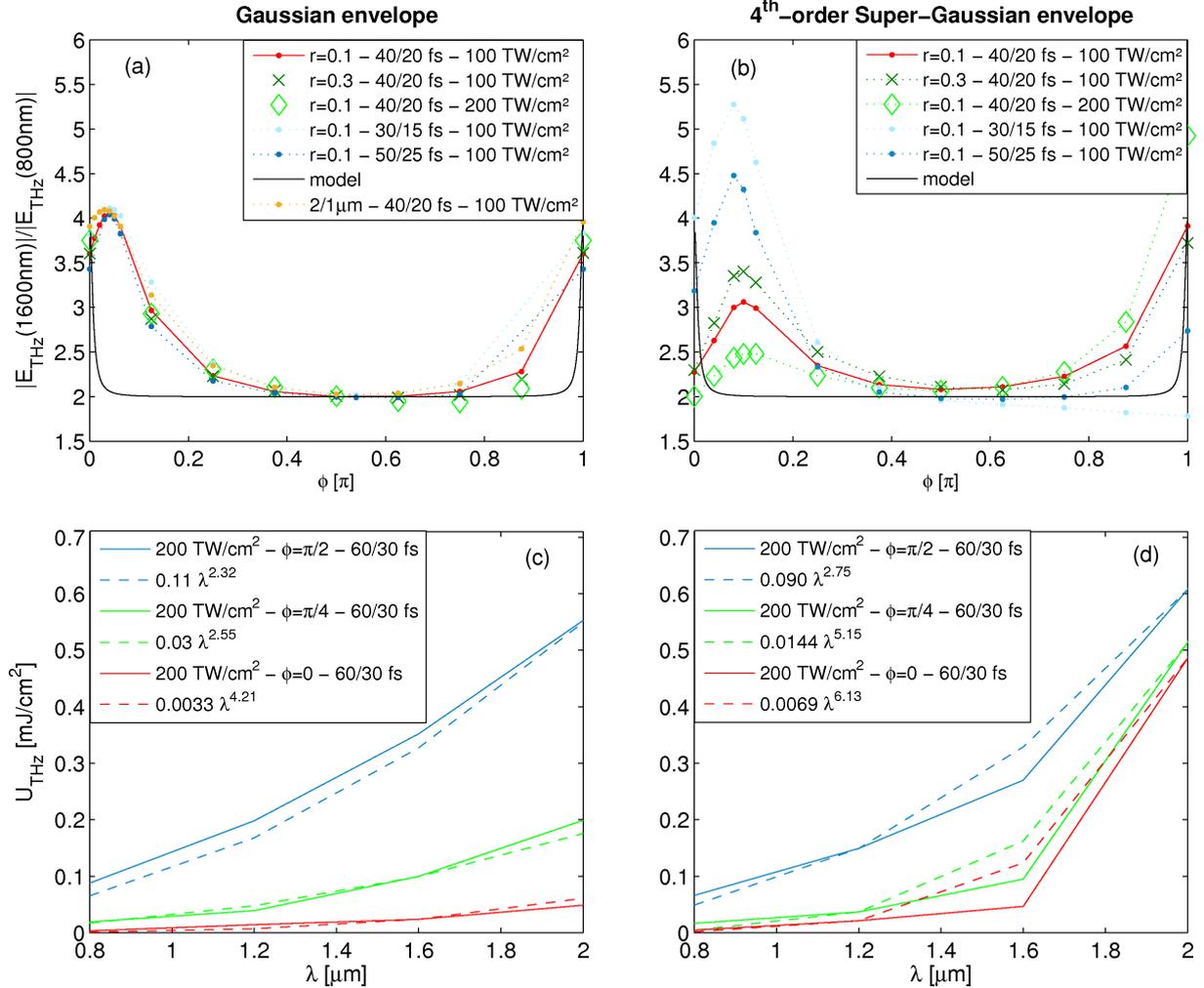


FIGURE 4.4 – Résultats LC : (a,b) Rapport entre les amplitudes de champ THz émis par des impulsions à deux couleurs avec un FH à 1600 nm et celles émis par un FH à 800 nm, en fonction de la phase relative entre les deux couleurs pour une fenêtre spectrale de 80 THz. (a) Facteur de gain pour des impulsions gaussiennes avec différents rapports en intensité r et intensités laser I_0 (voir légende). Les lignes bleues pointillées montrent le facteur de gain pour deux différentes durées d'impulsion à la même intensité. La ligne noire solide montre le facteur de gain obtenu avec le modèle analytique de l'équation (4.11). (b) Même quantité pour des enveloppes super-gaussiennes d'ordre 4 avec différents rapports r et intensités I_0 . (c,d) Évolution du rendement THz avec la longueur d'onde FH pour les trois phases relatives 0 , $\pi/4$ et $\pi/2$ en utilisant (c) des impulsions gaussiennes et (d) des impulsions super-gaussiennes d'ordre 4.

d'impulsion de 60 fs et des intensités $\sim 200 \text{ TW}/\text{cm}^2$ plutôt atteintes en géométrie focalisée [31]. Les lignes solides se réfèrent aux énergies calculées, alors que les lignes tiretées sont des courbes de fit en λ_0^α . Nous pouvons observer que des exposants $\alpha > 4$ sont obtenus pour de faibles phases relatives. Une phase de $\pi/2$, cependant, rend la contribution J_B dominante mais décroît cet exposant. Nous constatons donc que, *même si des scalings en λ_0 rapportés dans [31] sont possibles, ils ne sont pas génériques, car ils sont très sensibles à la phase relative entre les deux couleurs, à la forme des enveloppes et à leur durée.* Notons à partir des figures 4.4(c) et 4.4(d) que l'énergie THz est beaucoup plus grande avec une phase de $\pi/2$ qu'une phase nulle. Cela signifie que dans une situation où J_A est dominant ($\phi \rightarrow 0$), le spectre THz est plus faible que lorsque J_B prévaut pour différentes valeurs de phase. Si la phase est à sa valeur optimale de $\pi/2$, l'évolution attendue de l'énergie THz sera alors seulement en λ_0^2 . Comme la phase relative est constante dans le modèle LC, une problématique importante sera de comprendre l'évolution de l'efficacité de conversion THz lorsque cette phase varie le long de la propagation, ce qui est l'objectif des parties suivantes.

4.2.2 Comparaison avec des simulations UPPE 3D

Les propriétés précédentes sont maintenant testées à travers des calculs numériques 3D directs.

L'analyse présentée ci-dessous vise à vérifier le caractère générique de nos évaluations théoriques sur la nonlinéarité Raman et l'effet de la variation de la longueur d'onde FH, en incluant les effets de propagation 3D, linéaires et nonlinéaires, subis par des impulsions à deux couleurs selon les différentes configurations expérimentales. Pour cette étude, des géométries de propagation focalisées et collimatées seront examinées pour les faisceaux gaussiens. Nous allons d'abord valider nos estimations théoriques en utilisant le modèle d'ionisation simple QST pour une seule espèce (O_2) et des valeurs classiques des indices Kerr. Ensuite, des modèles d'ionisation plus élaborés et des indices Kerr n_2 (voir chapitre 2) récemment mesurés dans l'infrarouge moyen seront utilisés pour vérifier nos résultats.

4.2.2.1 Validation des calculs théoriques

L'équation UPPE est résolue pour des configurations expérimentales proches de celles examinées dans la référence [31], c'est-à-dire pour des impulsions focalisées avec des nombres d'ouvertures (*f*-numbers en anglais) > 10 , ce nombre désignant le rapport entre la distance focale et le diamètre à mi-hauteur initial du faisceau. La phase relative initiale est considérée nulle et les longueurs d'onde fondamentales des impulsions à deux couleurs sont 800 nm et 1600 nm.

4.2.2.1.1 Géométrie focalisée Dans un premier ensemble de simulations nous choisissons $f/\# = 42$ pour une largeur de faisceau $w_0 = 500 \mu\text{m}$ et une distance focale $f = 2.5 \text{ cm}$. Nos impulsions à deux couleurs ont $200 \mu\text{J}$ en énergie et une durée à mi-hauteur de 60 fs . Environ 7% de l'énergie laser est contenue dans le SH. L'indice Kerr a pour valeur $n_2 \simeq 1.2 \times 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$ selon [61, 36]. À la pression atmosphérique, $N_a = 5.4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ pour les molécules d' O_2 et la puissance critique d'auto-focalisation est $P_{\text{cr}} = 8.5 \text{ GW}$ à 800 nm et 35.1 GW à 1600 nm . Bien que fortement focalisées, nos impulsions ultra-courtes produisent des évènements d'ionisation simple pour des intensités pics $< 300 \text{ TW}/\text{cm}^2$ à proximité du point focal dû à la défocalisation locale par le plasma généré. Nous pouvons donc utiliser ici le taux d'ionisation QST (2.65) appliqué aux molécules de dioxygène seulement.

Les simulations ont été réalisées pour une fenêtre temporelle de 1.22 ps , un pas temporel $\Delta t = 75$ attosecondes et une résolution transverse de $\Delta x = \Delta y \approx 3 \mu\text{m}$. La figure 4.5 montre la densité électronique pic atteinte près du foyer, les variations de la phase relative entre les deux couleurs le long de z [figure 4.5(a)], et l'énergie THz contenue dans notre boîte numérique ($3 \times 3 \text{ mm}^2$) [figure 4.5(b)]. Les émissions THz sont collectées dans une fenêtre fréquentielle de 80 THz . Les courbes cyan/magenta ne contiennent pas de nonlinéarités Raman ; les courbes bleues/rouges les incluent pour comparaison ($x_k = 0.5$). Il y a une influence limitée de la réponse Kerr en régime fortement focalisé, mais l'efficacité de conversion THz associée est clairement diminuée par la nonlinéarité retardée pour les raisons données dans le chapitre 2. Concernant la dépendance en longueur d'onde, l'intensité maximum atteinte près du foyer décroît avec λ_0 . En effet, la largeur d'un faisceau gaussien évolue avec la distance de propagation comme $w(z) = w_0 \sqrt{1 + z^2/z_0^2}$, où z_0 est la longueur de Rayleigh définie par l'équation (2.106). La largeur de faisceau $w_f \approx w_0 f/z_0$ devient alors proportionnelle à la longueur d'onde FH quand la longueur de Rayleigh est plus large que la distance focale f [16]. Par conséquent, comme le taux QST (2.65) ne dépend pas de la longueur d'onde laser, la densité électronique maximale décroît aussi [figure 4.5(a)]. La phase relative ϕ couvre l'intervalle entier $[0, 2\pi]$ sur les 4 cm de propagation. Elle subit un déphasage de Gouy jusqu'à π proche du foyer, auquel s'ajoute un autre déphasage de π induit par la dispersion linéaire dans l'air à $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$ [voir figure 3.6(f)]. Dans la figure 4.5(b), nous observons une croissance nette du maximum de l'énergie THz produite à $z \simeq f$ quand λ_0 est augmentée.

Les points expérimentaux de la référence [31] sont rappelés par des points rouges sur la figure 4.5(c), sur laquelle nous comparons l'énergie THz atteinte au point focal. Malgré des différences entre les paramètres expérimentaux et nos paramètres laser, l'énergie THz évaluée à partir de deux longueurs d'onde de pompe suit une croissance comparable. Prendre en compte la diffusion Raman permet d'atteindre un meilleur accord avec les

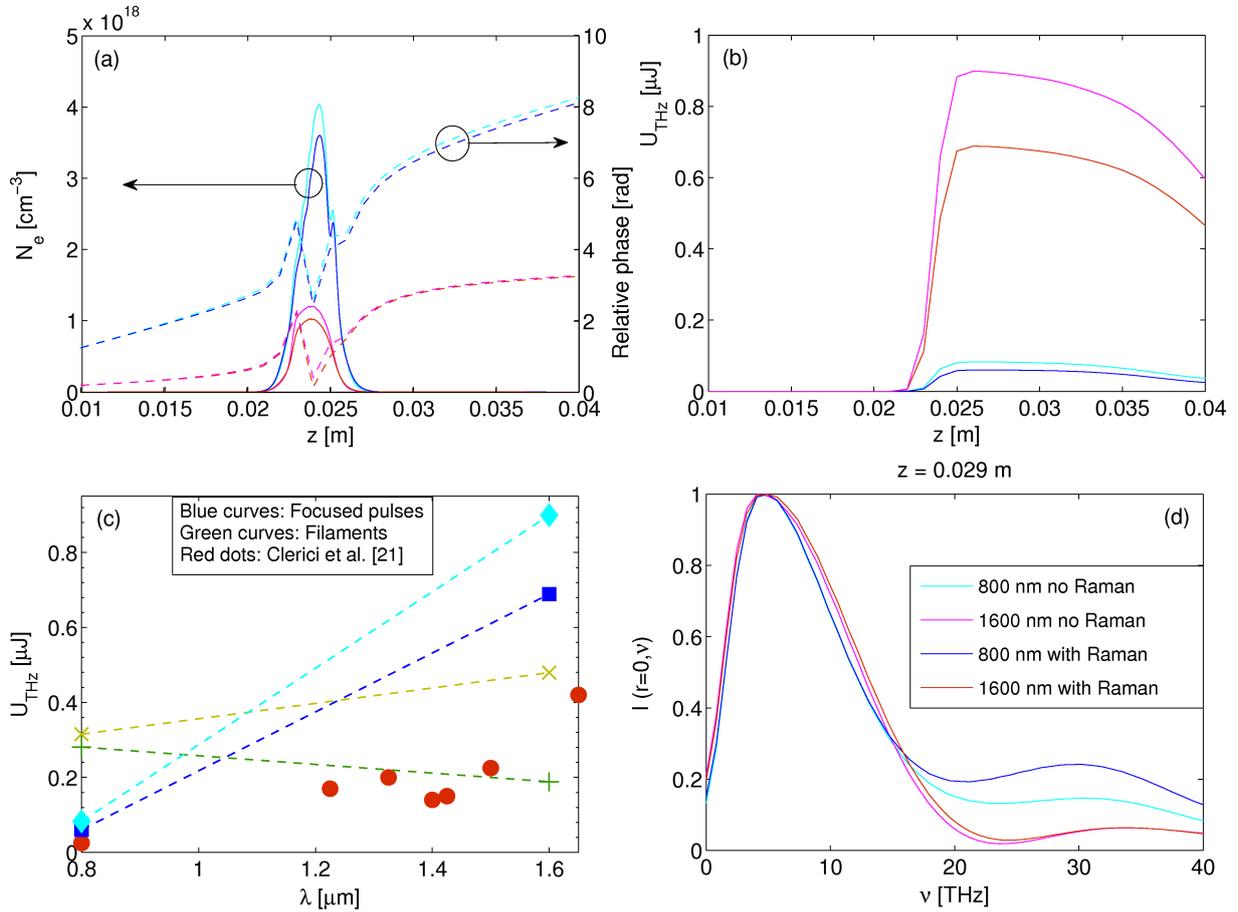


FIGURE 4.5 – Simulations UPPE 3D d’impulsions gaussiennes focalisées à deux couleurs en ratio $r = 7.4\%$. (a) Densité électronique maximum (axe de gauche, courbes solides) et phase relative entre les deux composantes (axe de droite, courbes tiretées), (b) rendement énergétique THz ($\nu \leq 80$ THz) pour les longueurs d’onde FH de 800 nm (courbes bleues/cyans) et 1600 nm (courbes rouges/magenta), avec et sans nonlinéarité Raman. (c) Énergie THz en fonction de la longueur d’onde FH. Losanges cyan : pas de Raman ; carrés bleus : avec Raman. Les croix vertes \times rapportent les facteurs de gain THz en régime de filamentation sans nonlinéarité Raman comme montré sur la figure 4.6 ; les symboles verts $+$ rapportent les facteurs de gain en régime de filamentation avec la nonlinéarité Raman comme donné par la figure 4.9. Les points rouges rappellent les données expérimentales de la référence [31]. (d) Intensités spectrales sur l’axe normalisées [arb. u.] calculées proches du foyer ($z = 2.9$ cm).

données expérimentales. Pour notre fenêtre de 80 THz, un fit indique une croissance en λ_0^α avec $\alpha \approx 3.5$, soit un exposant α compris dans l'intervalle $2 < \alpha \leq 4$ en accord avec les figures 4.4(c) et 4.4(d), connaissant les variations de la phase relative ϕ montrées sur la figure 4.5(a). Réduire cette fenêtre à 20 THz comme pour les mesures de Clerici *et al.* [31] ne change pas considérablement cette évolution, puisque les spectres THz émis autour du foyer sont contenus dans un domaine fréquentiel $\nu < 20$ THz [figure 4.5(d)]. L'influence du volume de plasma est ici limitée : les données numériques révèlent des canaux plasma de dimension comparables, que la longueur d'onde fondamentale soit de 800 nm ou de 1600 nm. Plus précisément, les volumes de plasma varient seulement d'un facteur 0.8 - 1.3 pour des niveaux de densité électronique $> 10^{15-17} \text{ cm}^{-3}$.

4.2.2.1.2 Géométrie de filamentation Nous utilisons à présent l'équation UPPE (2.123) pour décrire la génération de rayonnement THz par des filaments à deux couleurs se propageant sur de plus grandes distances et opérant avec deux longueurs d'ondes différentes. L'équation UPPE est intégrée pour des impulsions gaussiennes avec une puissance incidente $P_{\text{in}} = 34$ GW, une largeur de faisceau $w_0 = 400 \mu\text{m}$ et des durées à mi-hauteur $\tau_{0,1} = 40$ fs ($\tau_{0,2} = \tau_{0,1}/2$, $r = 3.4\%$) en propagation collimatée. Les indices Kerr n_2 sont ceux utilisés précédemment et le taux d'ionisation est encore le taux QST. Pour des raisons de coût numérique, la résolution numérique a été réduite à $\Delta t = 99$ attosecondes et $\Delta x = \Delta y \approx 9 \mu\text{m}$. Nous avons vérifié que cette résolution n'altérerait pas les spectres et champs THz. La fenêtre THz choisie est toujours $\nu \leq 80$ THz.

Les figures 4.6(a) et 4.6(b) illustrent l'intensité pic et la densité électronique maximale atteintes sur des distances de propagation de l'ordre du mètre dans le régime de filamentation à deux couleurs. Les courbes de couleur claire (cyan et magenta) montrent une propagation dans laquelle aucune nonlinéarité Kerr retardée n'a été introduite ($x_k = 0$). Les courbes foncées (bleue et rouge) incluent la nonlinéarité Raman dans un ratio $x_k = 0.5$ [78, 25, 26]. A partir de la figure 4.6(a), il est clair que le terme Raman diminue la contribution de l'effet Kerr instantané, ce qui induit (i) une distance d'auto-focalisation plus grande, (ii) une intensité de saturation par défocalisation plasma ("clamping" en anglais) plus faible, et donc (iii) une plus grande région d'auto-guidage. La densité plasma est donc réduite en proportion, et s'étend sur de plus grandes distances. Comme attendu, les courbes U_{THz} des figures 4.6(a) et 4.6(b) montrent une chute nette de l'énergie THz émise le long de la propagation. Avec une longueur d'onde FH de 1600 nm, à même contenu d'énergie, la puissance d'entrée devient plus proche d'une unité de puissance critique dans l'air et l'auto-guidage sans réponse Kerr retardée favorise une plage de filamentation plus étendue par rapport à une impulsion à 800 nm. Les densités plasma diminuent de 10^{17} cm^{-3} à 10^{16} cm^{-3} , ce qui affaiblit les facteurs de gain obtenus en géométrie focalisée.

4.2. Variation de la longueur d'onde laser dans le proche infrarouge (0.8 – 2.2 μm)

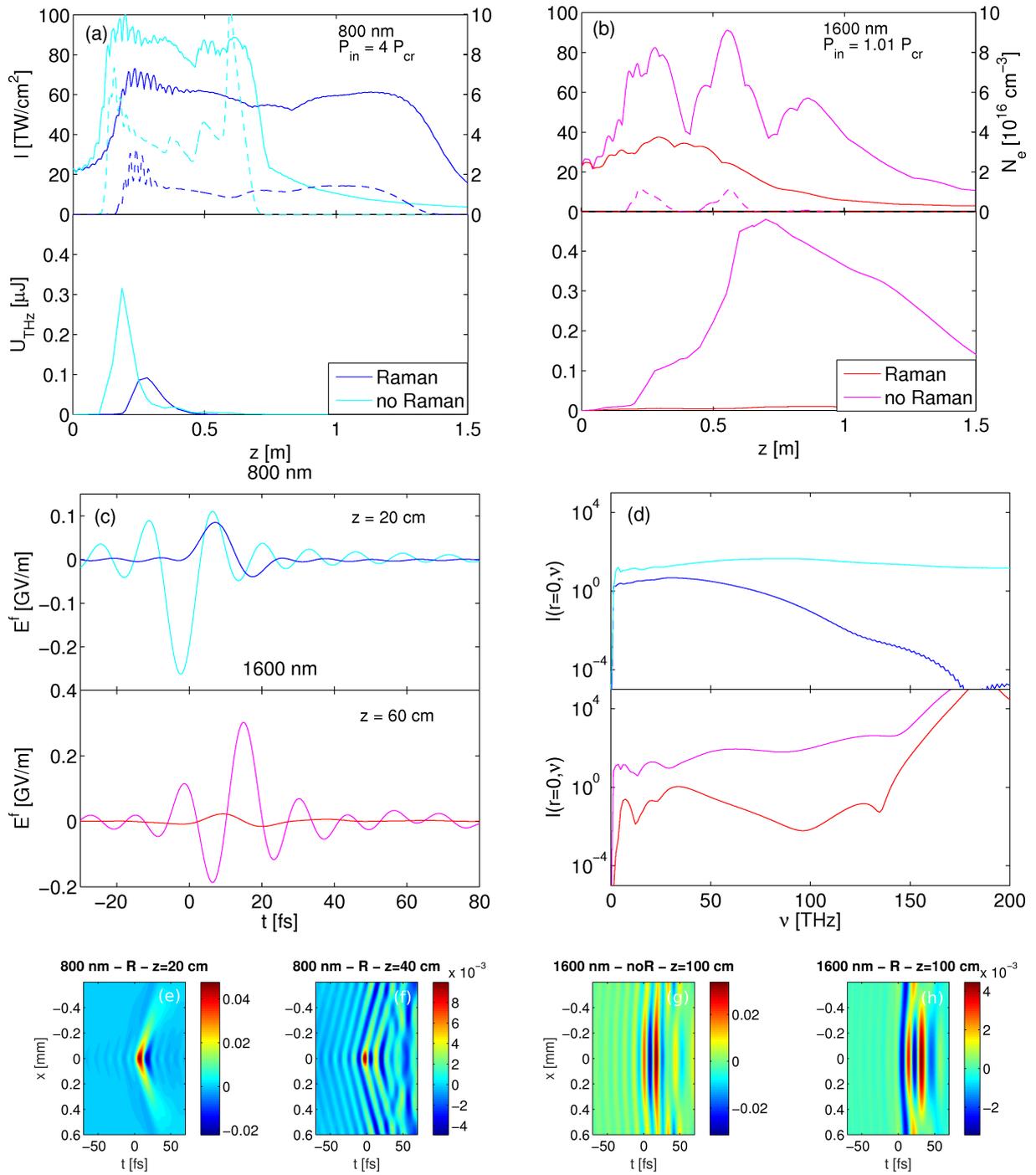


FIGURE 4.6 – Simulations UPPE 3D de filaments à deux couleurs. (a) Haut : Intensité maximum (courbes solides, axe de gauche) et densité électronique maximale (courbes tiretées, axe de droite) d'un filament d'un mètre de long avec des FH à 800 nm (courbes bleues/cyans) et 1600 nm (courbes rouges/magentas) ($r = 3.4\%$). Les courbes claires (cyan/magenta) se réfèrent à une propagation sans nonlinéarité Raman, les courbes foncées (bleu/rouge) l'incluent. Bas : Rendement énergétique THz correspondant, le long de l'axe de propagation ($\nu < 80$ THz). (c,d) Champs THz sur l'axe et aux distances de propagation indiquées et intensités spectrales associées proches de la distance d'énergie THz maximum. (e-h) Champs THz dans le plan (x, t) , avec (R) et sans (no R) effet Raman.

En effet, le rendement THz n'est que localement plus fort (sans Raman) d'un facteur ~ 1.52 à l'émission maximale, comme indiqué par les croix vertes de la figure 4.5(c). Les performances dans le facteur de gain THz avec une longueur d'onde FH augmentée en propagation collimatée apparaissent donc plus faibles que dans une géométrie focalisée. Notons que l'énergie THz avec une onde de pompe de 800 nm peut échapper rapidement de notre boîte numérique ($2.4 \times 2.4 \text{ mm}^2$), ce qui explique l'importante diminution de l'énergie THz émise après une propagation de plusieurs dizaines de cm. D'un point de vue physique, cette chute d'énergie THz est également due à une perte d'asymétrie subie par le champ à 800 nm sur de longues distances. Nous attribuons cette propriété au décalage de vitesses de groupe entre les composantes ω et 2ω [55] :

$$\delta v_g^{-1} = \frac{1}{v_g^{2\omega}} - \frac{1}{v_g^\omega} = \frac{n_{2\omega} - n_\omega + 2\omega \partial_\omega n_{2\omega} - \omega \partial_\omega n_\omega}{c}. \quad (4.12)$$

En supposant un couplage efficace entre les deux couleurs sur $\tau_{0,1}/2$, on trouve que la longueur de walk-off $\delta v_g \tau_{0,1}/2$ est de $\sim 24.7 \text{ cm}$ pour l'impulsion à 800 nm et $\sim 1.08 \text{ m}$ pour l'impulsion à 1600 nm. Ainsi, l'évaluation précédente n'est certainement pas optimale pour obtenir une estimation précise du gain THz dans une configuration de filament. Lors de l'ajout de la nonlinéarité Raman, la puissance disponible contribuant à la réponse Kerr instantanée est sous-critique ($\sim 0.7P_{\text{cr}}$), ce qui empêche l'impulsion à deux couleurs de s'auto-focaliser et de dépasser le seuil d'ionisation. En conséquence, aucun plasma de densité suffisante n'est généré et seule une émission THz résiduelle est créée par mélange à quatre ondes.

Les figures 4.6(c) et 4.6(d) détaillent les champs THz propagés sur plusieurs dizaines de cm et leur spectres pour des FH à 800 nm et 1600 nm. Les distances choisies correspondent au maximum d'énergie THz montré sur les figures 4.6(a) et 4.6(d), bas. On voit clairement que la nonlinéarité Raman contribue localement à diminuer l'efficacité de conversion THz, car la dynamique de la pompe est changée et en particulier l'intensité pic est réduite comme précédemment prédit. De plus, une longueur d'onde de pompe plus grande favorise la formation d'un super-continuum reliant la queue du spectre FH au spectre THz [figure 4.6(d)], ce qui peut justifier une plus grande influence de la composante J_A du courant. Des champs THz avec des amplitudes de $\sim 0.1 \text{ GV/m}$ sont obtenus pour les différentes longueurs d'onde avec une amplification nette à $z = 60 \text{ cm}$ pour l'impulsion à 1600 nm.

Les figures 4.6(e-h) montrent la distribution du champ THz dans le plan (x, t) , avec ou sans effet Raman, aux mêmes distances de propagation. L'émission suit celle prédite par Tcherenkov [28] décrite en figure 4.7 et basée sur les conditions d'accord de phase entre l'onde THz et l'onde de pompe. En effet, l'onde THz se propage avec une vitesse de groupe $v_{\text{THz}} = c/N_{\text{THz}}$ plus faible que la vitesse de groupe de l'impulsion pompe $v_{\text{pump}} \simeq c/N_{\omega_0}$,

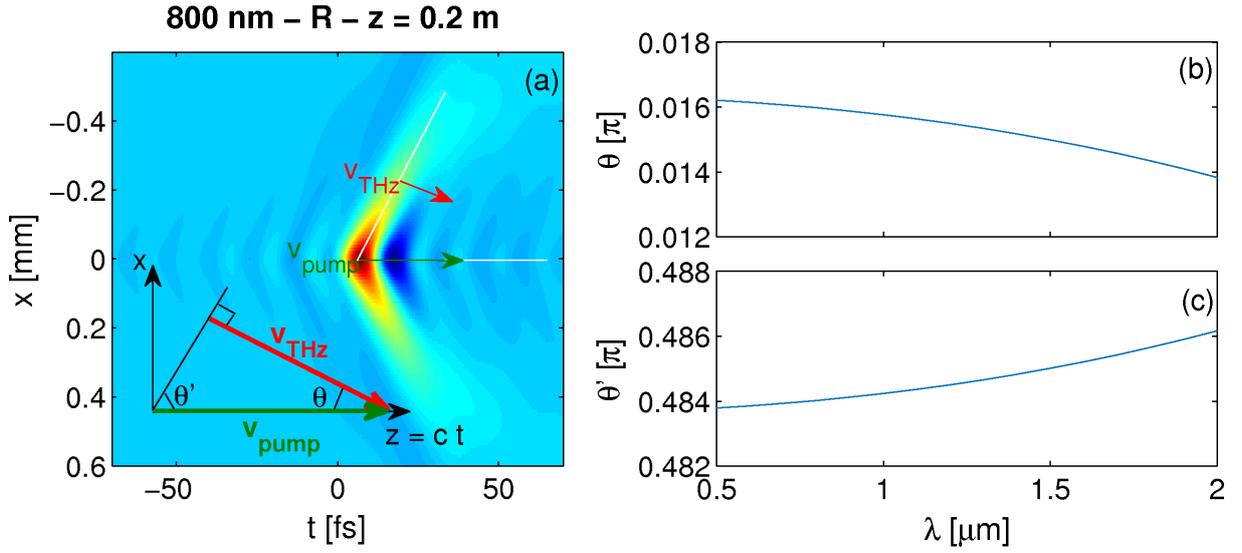


FIGURE 4.7 – (a) Géométrie des vitesses de groupe pour les ondes THz (v_{THz}) et de pompe (v_{pump}). (b) Angle Tcherenkov θ et (c) angle d'émission associée $\theta' = \pi/2 - \theta$ en fonction de la longueur d'onde de pompe calculés à partir de la dispersion linéaire de l'air (Peck et Reeder [74]).

où

$$N_\omega \equiv n(\omega) + \omega \partial n / \partial \omega \quad (4.13)$$

est l'indice de groupe de l'onde considérée (N_{THz} est évaluée à 80 THz). Dans le plan ($x, z = ct$), illustré sur la figure 4.7(a), les champs THz sont émis avec l'angle

$$\theta' = \pi/2 - \theta = \pi/2 - \cos^{-1}(v_{\text{THz}}/v_{\text{pump}}). \quad (4.14)$$

Estimée à partir de la relation de dispersion proposée en référence [74], la valeur de $\cos^{-1}(v_{\text{THz}}/v_{\text{pump}})$ est presque nulle, parce que le rapport $v_{\text{THz}}/v_{\text{pump}} = N_{\omega_0}/N_{\text{THz}}$ est déjà proche de l'unité pour les gaz. Il se rapproche davantage de 1 quand la longueur d'onde est augmentée. Ceci explique les grands angles θ' observés en figure 4.7(c) à 1600 nm. L'angle complémentaire $\theta = \widehat{\vec{v}_{\text{THz}} \vec{v}_{\text{pump}}}$, correspondant à l'émission conique usuelle, ne peut donc pas excéder quelques degrés, en accord avec la référence [12]. Notons qu'en géométrie focalisée, l'angle θ' peut être plus petit à cause de la courbure du front d'onde THz forcée par la lentille.

4.2.2.2 Généralisation pour différents paramètres de milieu

Dans ce paragraphe, nous étudions l'effet de taux d'ionisation plus complexes appliqués à deux espèces constituant l'air, et nous considérons différentes réponses des électrons liés.

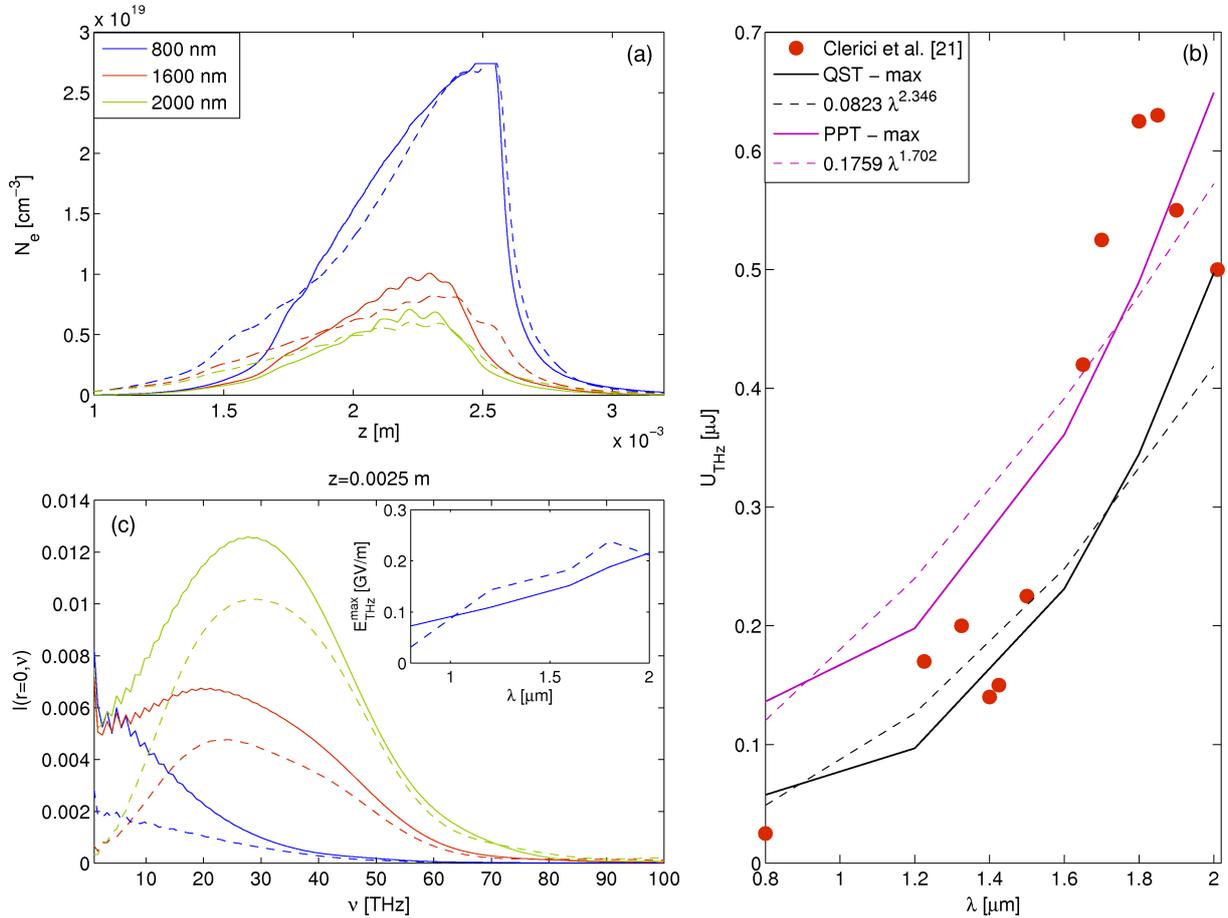


FIGURE 4.8 – Simulations UPPE 3D d'impulsions gaussiennes focalisées à deux couleurs avec le rapport $r = 5.2\%$ pour une ionisation QST (courbes tiretées) et une ionisation PPT (courbes solides) des molécules d'O₂ et de N₂ pour une configuration de type Clerici *et al.* [31]. (a) Densité électronique maximum. Les longueurs d'onde FH choisies sont 0.8, 1.6 et 2 μm (voir légende). (b) Rendement en énergie THz maximum pour $\nu \leq 80$ THz en fonction de la longueur d'onde FH pour un faisceau focalisé et deux espèces ionisables avec le taux QST (courbes noires) et avec le taux PPT instantané (courbes violettes). Les courbes de scaling en λ_0^α tracées en tirets sont évaluées par une méthode des moindres carrés. Les points rouges rappellent les points de données expérimentales de la référence [31]. (c) Intensités spectrales sur l'axe [arb. u.] calculées au point focal. L'insert montre les amplitudes maximales des champs THz.

4.2.2.2.1 Géométrie focalisée Nous choisissons d'abord le même rapport $f/w_0 \sim 14$ que pour les expériences de Clerici *et al.* [31]. Pour des raisons de contraintes numériques, nous limitons la largeur initiale du faisceau pompe à $w_0 = 150 \mu\text{m}$ sur une distance focale $f = 2.5 \text{ mm}$. Nos impulsions à deux couleurs ont 400 μJ en énergie avec 5.2% injecté dans le deuxième harmonique. Ces simulations incluent à la fois les nonlinéarités Kerr et Raman et la fenêtre THz choisie est encore 80 THz. Les simulations utilisent un pas temporel $\Delta t = 75$ attosecondes et une résolution transverse de $\Delta x = \Delta y = 0.88 \mu\text{m}$. Pour être complet, nous prenons aussi en compte l'ionisation des molécules de diazote en utilisant soit un taux QST ($U_i = 15.6 \text{ eV}$, $Z^* = 1$), soit un taux PPT dépendant du champ pour deux espèces, en adoptant les nombres de charge de Talebpour *et al.* $Z_{\text{O}_2}^* = 0.53$, $Z_{\text{N}_2}^* = 0.9$ [91]. Quand un taux QST pour les molécules O_2 et N_2 est utilisé, l'intensité pic et la densité électronique atteignent 650 TW/cm^2 et $2.7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ (les atomes sont tous ionisés une fois) proche du foyer avec une pompe à 800 nm [voir figure 4.8(a)]. Avec le taux PPT, les nombres de charges effectives étant inférieurs à l'unité découlent d'une ionisation plus faible [70], ce qui augmente l'intensité maximale atteinte au foyer. Une ionisation simple complète est encore atteinte pour les deux espèces moléculaires à 800 nm.

La figure 4.8(b) compare les rendements en énergie THz obtenus à partir de l'ionisation QST ou PPT du dioxygène et du diazote. Mis à part le cas à 800 nm avec le taux PPT, la croissance et les valeurs de l'énergie THz calculée sont en bon accord avec les résultats expérimentaux de Clerici *et al.* [31] [comparer les courbes solides et les points rouges de la figure 4.8(b)]. Un meilleur accord grâce au calcul précis de la phase relative entre les deux couleurs issue du cristal doubleur sera donné dans la section 4.4 de ce chapitre. Les différences dues au modèle d'ionisation sont limitées. Le scaling en λ_0 trouvé apparaît plus proche de λ_0^2 que de λ_0^4 . La figure 4.8(c) détaille les spectres au foyer. Il est intéressant de remarquer que les spectres THz numériques ont à présent leur maximum à $\nu \simeq 30 \text{ THz}$, et non à $\nu = 5 \text{ THz}$ comme rapporté dans [31]. Ce désaccord peut être attribué au fait que la technique ABCD utilisée dans [31] ne peut pas mesurer les fréquences supérieures à $\sim 20 \text{ THz}$ (voir aussi [12]). L'insert détaille la croissance du maximum du champ THz, qui est quasi linéaire avec la longueur d'onde FH, ce qui est logique car $U_{\text{THz}} \propto E_{\text{THz}}^2 \propto \lambda^2$ ici. Les figures 4.5(c) et 4.8(b) démontrent la sensibilité des courbes de gain et des spectres THz quand on fait varier les paramètres laser en géométrie focalisée. Nous signalons à nouveau que les volumes plasma ont encore une influence limitée dans le gain THz. Le volume plasma mesuré à des niveaux de densité $N_e > 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ sur la figure 4.8 augmente même légèrement d'un facteur ~ 1.7 au bénéfice de la pompe à 800 nm. Ceci confirme le faible impact du volume de plasma sur le gain THz à grandes longueurs d'onde et privilégie plutôt une émission THz induite par les surfaces plasma-air [94, 41].

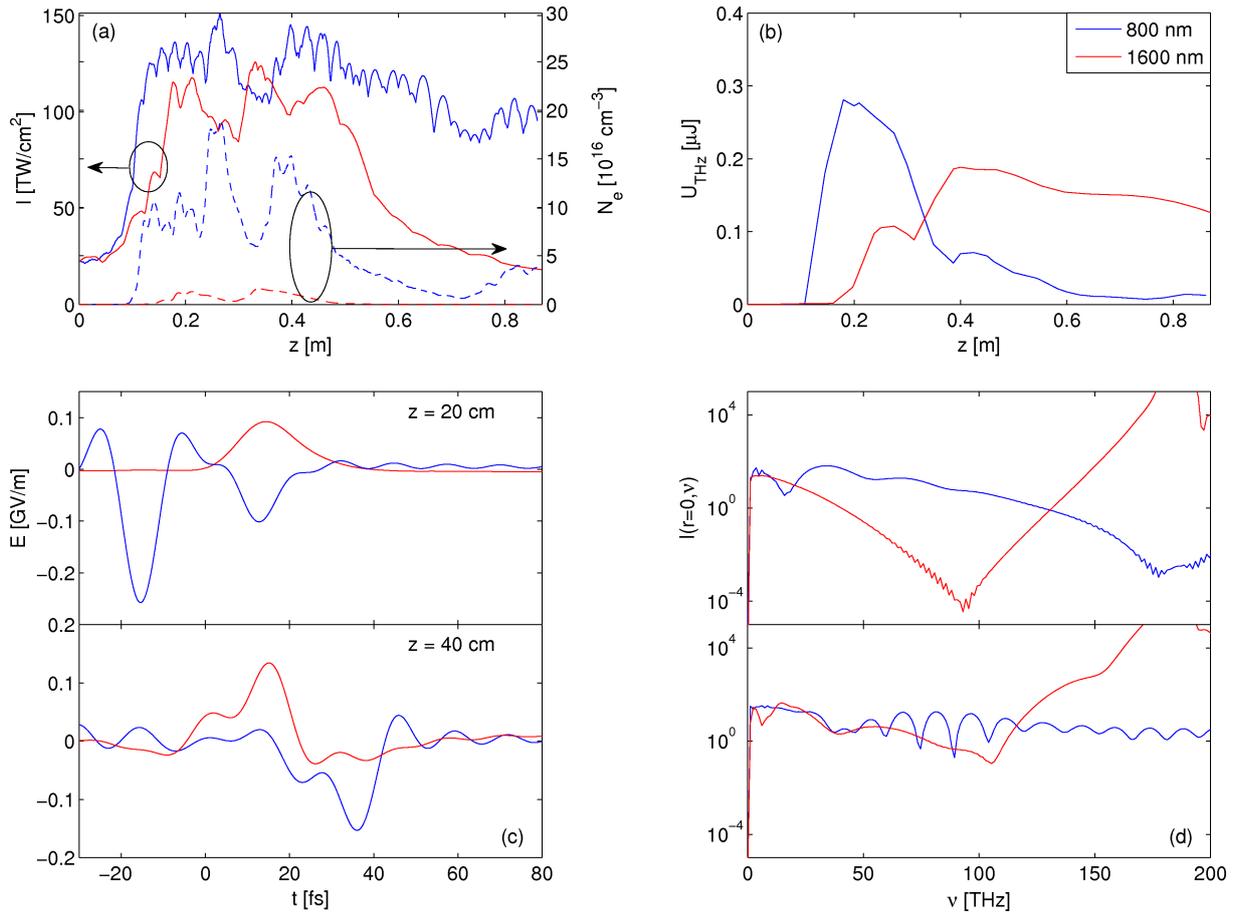


FIGURE 4.9 – Simulations UPPE 3D de filaments à deux couleurs avec les indices et ratio Kerr rapportés dans la référence [102, 112] pour des impulsions à 800 nm (courbes bleues) et 1600 nm (courbes rouges). (a) Intensités pics (axe de gauche, courbes solides) et densités plasma maximales (axe de droite, courbes tiretées). (b) Énergie THz dans une fenêtre spectrale de 80 THz. (c) Champs THz sur l'axe à $z = 20$ cm et $z = 40$ cm, et (d) intensités spectrales correspondantes.

4.2.2.2.2 Géométrie de filamentation Enfin, pour évaluer l'influence des coefficients de nonlinéarité Kerr, nous présentons sur la figure 4.9 l'intensité et la densité plasma, l'énergie THz, les spectres et les champs des mêmes impulsions femtosecondes que dans la figure 4.6 en configuration de filamentation pour une auto-focalisation plus forte avec des réponses retardées Raman plus élevées, $n_2 = 3.79 \times 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$, $x_k = 0.79$ comme récemment mesuré dans [102, 82] pour des impulsions pompe de 800 nm. Avec des impulsions de 1600 nm, d'après [112], nous avons sélectionné les valeurs de l'indice Kerr $n_2 = 3.72 \times 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$, $x_k = 0.78$. Pour être complet, nous avons utilisé une version en champ moyenné sur un cycle optique du taux d'ionisation PPT avec des nombres de charge effectifs $Z_{O_2} = 0.53$ et $Z_{N_2} = 0.9$ [91]. Contrairement à la figure 4.6, un fondamental à 1600 nm est capable de déclencher une séquence d'auto-focalisation, en commençant par un rapport de puissance d'entrée sur puissance critique supérieur à 3.1, ce qui correspond à un rapport de puissance effectif (hors Raman) d'environ 2.5. La figure 4.9(b) montre l'énergie THz évoluant avec la distance de propagation. Le long de la zone plasma ($0.1 \leq z \leq 0.7 \text{ m}$), le rendement de conversion laser-THz avec un FH à 1600 nm par rapport à un FH à 800 nm est plus faible que dans la configuration de filamentation précédente [voir aussi les symboles “+” verts rapportés dans la figure 4.5(c)], ce qui peut être attribué à la baisse plus importante des densités plasma maximales atteintes sur la figure 4.9(a). Le rendement maximum THz obtenu avec un FH à 1600 nm est donc inférieur à celui obtenu sur la figure 4.6. Les figures 4.9(c) et 4.9(d) détaillent les champs et spectres THz aux distances d'émission maximale de rayonnement THz. Calculés pour les basses fréquences $\leq 80 \text{ THz}$, les champs THz sur l'axe créés avec un FH à 800 nm prévalent. Dans l'ensemble, la tendance principale rapportée sur la figure 4.6 est retrouvée : *par rapport aux facteurs de gain THz obtenus en géométrie focalisée, doubler la longueur d'onde des filaments bicolores se propageant en état de filamentation n'augmente pas significativement l'efficacité de conversion THz.*

4.2.3 Conclusion

En résumé, nous avons étudié théoriquement l'influence des longueurs d'onde de pompe comprises entre 0.8 et 2 μm dans les émissions de rayonnement THz par des impulsions laser bicolores dans l'air. L'augmentation de la longueur d'onde du fondamental peut améliorer considérablement le rendement énergétique THz. Nous avons montré que le facteur de gain d'énergie THz ne peut pas être formulé quantitativement avec une simple loi de puissance en λ_0^α en raison de l'influence de la phase relative entre les deux couleurs et leurs enveloppes temporelles. Cependant, les puissances des taux de croissance entre 2 et 5 peuvent être justifiées à partir du modèle courant local (LC). Celles-ci varient principa-

lement en fonction de la phase relative entre les deux couleurs. Des croissances en $\sim \lambda^{2-3.5}$ ont été extraites dans des géométries de propagation focalisées grâce à des simulations 3D complètes UPPE, qui reproduisent assez fidèlement les mesures expérimentales des énergies d'impulsion THz. Une phase relative optimale de $\pi/2$ entre les deux couleurs ne fournit cependant qu'une loi d'échelle limitée à $\sim \lambda_0^2$. Des facteurs de gain similaires peuvent cependant être difficilement atteints dans une géométrie de filamentation qui limite l'intensité à des valeurs plus faibles et qui présente des densités plasma diminuées à des longueurs d'ondes plus grandes.

4.3 Variation de la longueur d'onde laser dans l'infrarouge lointain (0.8 – 10.6 μm)

Dans la section précédente, les énergies THz étudiées n'excédaient pas le μJ , que ce soit expérimentalement ou numériquement. Afin d'avoir des énergies plus importantes et dépasser la limite du mJ à partir de petites surfaces d'interaction, l'augmentation de la longueur d'onde laser dans le moyen et lointain infrarouge peut constituer une alternative efficace. Des longueurs d'onde laser plus longues, par exemple 3.9 μm délivrées par des OPCPA (“Optical Parametric Chirped-Pulse Amplifiers”), sont maintenant accessibles dans le régime femtoseconde [48]. Des lasers ultra-rapides (100 fs) à CO_2 fonctionnant à 10.6 μm à des énergies proches du Joule sont également attendus dans les années à venir [79, 97]. Il est donc logique que des simulations numériques utilisant des impulsions énergétiques sub-ps aient été récemment publiées dans ces domaines en longueurs d'onde [72, 37].

Dans cette section, nous évaluons le potentiel de ces nouveaux amplificateurs laser pour la génération d'impulsions THz. On se place dans un régime intermédiaire de filamentation par rapport aux configurations de la section précédente et considérons des filaments s'étendant sur quelques dizaines de cm seulement. La puissance initiale contient ici un nombre constant de puissance critique, ce qui impliquera d'adapter le niveau d'énergie laser à la longueur d'onde examinée. Trois longueurs d'onde FH sont étudiées : 800 nm, 3.9 μm et 10.6 μm . Les résultats du modèle LC sont d'abord présentés, puis les résultats de simulations UPPE sont commentés.

4.3.1 Résultats du modèle LC

On considère la fréquence de collision électron-neutre $\nu_c \approx 2.86 \text{ ps}^{-1}$ [12]. Nous appliquons le modèle LC au champ laser local défini par l'équation (2.1) avec $\tau_0 = \nu_{\text{THz}}^{-1} = 100 \text{ fs}$ étant la durée à mi-hauteur de l'impulsion. Pour commencer, nous considérons des impul-

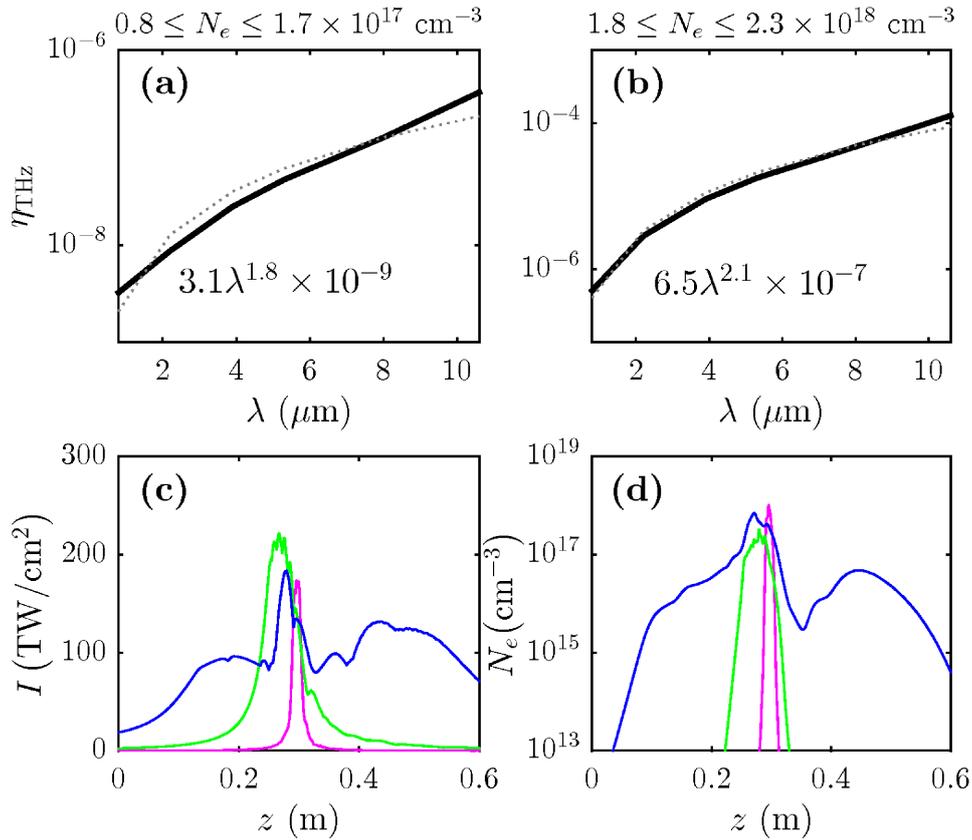


FIGURE 4.10 – (a,b) Efficacité de conversion laser-THz évaluée dans le domaine $\nu < 10$ THz à partir de l'équation (2.91) avec les deux fluences d'entrée (a) 5 J/cm^2 et (b) 10 J/cm^2 ($\phi_1 = 0$, $\phi_2 = \pi/2$) générant des densités électroniques variant peu avec FH (voir valeurs indiquées au-dessus). Les courbes grises pointillées sont des fits en λ_0^α . (c,d,e) Résultats de simulations UPPE 3D de filaments à deux couleurs du proche au lointain infrarouge. (c) Intensité maximum le long de z utilisant la dispersion HITRAN "hiver" pour des longueurs d'ondes FH de 0.8 (courbe magenta), 3.9 (courbe verte) et $10.6 \mu\text{m}$ (courbe bleue). (d) Densités électroniques maximales associées.

sions à deux couleurs avec un rapport $r = 0.1$ et des énergies (fluences) laser $U_L = 5 - 10$ J/cm², correspondant à des intensités $I_0 = 100 - 200$ TW/cm². La phase relative entre les deux couleurs est choisie à sa valeur optimum de $\pi/2$ pour la génération de rayonnement THz par photocourants. Nous montrons sur les figures 4.10(a,b) l'évolution du rendement THz [équation (2.91) avec (2.77)] avec la longueur d'onde laser, pour lequel la densité électronique est calculée avec l'équation (2.78) appliqué à du dioxygène. Avec une longueur d'onde laser de $10.6 \mu\text{m}$, un gain d'environ deux ordres de grandeur est produit dans le rendement THz comparé à une pompe opérant dans le proche infrarouge. Un scaling en λ_0^α donne un exposant α proche de 2, comme attendu dans la section précédente. L'énergie THz devrait donc être augmentée de quatre ordres de grandeur quand la longueur d'onde laser est multipliée par un facteur 10, tout d'abord par les photocourants (voir figure 4.10), et ensuite parce que le faisceau préserve le même nombre de puissance critique d'auto-focalisation $P_{\text{cr}} \propto \lambda_0^2$. Cette possibilité nous invite donc à travailler dans le régime de filamentation, pour lequel la puissance critique d'auto-focalisation augmente notablement aux grandes longueurs d'onde laser. Cette propriété rend ainsi possible l'auto-guidage d'un seul filament transportant une énergie élevée.

4.3.2 Simulations UPPE 3D

Afin d'évaluer l'influence de l'humidité de l'air sur l'absorption de la pompe ou du rayonnement THz généré, la dispersion utilisée dans les simulations UPPE 3D est celle de Peck et Reeder [74] à laquelle nous implémentons des données HITRAN relatives aux deux configurations météorologiques suivantes au niveau de la mer : soit une configuration "hiver" en utilisant une température modérée de 15°C et une humidité locale de 20%, soit une configuration "été" avec une température de 25°C et une humidité de 60%. L'indice Kerr n_2 intervenant dans P_{NL} est donné sur le tableau 4.1 avec son rapport de nonlinéarité Raman x_K associé [112, 77]. Le nombre de puissances critiques P_{cr} est gardé constant et fixé à 1.73, ce qui requiert de disposer d'une énergie de 100 mJ pour le FH à $10.6 \mu\text{m}$. La génération de plasma vient de la photo-ionisation initiée par le taux PPT [équation (2.78)], à laquelle s'ajoute un terme d'ionisation par avalanche $\mu_0 c e^2 \nu_c I N_e / [U_i m_e (\nu_c^2 + \omega^2)]$, qui provient des collisions entre les électrons libres et les atomes neutres par Bremsstrahlung inverse selon le modèle (2.72) rappelé en section 2.1.4.3.5.

Dans nos simulations, le champ laser initial ($z = 0$) s'écrit comme l'équation (2.1) avec une largeur de faisceau en $1/e^2$ de 2.5 mm focalisée par une lentille convergente de distance focale 30 cm. Les phases initiales ϕ_1 et ϕ_2 sont supposées nulles et la phase évolue continuellement à travers le déphasage de Gouy et les effets de propagation nonlinéaires. Les énergies d'impulsions d'entrée sont indiquées sur le tableau 4.1. Les simulations nu-

4.3. Variation de la longueur d'onde laser dans l'infrarouge lointain (0.8 – 10.6 μm)

λ_0 [μm]/gaz	0.8/air	3.9/air	10.6/air	10/argon
n_2 [10^{-19} cm^2/W]	3.8	3.6	3.3	1.0
x_K	0.8	0.8	0.8	0.0
U_L [mJ]	0.494	12.4	100	169.4

TABLE 4.1 – Longueurs d'onde FH, indices Kerr, ratio d'effet Raman et énergies laser incidentes pour l'air et l'argon.

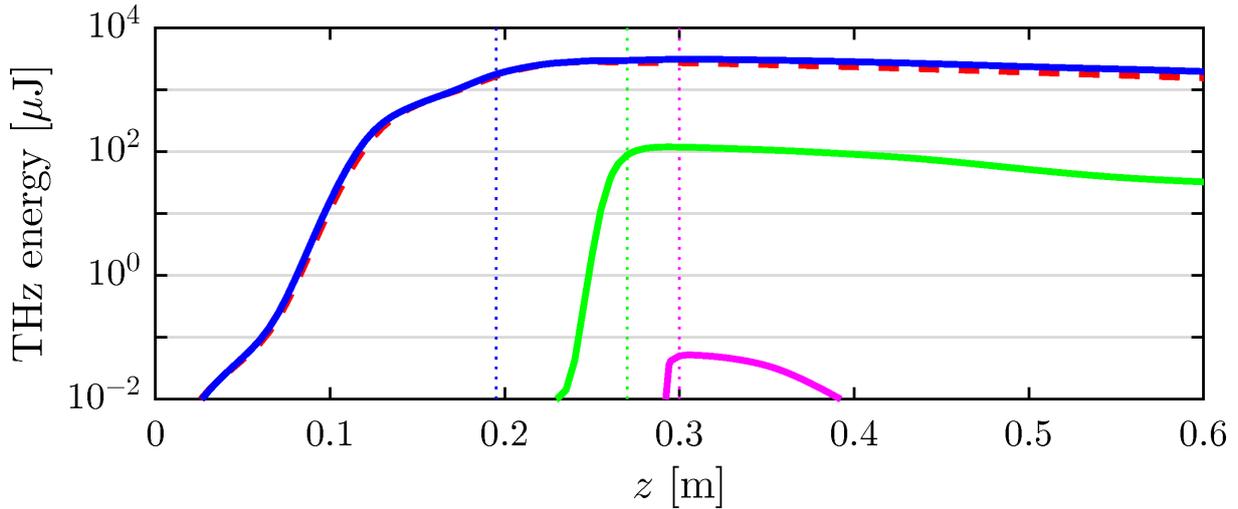


FIGURE 4.11 – Énergies THz [intégrées sur (x, y, t)], calculées le long de l'axe de propagation pour l'“hiver” (courbe bleu) et l'“été” (courbe rouge) dans le cas d'un FH à 10.6 μm . Les courbes vertes et magenta désignent respectivement les énergies THz pour un FH à 3.9 et 0.8 μm avec une dispersion “hiver”. Les lignes pointillées verticales montrent les distances de génération THz maximale (voir texte).

mériques ont été réalisées en utilisant une boîte transverse de $15 \times 15 \text{ mm}^2$ et une fenêtre temporelle de $\sim 4.3 \text{ ps}$.

Comme nous pouvons le voir à partir des figures 4.10(c,d), des intensités pics de $\sim 200 \text{ TW}/\text{cm}^2$ produisent des densités électroniques supérieures à 10^{17} cm^{-3} . Quand la longueur d'onde laser est augmentée, des filaments plus longs sont formés [15, 38]. En effet, la longueur des filaments z_{fil} est de plusieurs longueurs de Rayleigh, $z_{\text{fil}}^R = \pi w_{\text{fil}}^2 / \lambda_0$ avec $w_{\text{fil}} \propto \lambda_0$ désignant la taille transverse du filament, d'où $z_{\text{fil}} \propto \lambda_0$. En raison de sa distance de Rayleigh plus courte, l'impulsion à 10.6 μm commence sa séquence d'auto-focalisation plus tôt selon la formule de Marburger (2.107).

La figure 4.11 illustre l'énergie THz calculée en fonction de la distance de propagation. Cette énergie reste en-dessous du niveau du μJ pour $\lambda_0 = 0.8 \mu\text{m}$, mais elle augmente au niveau de 0.1 mJ pour une pompe dans l'infrarouge moyen et même jusqu'à 3.1 mJ pour l'infrarouge lointain, confirmant l'augmentation de 4 ordres de grandeurs attendue du modèle LC utilisé ci-dessus. L'efficacité de conversion laser-THz obtenue à 10.6 μm est

de 3% contre 1% à 3.9 μm . Les résultats obtenus à 3.9 μm sont en bon accord avec les premières expériences à cette longueur d'onde, dans lesquelles des énergies de 0.049 mJ ont été récemment rapportées par une équipe de chercheurs grecs et autrichiens, correspondant à un rendement de 0.77% [56]. Notons que les courbes de rendement de la figure 4.11 diminuent au lieu de saturer à une valeur plateau, ce qui est principalement dû aux composantes THz s'échappant de notre boîte (finie) de simulation.

Pour aller plus loin, les figures 4.12(a,b,c) détaillent les spectres THz extraits à la distance de production THz maximum, pour laquelle la pente de l'énergie THz en fonction de la propagation sur la figure 4.11 est la plus forte. Comme la diffraction des impulsions THz $\sim \frac{1}{2k(\omega)} \nabla_{\perp}^2$ est très importante, cette distance correspond dans la plupart des cas à la position de l'intensité THz maximale sur l'axe de propagation. En plus de l'augmentation impressionnante des intensités spectrales, la figure 4.12(c) prouve aussi que pour une impulsion à 10.6 μm , augmenter l'humidité et la température rend les lignes d'absorption par l'eau plus fortes autour de 3 et 6 THz. Cependant, ces zones d'absorption étant spectralement étroites, elles ne réduisent pas notablement le rendement THz total, comme confirmé par la figure 4.11. Par ailleurs, parce qu'un débat important a récemment porté sur le rôle du mélange à quatre ondes induit par effet Kerr comparé à celui des photocourants dans la génération d'impulsion THz par lasers [12], les figures 4.12(a,b,c) comparent les spectres THz calculés aux distances indiquées sans les termes plasma. La présence de nonlinéarités plasma élargit clairement les spectres d'environ trois ordres de grandeurs et décale les fréquences pics jusqu'à $\nu_{\text{THz}} < 1$ THz, ce qui est en accord avec les observations expérimentales de la référence [12]. Ainsi, la génération de plasma et les photocourants associés restent les acteurs clés dans la génération d'impulsions THz. Les figures 4.12(d,e,h) démontrent en outre que de plus larges surfaces d'interaction laser-plasma sont engagées aux plus grandes longueurs d'onde laser. Ceci est dû à la dépendance en λ_0 du diamètre du filament ($w_{\text{fil}} \propto \lambda_0$ comme argumenté précédemment) et donc de la section transverse du plasma, ce qui amplifie le rendement THz. L'angle d'émission conique des impulsions THz décroît avec la longueur d'onde laser : les ondes THz diffractent en effet avec des angles de 6.2° et 2.3° pour $\lambda_0 = 0.8$ et 3.9 μm , respectivement. Avec une pompe à 10.6 μm , les ondes THz sont émises quasiment sur l'axe, avec un angle de 1.2°. Elles peuvent donc se propager sur une plus grande distance dans la boîte numérique et ont une plus grande directivité.

La figure 4.13 détaille le spectre optique entier pour les trois longueurs d'onde considérées le long de l'axe de propagation, avec les champs optiques et THz développés à la distance de production maximale de rayonnement THz. Pour une pompe dans le proche infrarouge, cette distance coïncide avec celle de la génération plasma maximum, près du foyer. Quand la longueur d'onde est augmentée, des harmoniques d'ordre élevé sont

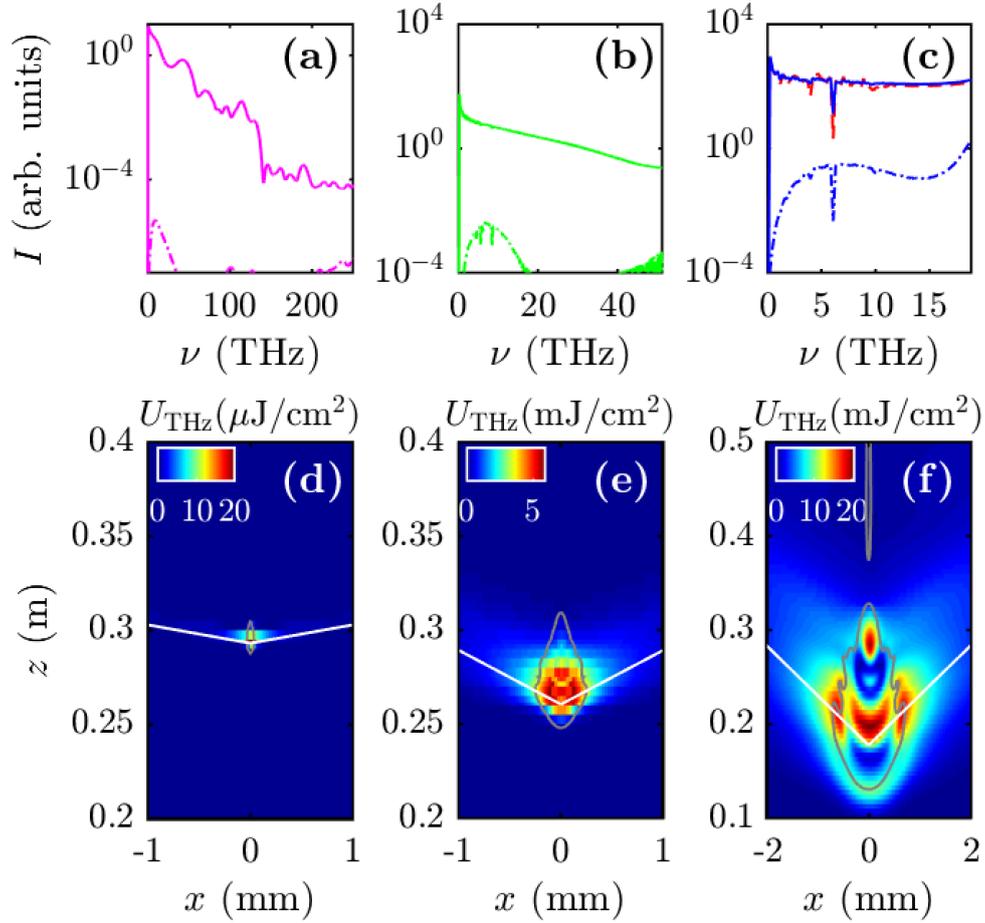


FIGURE 4.12 – (a,b,c) Spectres THz moyennés transversalement aux distances de génération d'énergie THz maximale (a) $z = 30$ cm, (b) $z = 27$ cm et (c) $z = 19.5$ cm en utilisant le même code couleur que dans les figures 4.10(c-e). Les courbes tiretées-pointillées montrent ces mêmes quantités sans génération de plasma. (d-f) Fluence THz dans le plan (x, z) pour des longueurs d'onde FH de (d) 0.8 μm , (e) 3.9 μm et (f) 10.6 μm . Les lignes blanches matérialisent les angles d'émission conique, en faisant un fit de la courbe $z_{\text{max}}(x)$ telle que $U_{\text{THz}}(x, z_{\text{max}}) = \max_z U_{\text{THz}}(x, z)$. Les isocontours de la densité plasma transverse à 10^{16} cm^{-3} sont indiqués par des lignes grises.

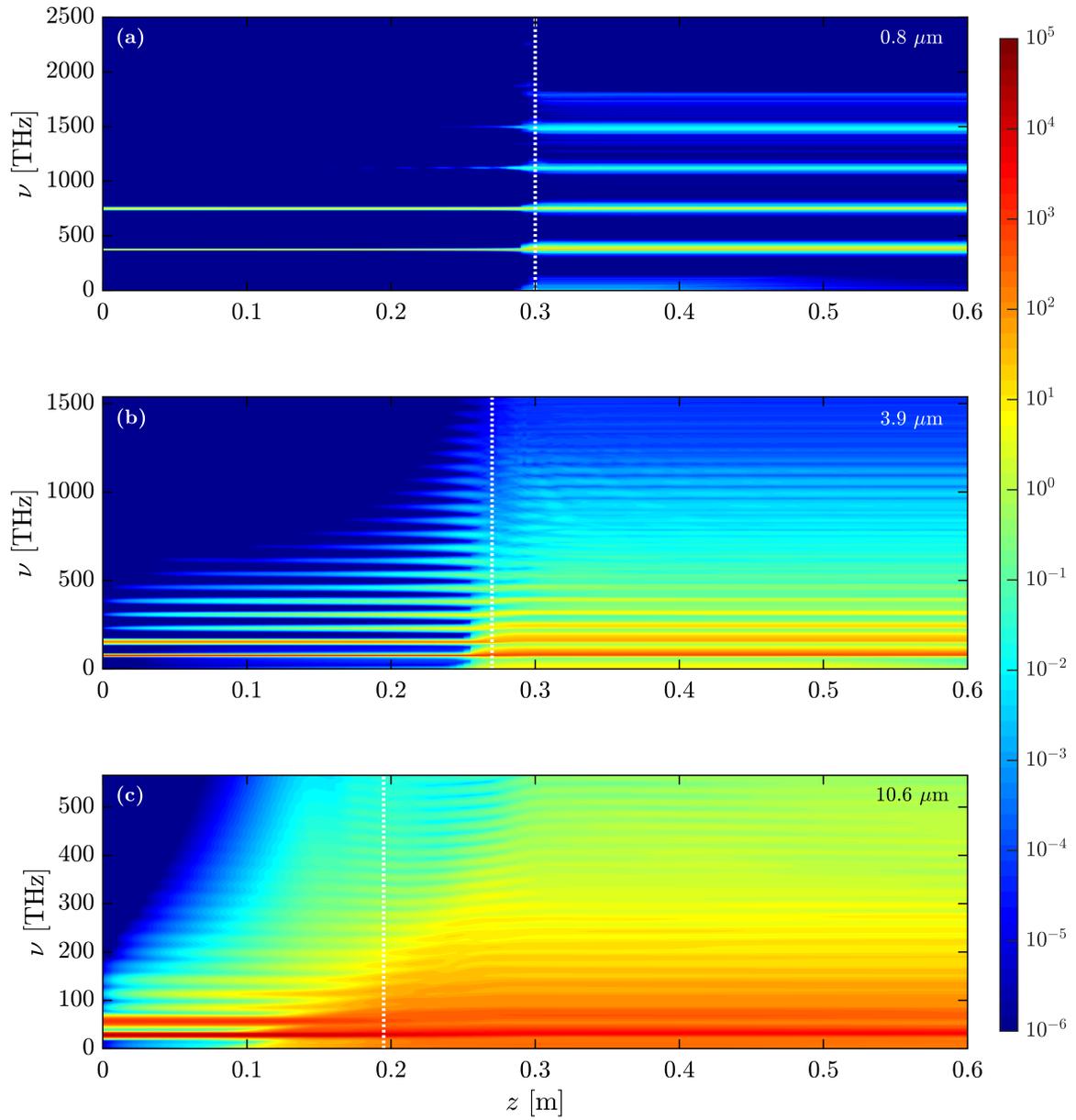


FIGURE 4.13 – (a,b,c) Spectres de l'intensité le long de la propagation pour $\lambda_0 =$ (a) $0.8 \mu\text{m}$, (b) $3.9 \mu\text{m}$ et (c) $10.6 \mu\text{m}$. Les lignes pointillées verticales indiquent la distance de production maximale de champs THz.

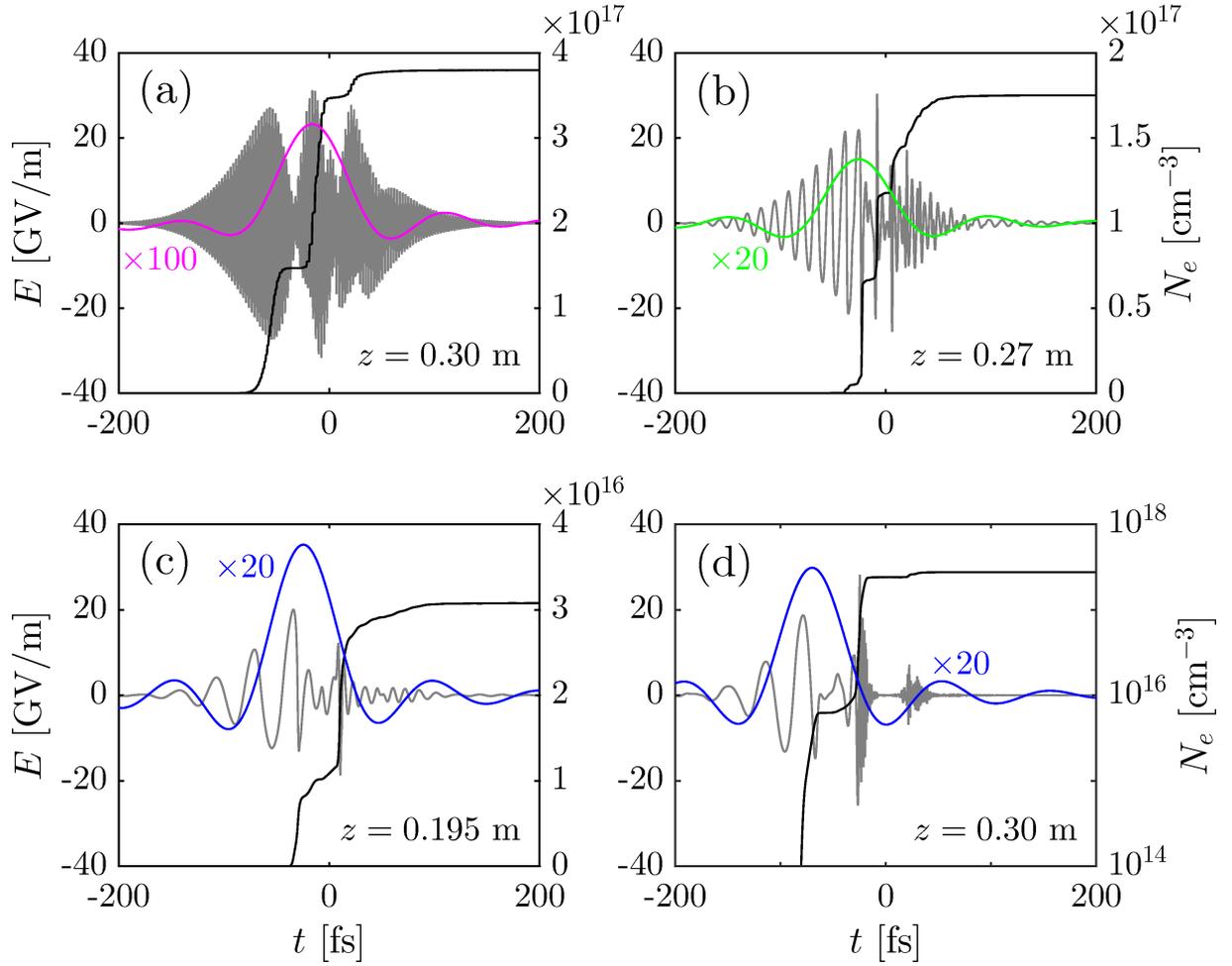


FIGURE 4.14 – Champs électriques sur l'axe de propagation pour des FH à (a) $0.8 \mu\text{m}$, (b) $3.9 \mu\text{m}$ et (c,d) $10.6 \mu\text{m}$ aux distances indiquées (courbes grises, axe de gauche). Les courbes colorées correspondent aux champs THz sur l'axe ($\times 20$ ou $\times 100$). Les courbes noires montrent la densité électronique associée (axe de droite).

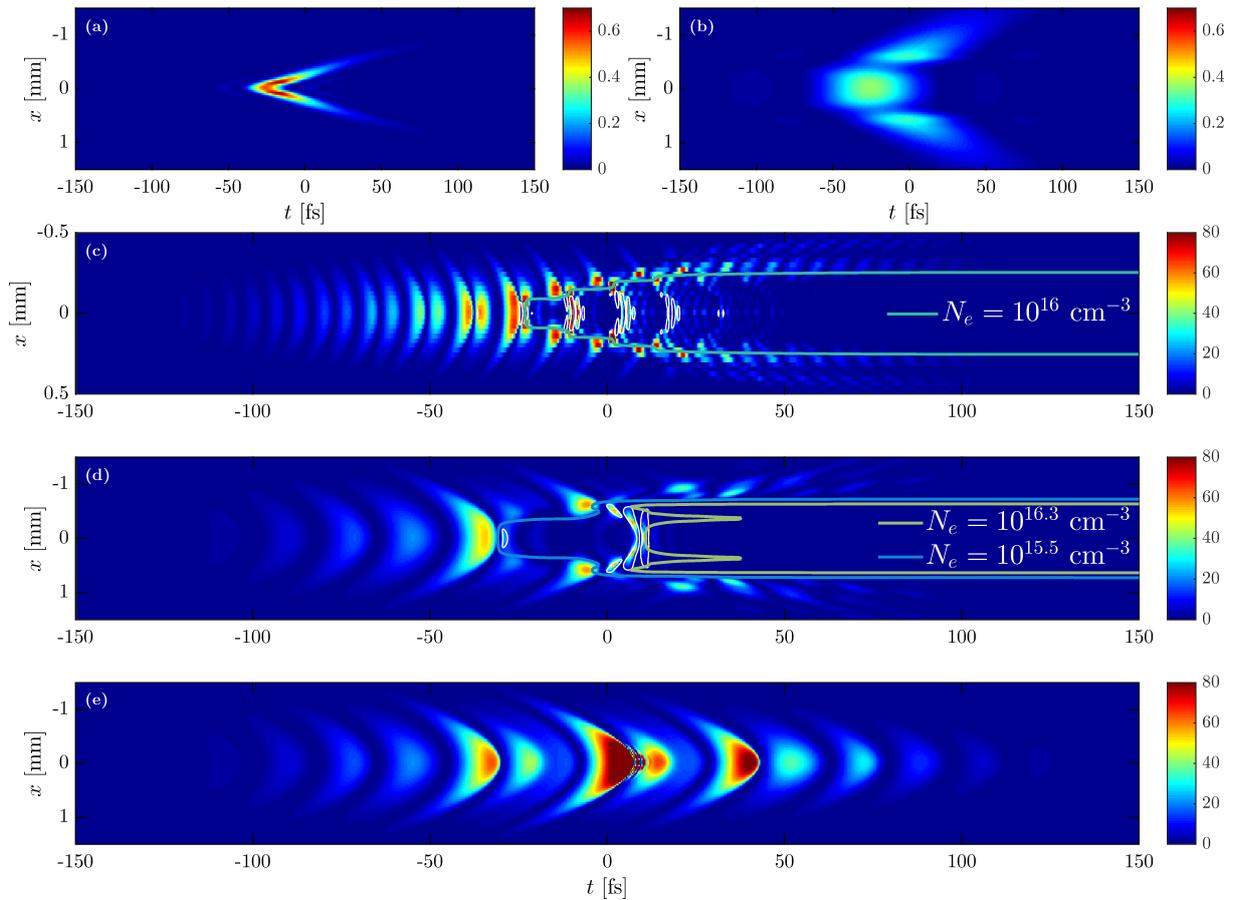


FIGURE 4.15 – (a,b) Champs THz dans le plan (x, t) pour des FH à (a) $3.9 \mu\text{m}$ et (b) $10.6 \mu\text{m}$ aux distances $z = 27 \text{ cm}$ et $z = 19.5 \text{ cm}$ respectivement. (c,d,e) Champs électriques dans le plan (x, t) pour des FH à (c) $3.9 \mu\text{m}$ et (d,e) $10.6 \mu\text{m}$ aux mêmes distances. Les lignes blanches marquent l'emplacement des harmoniques élevés. Les lignes vertes sont des isocontours pour la densité électronique (voir niveaux sur les figures). (e) Cas sans plasma.

amplifiés sur une longueur de cohérence $L_{n\omega_0} = \pi/[k(n\omega_0) - nk(\omega_0)]$ plus grande [16] et ils forment un supercontinuum plus large à travers la nonlinéarité plasma et l'auto-modulation de phase [figures 4.13(a,b,c)]. L'ionisation survient à l'arrière de l'impulsion, mais les composantes pompe les plus intenses restent dans la partie non déplétée à l'avant de l'impulsion [voir figures 4.14(a,b,c)]. Le champ THz est piqué là où le champ pompe est maximum et il augmente avec λ_0 .

Un autre phénomène apparaît à $10.6 \mu\text{m}$. Comme montré sur les figures 4.10(d,e), les champs THz sont maximum bien avant la distance de génération maximum de plasma. Au foyer, les harmoniques élevés nourrissent principalement l'ionisation. Cependant, ils ne produisent pas d'ondes THz par photocourants car leurs profils temporels ne peuvent pas former un champ asymétrique engendrant efficacement des émissions basses-fréquences. La figure 4.14 permet de confirmer ce point : au foyer, la partie arrière du champ élec-

trique composé des harmoniques élevés est suffisamment intense pour contribuer seule à la génération de plasma. Les pas d'ionisation sont créés sur l'axe par les harmoniques élevés qui sont capables de se propager dans le plasma, contrairement aux composantes optiques à ω_0 et $2\omega_0$, comme montré sur la figure 4.15. Sur cette figure, les champs THz [figures 4.15(a,b)] et totaux [figures 4.15(c,d,e)] sont montrés dans le plan (x,t) à la distance de production maximum de rayonnement THz. Les figures 4.15(a,c) se réfèrent à un FH de 3.9 μm , et les figures 4.15(b,d,e) à un FH de 10.6 μm ; la figure 4.15(e) représente le cas sans plasma. On remarque que lorsque la densité électronique est supérieure à 10^{16} cm^{-3} (à droite des lignes bleu-vert), seuls les harmoniques élevés (entourés de lignes blanches) peuvent se propager. Ceux-ci créent un second pas d'ionisation à 10.6 μm . Dans le cas sans plasma [figure 4.15(e)], les composantes optiques sont présentes sur toute l'étendue temporelle de l'impulsion. Par comparaison avec les figures 4.15(a,b), les champs THz sont émis par les composantes optiques et ne peuvent pas non plus se propager dans le plasma à cause de l'opacité de ce dernier, d'indice optique $\eta = \sqrt{1 - \omega_p^2/\omega^2}$. Les harmoniques élevés ne contribuent donc pas directement à la génération de rayonnement THz. Au foyer, comme dit précédemment, la génération d'ondes THz provient seulement des deux couleurs résiduelles survivant à l'avant de l'impulsion et formant les premier pas d'ionisation (voir figure 4.14). Comme la plus large surface de plasma s'étend à $z = 19.5 \text{ cm}$ [voir figure 4.12(f)], la génération maximum de rayonnement THz a lieu à cette distance. Beaucoup moins d'énergie THz est produite à $z = 30 \text{ cm}$, car le diamètre du plasma est diminué d'un facteur ~ 3.5 . Enfin, notons que le modèle LC surestime en général les gains THz produits dans des modèles numériques plus réalistes (par exemple UPPE). Le gain de 4 décades en énergie THz est ici retrouvé dans nos simulations UPPE à cause de la distribution transverse du plasma qui est plus large.

4.3.3 Ionisation coulombienne à plusieurs corps

Pour avoir une caractérisation complète des impulsions à 10.6 μm , il est de nos jours bienvenu d'examiner l'effet de l'ionisation de Coulomb à plusieurs corps (MBI) proposé par Schuh *et al.* [85, 86] (voir figure 4.16). Grâce à des simulations microscopiques complètes prenant en compte les interactions à plusieurs corps entre les électrons, ces auteurs ont montré que le taux d'ionisation peut être augmenté pour les faibles intensités et les grandes longueurs d'onde laser, comme le montre la figure 4.16 (gauche). En effet, sous irradiation d'un fort champ laser, les électrons se trouvant dans un état excité provenant d'atomes voisins peuvent interagir, créant une anisotropie dans la polarisation des électrons liés et augmenter ainsi le taux d'ionisation. Cet effet est d'autant plus pertinent que la longueur d'onde de pompe est grande. Il se manifeste à de faibles intensités laser où les ionisations

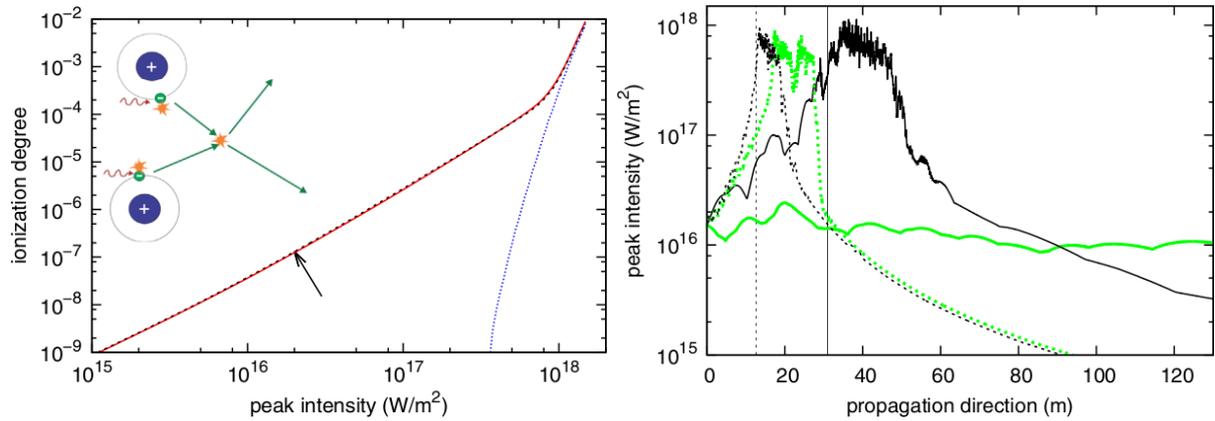


FIGURE 4.16 – (Gauche) Taux d'ionisation résultant de simulations microscopiques complètes (courbe rouge) et résultat du fit associé (courbe noire tiretée, voir équation (4.15)). La courbe pointillée bleue montre le taux QST. L'insert est un schéma de l'ionisation coulombienne à plusieurs corps. Les électrons liés de différents atomes interagissent pour créer une polarisation suffisante libérant des électrons aux basses intensités et aux longueurs d'onde élevées. (Droite) Résultats de simulations UPPE à 4 μm (courbes pointillées) et 10 μm (courbes solides), avec (courbes vertes) et sans MBI (courbes noires). Source : Schuh [86].

multiphotonique ou tunnel disparaissent. Il faut donc en tenir compte pour les champs optiques dans l'infrarouge lointain. Pour le modéliser, nous utilisons le fit proposé dans la référence [86] pour une longueur d'onde de pompe de 10 μm en interaction avec des atomes d'argon :

$$W_{\text{MBI}}(E) = CE^4 \sqrt{\frac{E^2 + s}{E^2}}, \quad (4.15)$$

où $C = 1.1095 \times 10^4 \text{ m}^4/\text{GV}^4$ et $s = 4.6 \text{ GV}^2/\text{m}^2$. Ce fit a été établi à partir de simulations microscopiques complètes de type TDSE (“Time-Dependant Schrödinger Equation”) comprenant les interactions entre électrons soumis à un champ laser extérieur. Les taux d'ionisation donnés par ces simulations et le fit ci-dessus sont en très bon accord comme le montre la figure 4.16 (gauche). La figure 4.16 (droite) montre les résultats de simulations UPPE à deux longueurs d'onde, 4 et 10 μm , dans lesquelles sont ajoutés ou non les effets coulombiens. Alors que le filament à 4 μm est relativement peu modifié par la présence de MBI, le filament à 10 μm voit son intensité maximale réduite à l'intensité initiale et maintenue constante le long de la propagation, créant un filament à flux relativement bas pouvant se propager sur plusieurs centaines de mètres.

Nous considérons donc maintenant un gaz d'argon à la pression ambiante et, à l'aide des paramètres du tableau 4.1, nous simulons des impulsions focalisées de 100 fs opérant à une puissance d'entrée égale à la puissance critique avec un rayon $w_0 = 3.5 \text{ mm}$. Le taux MBI est ajouté au taux PPT de l'équation (2.78), ce qui donne la courbe d'ionisa-

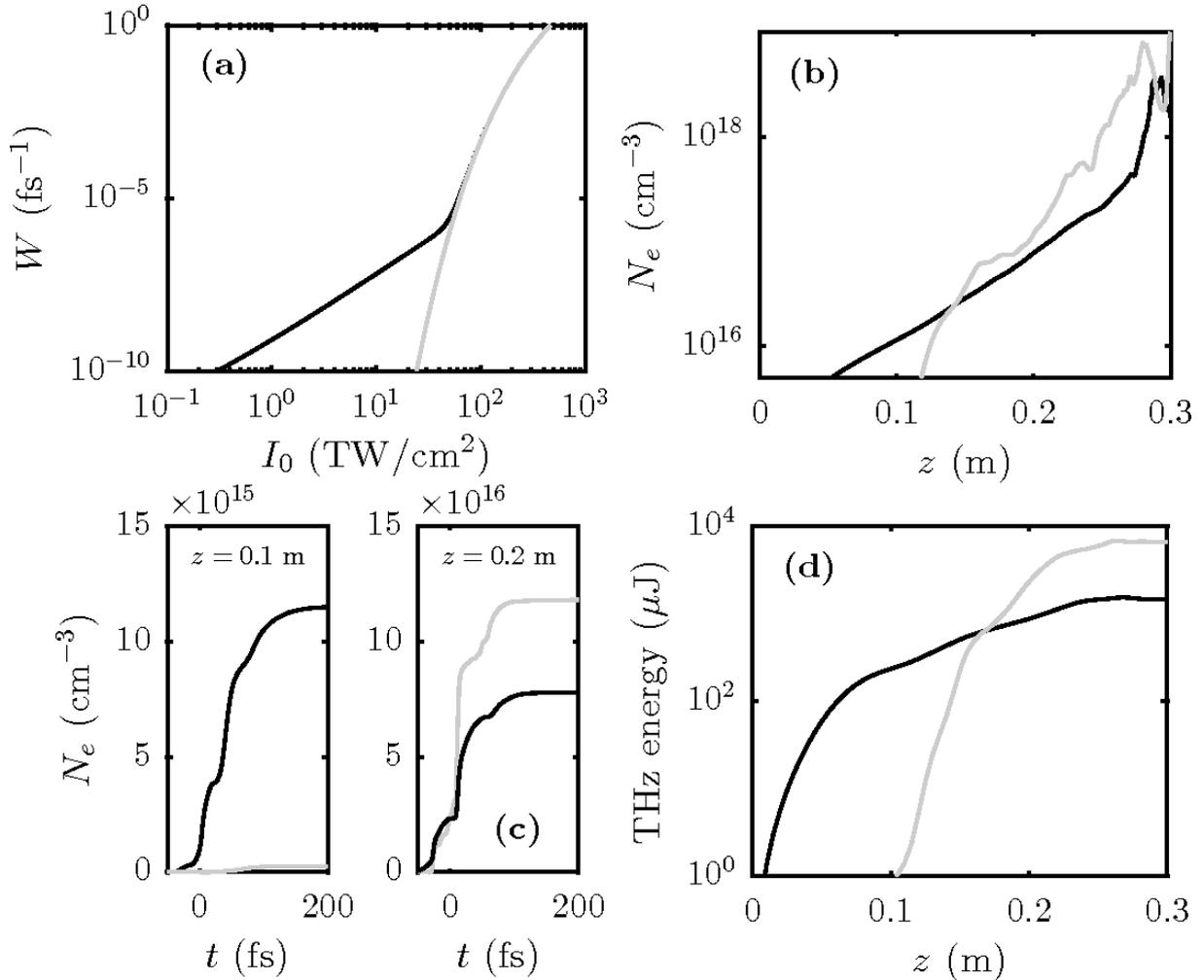


FIGURE 4.17 – (a) Taux d'ionisation en fonction de l'intensité laser avec (ligne noire) ou sans (ligne grise) MBI évalué à partir de l'équation (3.3) pour un gaz d'argon à 1 bar. (b) Densité électronique maximum atteinte le long de la propagation (simulations UPPE avec ionisation collisionnelle) incluant (courbe noire) ou non (courbe grise) la MBI. (c) Profils de densité plasma en temps à $z = 0.1$ m et $z = 0.2$ m. (d) Rendement en énergie THz associé.

tion tracée sur la figure 4.17(a). Par rapport au taux PPT seul, le taux MBI $\propto E^4$ est important dans la région d'intensité $< 20 \text{ TW/cm}^2$ et permet une ionisation plus efficace aux distances de propagation antérieures [voir la figure 4.17(b)]. La figure 4.17(c) détaille la réponse temporelle du plasma, qui est principalement régie par l'équation (4.15) dans la plage $z \leq 10 \text{ cm}$. Elle présente une augmentation par pas, ce qui peut favoriser des photocourants efficaces bien que les pas MBI soient moins marqués que ceux du régime tunnel à, par exemple, $z = 20 \text{ cm}$. Avec cette contribution supplémentaire du plasma, nous rapportons enfin sur la figure 4.17(d) que l'émission THz commence au tout début de la plage de propagation aux intensités inférieures à 10^{13} W/cm^2 , mais elle sature en raison de la défocalisation plasma. Sans MBI, un rendement énergétique de 7 mJ est atteint, ce qui correspond à une efficacité de conversion de 4%. Avec la MBI, des valeurs comparables, bien que quantitativement inférieures, sont atteintes : 1.5 mJ d'énergie THz et 0.9% d'efficacité de conversion. Ainsi, même avec une défocalisation plasma supplémentaire, on obtient des rendements THz qui n'infirmement pas les valeurs attendues sans MBI.

4.3.4 Conclusion

En résumé, nous avons montré, grâce à des simulations UPPE 3D, que des filaments créés par laser CO_2 à deux couleurs peuvent générer des efficacités de conversion THz de plusieurs pourcents avec des intensités laser modérées. Les filaments dans l'infra-rouge lointain peuvent s'auto-guider sur de plus longues distances et engendrer des énergies THz de plusieurs mJ. Nous avons examiné les effets des conditions météorologiques ainsi que l'influence de l'ionisation à plusieurs corps. Même si ces derniers effets peuvent modifier l'efficacité de conversion dans une certaine mesure, ils permettent tout de même de produire des champs THz avec des énergies de l'ordre du mJ sur de grandes distances de propagation.

4.4 Résultats expérimentaux et numériques du projet ALTESSE pour les grandes longueurs d'onde laser

Dans cette partie, nous étudions les résultats expérimentaux obtenus au cours du projet ALTESSE (voir chapitre 1) relatifs à l'accroissement de la longueur d'onde fondamentale laser. Deux campagnes expérimentales ont été réalisées en utilisant deux amplificateurs paramétriques optiques (TOPAS, Light Conversion Ltd). Les faisceaux "signal" ($\lambda_0 \leq 1.6 \mu\text{m}$) et "idler" ($\lambda_0 > 1.6 \mu\text{m}$) schématisés sur la figure 4.18 ont été utilisés pour générer un plasma, tandis que l'impulsion à 800 nm délivrée par l'amplificateur laser régénératif

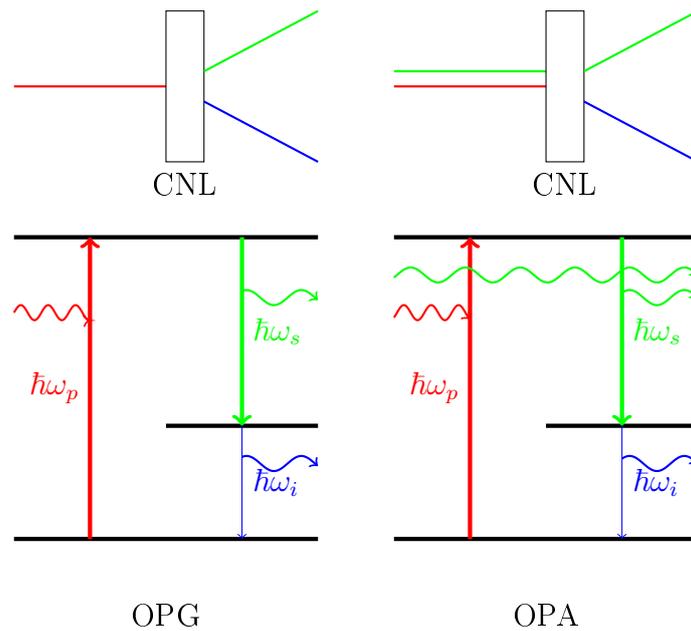


FIGURE 4.18 – Schéma de la génération paramétrique optique (OPG, gauche) et de l'amplification paramétrique optique (OPA, droite). Un faisceau pompe de fréquence ω_p est utilisé pour générer un faisceau signal de fréquence ω_s (et le faisceau idler de fréquence $\omega_i = \omega_p - \omega_s$ correspondant) en passant dans un cristal nonlinéaire (CNL). Les longueurs d'onde des faisceaux signal et idler sont choisies en fonction de l'accord de phase dans le cristal. La conversion pompe/signal étant faible, un étage d'amplification est nécessaire. Si les conditions d'accord de phase sont respectées, le faisceau signal est alors amplifié au détriment du faisceau pompe, avec production du faisceau idler associé.

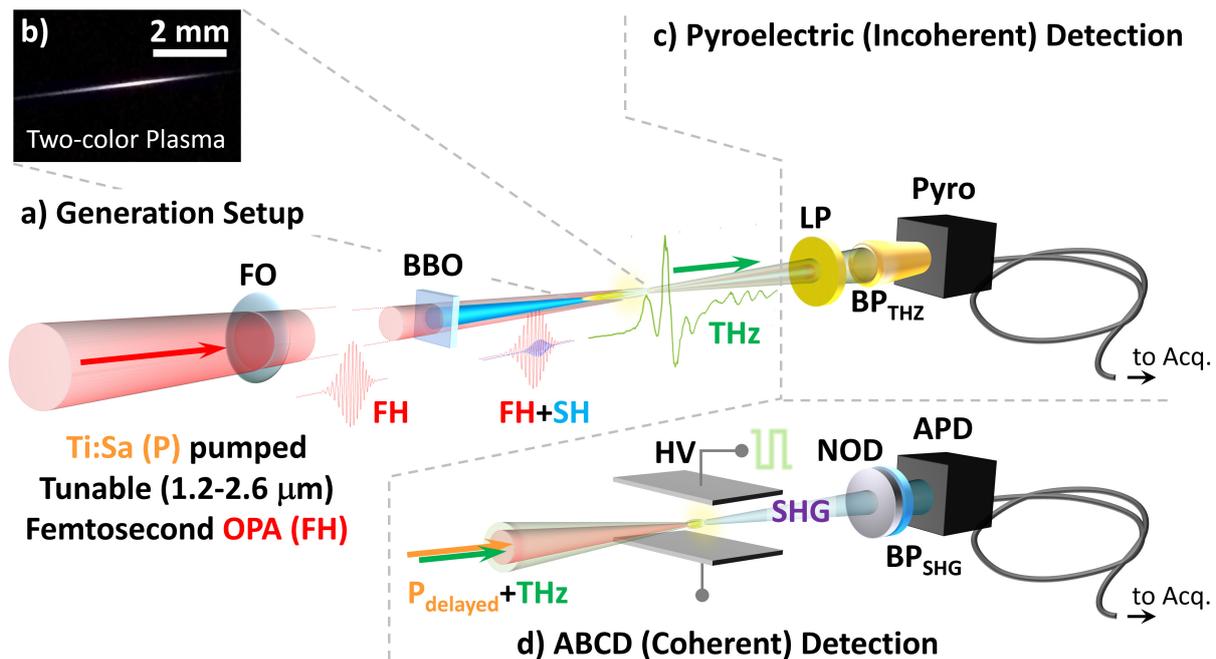


FIGURE 4.19 – Génération et détection de champs THz produits par des impulsions laser à deux couleurs. (a) Schéma de génération. Le FH passe à travers les optiques focalisantes (lentilles ou paraboles hors-axe) et le cristal BBO. Une impulsion THz de ~ 150 fs est émise dans l'air par (b) le plasma généré de 5 mm de long. (c) Mesures d'énergie utilisant un filtre passe-bas (LP : lame de téflon suivie par un film métallique microstructuré avec < 18 THz) et un filtre passe-bande (BP) avant le détecteur pyroélectrique (Pyro). (d) Système de détection ABCD capturant le SH de la ligne à retard couplée avec le champ THz et un champ statique à haut voltage (HV). L'impulsion SH est créée par mélange à quatre ondes dans l'air et collectée par des filtres à densité optique neutre (NOD) et un filtre BP avant d'atteindre un photodétecteur à avalanche (APD). To Acq. : à l'acquisition.

a été exploitée pour former une ligne à retard afin de mesurer le champ électrique THz par la méthode ABCD. Des croissances impressionnantes de l'énergie THz mesurée ont été collectées, surpassant celles rapportées dans la référence [31] et dans les simulations précédentes.

4.4.1 Installations laser

Au cours du projet ALTESSE, les expériences sur l'influence de la longueur d'onde laser sur le rendement THz ont été effectuées sur deux installations différentes, à DTU Fotonik (Lyngby/Danemark) et au CELIA, dont les caractéristiques sont détaillées ci-dessous. Dans les deux configurations, le schéma de génération d'impulsions THz est identique et présenté sur la figure 4.19.

DTU Fotonik : Un laser Solstice ACE Spectra Physics opérant à haute énergie (HE) fournissait la pompe initiale à 800 nm avec une durée à mi-hauteur de 35 fs (TL) à 100 fs. Le système TOPAS était pompé par des impulsions de 6 mJ à un taux de répétition de 1 kHz pour générer des faisceaux avec une énergie allant jusqu'à 3 mJ, focalisés par une lentille de distance focale ~ 20 cm. L'impulsion fondamentale était envoyée sur un cristal β -BBO de type I de 100 μm d'épaisseur pour la génération du SH. Environ 10% d'énergie de SH fut produite dans les domaines en longueur d'onde de 1.2 - 1.5 μm (puissance FH ≈ 900 mW) et 2.4 - 2.6 μm (puissance FH ≈ 450 mW), pour lesquels la puissance moyenne était gardée constante. Des miroirs paraboliques hors axe ont été utilisés pour collimater et focaliser le champ THz. Une combinaison d'une lame de téflon et d'un film métallique microstructuré permettait de bloquer les faisceaux laser FH et SH résiduels. La détection du champ THz a été effectuée en utilisant la technique ABCD, pour des spectres THz limités à la gamme de fréquences $\nu < 20$ THz. Une photodiode à avalanche (APD) a été utilisée comme photodétecteur et un détecteur pyroélectrique (QMC Instruments Ltd) équipé d'une seconde lame de Si a permis de réaliser les mesures d'énergie.

CELIA : Le système TOPAS était alimenté par un amplificateur Ti:Sa (25 fs, 4.5 mJ), capable de délivrer, par exemple, des impulsions à 2 μm d'une durée à mi-hauteur de 60 fs. Le même dispositif qu'à DTU Fotonik a été exploité, à la différence que des miroirs focalisants ont pu également être exploités ($f = 20$ cm). Des scans en intensité ont permis d'explorer les dépendances du seuil de détection THz avec la longueur d'onde pompe avant de procéder aux mesures énergétiques THz. Le même détecteur pyroélectrique qu'à DTU a été utilisé pour mesurer les rendements en énergie THz de manière continue dans le domaine en longueur d'onde 1.3 - 2.2 μm pour une énergie de faisceau ajustée entre 0.1 et 0.6 mJ. Toutes les données expérimentales relatives à cette campagne ont été extraites pour une énergie de faisceau de 0.3 ± 0.01 mJ. Un schéma du montage expérimental montrant une trace plasma de 5 mm de long et une forme d'onde THz typique pour un FH de 1.5 μm est illustré sur la figure 4.19.

4.4.2 Données expérimentales

La figure 4.20 résume les données expérimentales obtenues lors des deux campagnes DTU et CELIA, c'est-à-dire les signaux THz (proportionnels à l'énergie rayonnée) enregistrés à partir des dispositifs décrits précédemment. Malgré les différentes gammes de longueurs d'onde étudiées, les courbes de fit globales de cette figure soulignent les impressionnantes augmentations en λ_0^α avec des puissances α dépassant non seulement la puissance ≈ 4.6 indiquée en référence [31], mais aussi des exposants capables d'atteindre

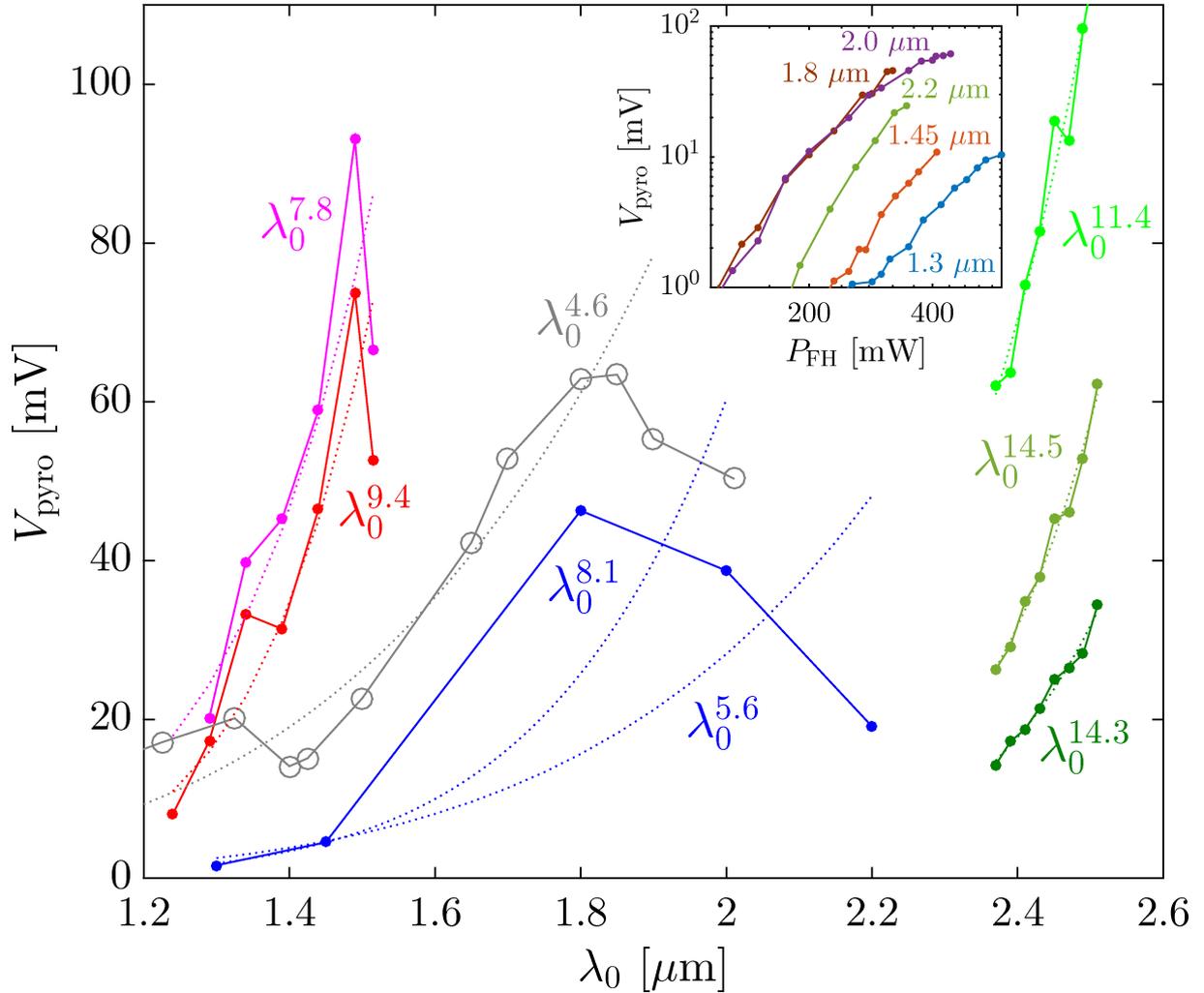


FIGURE 4.20 – Signal du détecteur pyroélectrique donnant le rendement en énergie dans la fenêtre fréquentielle $\nu < 20$ THz. Mesures DTU (courbes rouges/magenta : 1.2 - 1.5 μm et courbes vertes : 2.4 - 2.6 μm) entourant de part et d'autre celles du CELIA (courbe bleue : 1.3 - 2.2 μm). La puissance d'entrée moyenne du faisceau pompe est fixée pour chaque intervalle de longueur d'onde scanné, soit 840 mW (magenta), 720 mW (rouge), 300 mW (bleu foncé), 348 mW (vert foncé), 420 mW (vert) and 558 mW (vert clair). Les courbes pointillées sont des courbes de fit en λ_0^{α} . Les cercles gris rappellent les données de la référence [31]. L'insert montre le signal du détecteur pyroélectrique variant avec la puissance moyenne du FH pour le domaine en longueur d'onde examiné au CELIA.

$\alpha \approx 7 - 9$, jusqu'à presque 15 à la plus grande longueur d'onde FH. Il convient toutefois de noter que les plus grands exposants se réfèrent généralement aux largeurs de bande les plus étroites en longueurs d'onde FH, ce qui peut ne pas fournir une loi d'échelle significative. Dans la gamme intermédiaire plus large de longueurs d'onde étudiée au CELIA, $1.3 \leq \lambda_0 \leq 2.2 \mu\text{m}$, la pente des gains d'énergie THz reste plus proche des données de Clerici [31] (cercles gris). Notons la diminution générique du signal du détecteur pyroélectrique affectant les plus grandes longueurs d'onde d'un intervalle spectral donné. Nous n'attribuons pas cette diminution à une perte de photo-ionisation [31] car l'ionisation par effet tunnel est indépendante de λ_0 , ni à une perte de transmittance de BBO [35], à cause de la mince épaisseur du cristal doubleur utilisé. Comme montré ci-dessous par les simulations numériques, cette diminution résulte des modifications de l'angle de phase induites par le cristal BBO. Un scaling global en $\lambda_0^{7.7}$ peut être extrait en moyennant les exposants de cette figure pour des intervalles suffisamment larges en longueur d'onde FH, c'est-à-dire pour $\lambda_0 \leq 2.2 \mu\text{m}$.

4.4.3 Paramètres des faisceaux et génération de second harmonique

Pour comprendre les variations de l'énergie THz avec la longueur d'onde de pompe observées sur la figure 4.20, des mesures plus précises du faisceau laser ont été effectuées lorsque la longueur d'onde pompe est modifiée. Les figures 4.21(a,b) détaillent ainsi le diamètre du faisceau et la durée des impulsions mesurés sur le TOPAS de DTU pompé par l'amplificateur d'énergie 6 mJ et de durée 100 fs. Les diamètres de faisceau ont été mesurés par un analyseur à balayage de fente (Thorlabs). Les faisceaux extraits du "signal" sont en général plus larges avec des profils spatiaux presque supergaussiens, alors que les faisceaux "idler" sont plus fins et presque gaussiens (non montrés). Ces figures, en accord avec [62], montrent que les durées d'impulsions et les diamètres de faisceaux initiaux peuvent varier avec λ_0 de quelques dizaines de fs ou quelques mm dans la gamme 1.3 - 1.8 μm , respectivement. Par comparaison, la durée d'impulsion de la référence [31] a été maintenue dans un intervalle fin de ± 5 fs et le ratio en énergie SH/FH mesuré a été correctement maintenu autour de 5% ($5 \pm 2\%$). Cependant, un diamètre de faisceau constant a été seulement conjecturé [30], ce qui peut être mis en défaut. La distance BBO-plasma était de ≈ 1.2 cm. Des changements dans ces paramètres, comme nous le verrons dans les paragraphes suivants, peuvent affecter notablement les performances du cristal BBO pour la conversion SH/FH, l'intensité locale atteinte au foyer et *la phase relative entre les deux couleurs qui est cruciale dans le mécanisme de conversion THz*. Dans nos expériences, le cristal BBO a été positionné à une distance fixée $\simeq 5$ cm du point focal

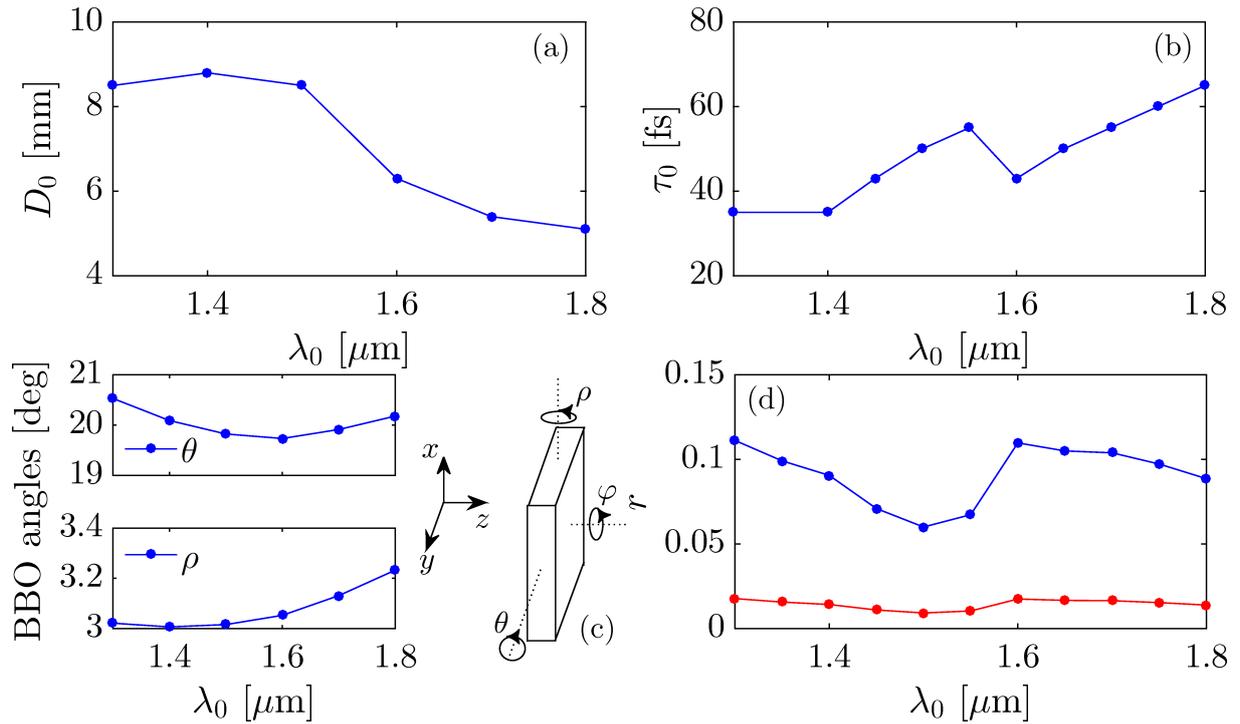


FIGURE 4.21 – (a) Diamètres à mi-hauteur et (b) durée d’impulsion en fonction des longueurs d’onde FH, mesurés sur le DTU HE-TOPAS pompé par un amplificateur délivrant des impulsions de 100 fs et 6 mJ à 800 nm. (c) Variations des angles θ et ρ optimisant la SHG à travers la polarisation du FH par rapport au réseau cristallin, et le walk-off temporel entre les deux couleurs le long du BBO, respectivement [92]. (d) Variations en fonction de λ_0 du rapport r en énergie SH/FH calculé à partir de l’équation (4.16) pour un cristal BBO de 100 μm d’épaisseur, dépendant de l’angle φ de projection du SH sur l’axe du FH. Courbe bleue : $\varphi = 0$. Courbe rouge : SH projeté avec $\varphi = 0.2\pi$.

linéaire, permettant une génération de rayonnement THz maximum tout en évitant le seuil de dommages du cristal. Tous les angles du cristal BBO ont été optimisés afin de maximiser la génération de rayonnement THz à chaque longueur d'onde laser. Un rapport en énergie SH/FH typique de $\sim 10 - 12\%$ a été mesuré dans la gamme des longueurs d'onde FH $1.3 \leq \lambda_0 \leq 2.2 \mu\text{m}$.

Des valeurs similaires de conversion en énergie vers la deuxième couleur ont été obtenues en intégrant numériquement le modèle d'enveloppe standard de génération d'harmonique deux [20]. Nous avons d'abord vérifié que les angles polaire et azimutal du cristal BBO assurant la génération maximum de SH ne changeaient pas dans la gamme précédente de longueurs d'onde laser, comme confirmé par la figure 4.21(c). Dans un second temps, nous avons évalué l'intensité locale déposée sur le cristal doubleur, en utilisant les diamètres de faisceau de la figure 4.21(a) et les énergies/puissances moyennes mentionnées dans le paragraphe 4.4.1 pour extraire les ratios SH/FH calculés à l'aide du modèle de génération de second harmonique (SHG) standard [20]. Ce modèle est issu de l'équation (2.118) dans laquelle les termes nonlinéaires sont uniquement la polarisation d'ordre 2 due au cristal, avec les approximations d'enveloppes lentement variables $|\partial_t A_j| \ll \omega_j |A_j|$, $|\partial_z^2 A_j| \ll k_j |\partial_z A_j|$:

$$\partial_z \widehat{A}_2 = i \frac{\omega_2 \chi^{(2)}}{cn_{c,2}} \widehat{A}_1^2 e^{i\delta k z}, \quad \partial_z \widehat{A}_1 = i \frac{\omega_1 \chi^{(2)}}{cn_{c,1}} \widehat{A}_1^* \widehat{A}_2 e^{-i\delta k z}, \quad (4.16)$$

où l'indice $j = 1, 2$ se réfère aux composantes FH et SH, respectivement associés aux enveloppes lentement variables A_j de la j ème couleur de champ

$$\widehat{E}_j(\omega_j, z) = \widehat{A}_k(\omega, z) \exp[ijn_{c,j}(0)\omega_0 z/c] \quad (4.17)$$

aux fréquences $\omega_j = \omega + j\omega_0$, $\omega \ll \omega_0$. L'indice de réfraction $n_{c,j}(\omega)$ dépendant de ω est l'indice de dispersion du cristal BBO variant le long des axes ordinaire [$n_{c,1}(\omega) = n_o(\omega_1)$] et extraordinaire [$n_{c,2}(\omega) = n_e(\theta, \omega_2)$], et selon l'angle θ défini sur la figure 4.21(c). La rotation de l'angle θ permet de changer l'indice optique de l'axe extraordinaire du BBO selon la relation

$$\frac{1}{n_e(\theta)} = \sqrt{\frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2} + \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2}} \quad (4.18)$$

où n_o et n_e sont les indices des axes ordinaire et extraordinaire. Pour avoir un accord de phase, et donc maximiser la génération de second harmonique, l'angle θ doit être choisi de telle sorte que l'indice optique $n_e(\theta)$ à $2\omega_0$ soit égal à l'indice n_o à ω_0 . On construit alors l'indice de dispersion n_c du cristal BBO intervenant dans le modèle SHG avec l'indice n_o autour de ω_0 et $n_e(\theta)$ autour de $2\omega_0$. La différence de phase en nombre d'onde s'écrit alors

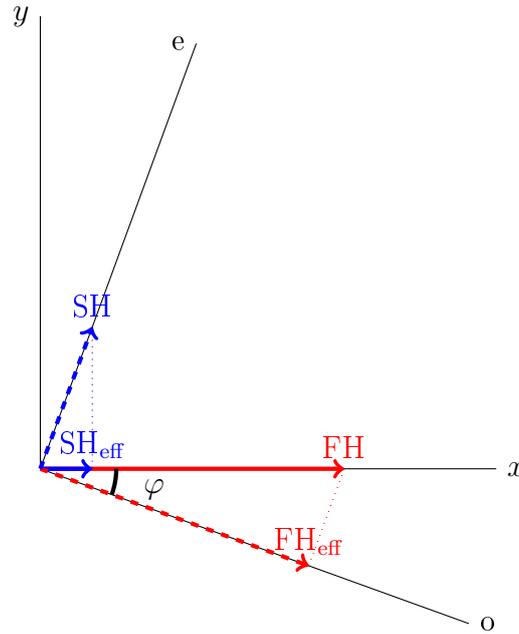


FIGURE 4.22 – Projections de FH et SH sur les axes ordinaires et extraordinaires du cristal β -BBO de type I.

$$\delta k(\omega) \equiv (n_{c,1} - n_{c,2})\omega_2/c.$$

Les rapports SH/FH

$$r = \frac{\int |\widehat{E}_2|^2 d\omega}{\int |\widehat{E}_1|^2 d\omega + \int |\widehat{E}_2|^2 d\omega} \quad (4.19)$$

résultant de ce modèle sont montrés par une courbe bleue sur la figure 4.21(d), qui est en bon accord avec les valeurs expérimentales. Pour une utilisation pratique dans le modèle UPPE, qui est scalaire et non vectoriel, l'intensité d'entrée du SH doit cependant être diminuée d'un facteur $\sim \cos^2 \varphi \sin^2 \varphi \approx 1/4$ (courbe rouge) en raison des projections des polarisations. En effet, comme montré sur le schéma 4.22, le champ électrique du FH doit d'abord être projeté sur l'axe ordinaire du cristal BBO. Pour un cristal BBO de type I, la génération optimum de SH se fait lorsque le champ FH est suivant l'axe ordinaire, produisant un SH suivant l'axe extraordinaire qui lui est orthogonal. Cependant, deux couleurs de polarisations exactement orthogonales est un cas défavorable à la génération de rayonnement THz, comme montré précédemment dans le chapitre 2. La polarisation du champ FH doit donc présenter un angle non nul avec l'axe ordinaire du BBO ($\cos \varphi < 1$). Le SH, généré suivant l'axe extraordinaire du BBO, doit ensuite être projeté suivant la polarisation du FH. Le rapport effectif résultant est alors implémenté dans le code UPPE.

La figure 4.23 montre l'énergie THz générée en fonction de la position du cristal doubleur, attendue par le modèle LC. Les rapports du SH par rapport au FH sont évalués par le modèle SHG, puis des phases de dispersion linéaire et de plasma sont ajoutées

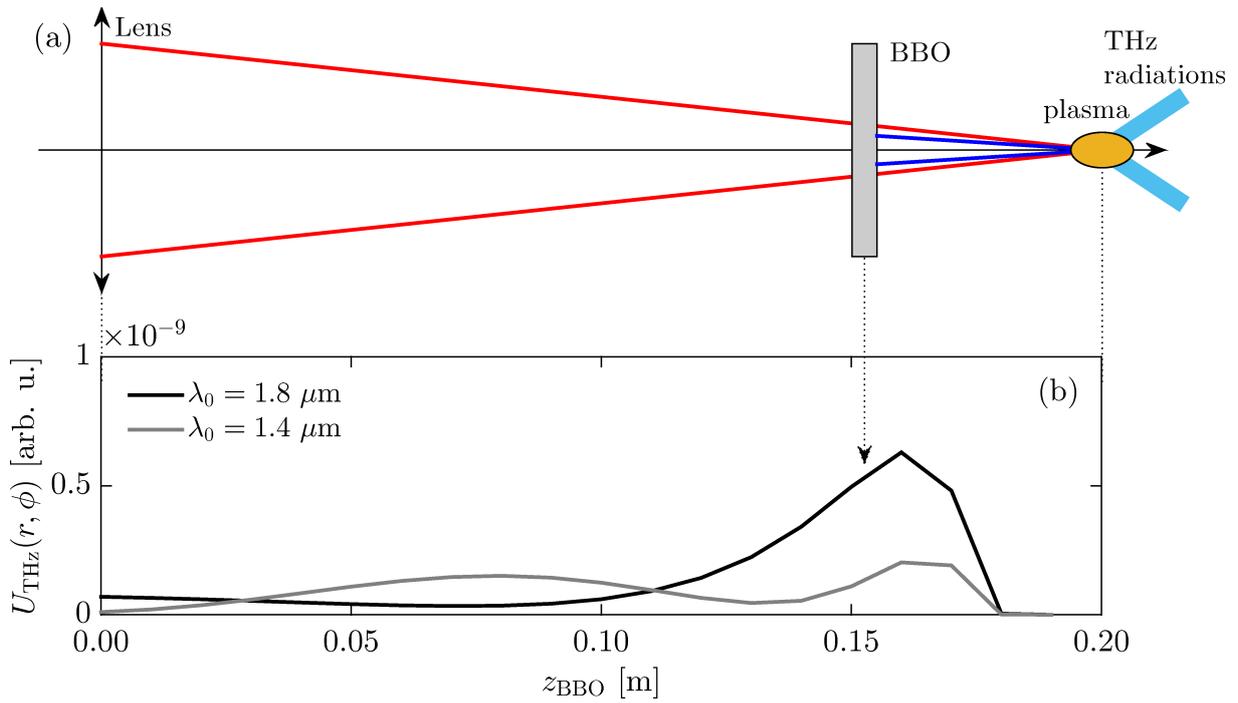


FIGURE 4.23 – (a) Schéma du montage comprenant la lentille de focalisation, le cristal BBO générant le SH et le plasma. (b) Rendements THz donnés par le modèle LC lorsque la position du BBO est variée le long de l’axe de propagation entre la lentille et le plasma, pour deux longueurs d’onde FH.

en fonction de la distance du BBO au foyer. La phase supplémentaire due au plasma est trouvée empiriquement avec des simulations UPPE préliminaires et vaut $\simeq 0.2\pi$. La génération de SH est calculée pour une énergie initiale de $800 \mu\text{J}$, avec les diamètres de faisceau et durées d’impulsion de la figure 4.21(c) pour deux longueurs d’onde laser, 1.4 et $1.8 \mu\text{m}$. L’intensité au foyer est choisie autour de $100 \text{ TW}/\text{cm}^2$, pour prendre en compte la saturation par la défocalisation plasma. Le rendement THz est calculé de façon classique comme dans le chapitre 2, à l’aide du modèle LC appliqué aux deux couleurs dont les amplitudes et phases sont celles du modèle SHG. L’ionisation est modélisée par un taux QST appliqué au dioxygène. Les courbes de la figure 4.23 montrent que la distance optimale BBO-plasma devrait, dans ces conditions, être comprise entre 2.5 et 5 cm, ce qui est en très bon accord avec les choix expérimentaux. Par ailleurs, la génération THz maximale à 4 cm avant le foyer montre un rapport entre les deux longueurs d’onde étudiées en puissance de 4.5 . Notons enfin les oscillations dans le rendement THz due à la variation de phase causée par la dispersion linéaire de l’air.

Pour compléter la réponse du cristal BBO, les figures 4.24(a,b) détaillent pour chaque λ_0 les variations de la phase relative sortant du cristal doubleur lorsque son angle θ est varié de sorte que le rapport d’énergie SH/FH fluctue autour de sa valeur maximale de

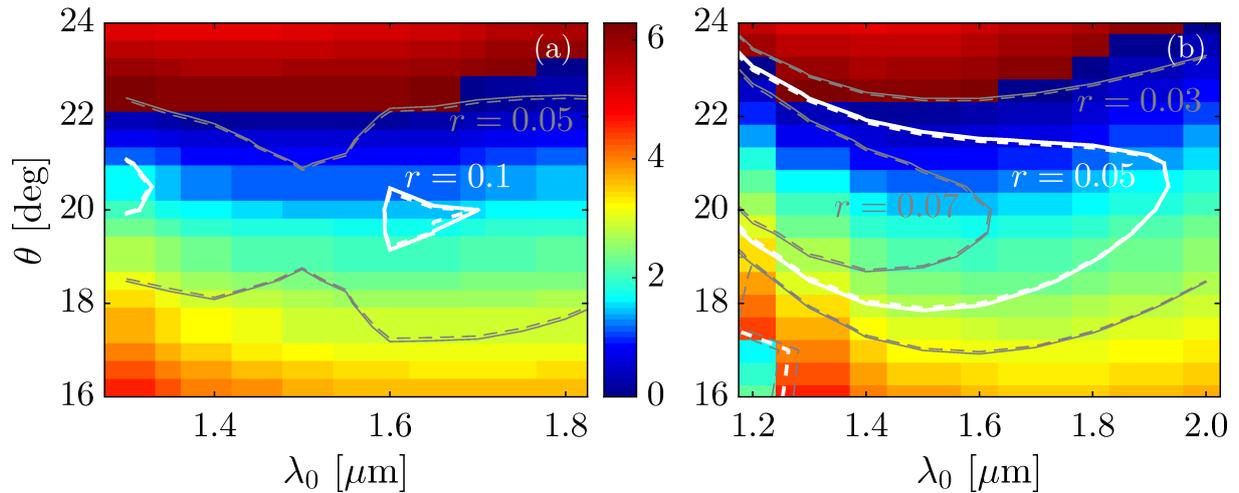


FIGURE 4.24 – Phase relative initiale ϕ entre les deux couleurs induite par le cristal BBO variant avec (θ, λ_0) pour les configurations (a) CELIA ($\varphi = 0.2\pi$) et (b) Clerici *et al.* ($\varphi = 0.4\pi$). Les lignes sont les niveaux de r calculés avec le modèle SHG (courbes solides) ou avec un fit en $r \propto \text{sinc}^2(\phi - \pi/2)$ (courbes pointillées) déduit du traitement analytique du même modèle.

$10 \pm 5\%$ pour l'expérience CELIA [figure 4.24 (a)] et de $5 \pm 2\%$ pour Clerici *et al.* [30] [figure 4.24 (b)]. Pour des variations modérées de ces quantités, la phase relative ϕ à la sortie du cristal BBO varie de 0 à π et ne peut être connue avec précision. Cependant, il est toujours possible d'extraire de l'équation (4.16) dans l'approximation de pompe non déplétée :

$$\widehat{A}_2 \simeq \frac{\omega_2 \chi^{(2)}}{cn_{c,2} \delta k} \widehat{A}_1^2 (e^{i\delta k z} - 1), \quad \partial_z \widehat{A}_1 \simeq 0, \quad (4.20)$$

les relations

$$r \propto \text{sinc}^2(\delta k L / 2); \quad \phi = \pi/2 + \delta k L / 2 \quad (4.21)$$

avec $L = 100 \mu\text{m}$ indiquant l'épaisseur de BBO et $\text{sinc}(x) = \sin(x)/x$. Les résultats de cette évaluation analytique sont représentés sous forme de lignes en pointillés sur les figures 4.24(a,b) et ils se superposent à la solution numérique de l'équation (4.16). Notons que la simple inégalité $\text{sinc}^2(\phi - \pi/2) > 1/2$ fournit des valeurs de la phase relative ϕ couvrant presque un intervalle π lorsque r est réduit de moitié. Par conséquent, on doit choisir nos valeurs de ϕ comme appartenant à cet intervalle de largeur π et se rapprochant au mieux des mesures d'énergie THz expérimentales.

4.4.4 Résultats des simulations

Des simulations UPPE ont été effectuées afin d'expliquer et confirmer les résultats expérimentaux. Elles ont toutes été réalisées pour un indice Kerr $n_2 = 3.7 \times 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$

4.4. Résultats expérimentaux et numériques du projet ALTESSE pour les grandes longueurs d'onde laser

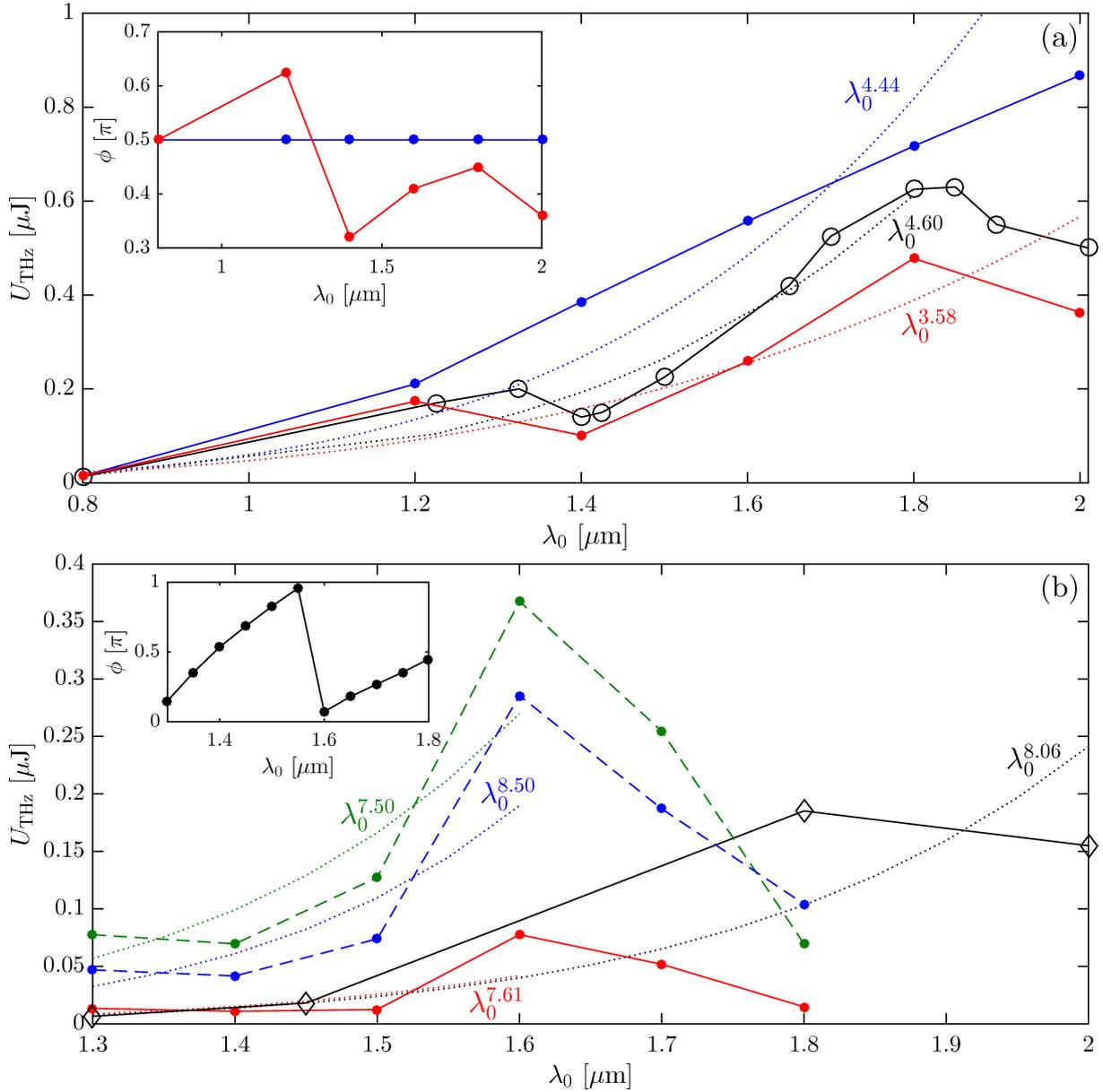


FIGURE 4.25 – (a) Énergie THz calculée avec le modèle UPPE 3D (points bleus) reproduisant les résultats expérimentaux de Clerici *et al.* [31] (cercles noirs), en prenant en compte le déphasage induit par le cristal BBO pour un rapport SH/FH en énergie de 5%. Les points rouges montrent les mêmes résultats mais avec un déphasage constant avec la longueur d'onde de $\pi/2$ induit par le cristal. L'insert montre les phases relatives entre les deux couleurs à la sortie du BBO. (b) Énergie THz simulée pour un cristal BBO placé à 5 cm du foyer, prenant en compte les rendement et déphasage induit par le cristal BBO dans le modèle SHG, à deux énergies incidentes, 800 μJ (courbe bleue) et 300 μJ (courbe rouge). La courbe verte montre l'énergie THz pour une énergie laser de 300 μJ et un rapport SH/FH fixé à 5%. La courbe noire montre les énergies évaluées à partir des données expérimentales. L'insert détaille à nouveau les valeurs de déphasage induit par le cristal.

avec une fraction de 80% de réponse Raman. Nous avons utilisé le taux d'ionisation PPT instantané appliqué à 80% de diazote et 20% de dioxygène.

Tout d'abord, les simulations des données de Clerici *et al.* [31] ont été refaites à l'échelle, en incluant la phase relative supplémentaire due au cristal BBO. La figure 4.25(a) montre les résultats de ces simulations, qui sont en très bon accord avec les données expérimentales. En faisant varier la phase induite par le cristal BBO dans l'intervalle $[0, \pi]$, les chutes de l'énergie THz observées à certaines longueurs d'onde ont pu être reproduites. La phase entre les deux couleurs initiale choisie est tracée en insert. Lorsque la phase initiale est fixée à $\pi/2$, ce qui correspond au cas de parfait accord de phase dans le cristal BBO, on retrouve la croissance monotone, observée dans les simulations des sections précédentes et prédite par le modèle LC. Le comportement est plutôt en λ_0^4 compte tenu du domaine de propagation optique plus long (puisque à l'échelle) que dans la section 4.1.

Nous avons ensuite simulé les données expérimentales de la figure 4.20 pour différentes longueurs d'onde laser dans la gamme 1.3 - 1.8 μm , et un cristal BBO placé à 5 cm du foyer. Les données expérimentales sur le diamètre des faisceaux et la durée des impulsions de la figure 4.21 ont été utilisées. Le rendement induit par le cristal doubleur a été calculé par le modèle SHG. La figure 4.25(b) montre les croissances en énergie THz à énergie laser fixée, c'est-à-dire 300 μJ (courbe rouge) et 800 μJ (courbe bleue), représentatives des configurations du CELIA et de DTU, respectivement. Pour comparaison, la courbe verte montre l'énergie THz produite pour un rapport SH/FH fixé de 5%. Les phases initiales utilisées sont montrées en insert.

Toutes les courbes de simulations ont des caractéristiques génériques. Le rendement THz croît jusqu'à $\lambda_0 = 1.6 \mu\text{m}$, avant de diminuer de la même façon que les données expérimentales (courbe noire). En comparaison avec ces dernières, il y a un décalage de $\sim \pm 0.2 \mu\text{m}$. Cette croissance jusqu'à $\lambda_0 = 1.6 \mu\text{m}$ et la décroissance qui la suit peuvent être modélisées par une loi en $\sin^2(\phi + \phi_p)$, où $\phi_p \simeq 0.45\pi$ est un décalage de phase dû à la propagation, relativement constant pour l'intervalle de longueurs d'onde FH considéré. Quand la phase relative initiale est artificiellement mise à zéro, une croissance monotone du rendement THz avec la longueur d'onde est retrouvée (non montrée).

Nos simulations nous permettent donc d'attribuer cette perte de croissance soudaine d'énergie THz au déphasage supplémentaire entre les deux couleurs introduit par le cristal BBO de 100 μm d'épaisseur. Elles confirment que les croissances impressionnantes rapportées dans les expériences dépendent principalement de la taille du faisceau initial et de la durée de l'impulsion, en fonction des variations induites par l'amplificateur optique paramétrique. Lorsque λ_0 est augmenté, la croissance de la durée d'impulsion augmente le nombre d'évènements d'ionisation, qui contribuent de manière constructive au champ THz induit par les photocourants [17]. La diminution de la largeur spatiale du faisceau

favorise des intensités initiales plus élevées, qui déclenchent la génération de plasma plus tôt le long du chemin optique et augmentent ainsi l'émission cumulée d'ondes THz. Nos résultats démontrent enfin que les variations appropriées de la taille du faisceau signal/idler et des durées des impulsions fournies par les systèmes TOPAS, lorsqu'elles impliquent des énergies laser comparables, peuvent générer des gains importants sur les rendements de conversion laser-THz sur de courts intervalles de longueur d'onde.

Cette analyse met en évidence les dépendances critiques du rendement THz mesuré par rapport aux paramètres du faisceau FH. Au-delà des études classiques (délai entre deux impulsions, rapport d'énergie FH/SH, etc.) conduisant à une croissance en $\sim \lambda_0^2$ uniquement, notre modèle complet et nos expériences soutiennent le meilleur accord entre mesures expérimentales et simulations numériques obtenu à ce jour. La divergence avec les lois de croissance publiées précédemment trouve son origine dans les distorsions spatiales du front d'onde et la phase temporelle accumulées dans les étages paramétriques et de conversion qui affectent à la fois le diamètre du faisceau et la durée des impulsions délivrées par les amplificateurs paramétriques optiques lors de l'optimisation de la longueur d'onde FH. Cette étude suggère ainsi d'étudier de nouvelles architectures OPA exemptes de ces couplages spatio-temporels.

4.5 Conclusion

En résumé, l'évolution de l'énergie THz en fonction de la longueur d'onde laser dépend fortement de la configuration laser utilisée. La première section a montré qu'en régime focalisé, où le plasma n'est que de quelques mm de long, les rendements THz obtenus par des simulations UPPE 3D sont en accord avec les estimations locales LC pour une évolution en λ_0^{2-4} , dépendant de la phase entre les deux couleurs. Une production maximale d'énergie THz est obtenue lorsque les deux couleurs présentent un déphasage de $\pi/2$ en zone d'ionisation (plasma), auquel cas une loi d'échelle en λ_0^2 s'applique. Cette évolution ne tient pas sur des filaments plus grands, notamment si les comparaisons sont faites à énergie constante et ne permettant pas de satisfaire la condition d'auto-focalisation $P_{\text{in}} > P_{\text{cr}}$ pour toutes les longueurs d'ondes. Pour exploiter pleinement le potentiel de la filamentation aux grandes longueurs d'onde laser, la seconde étude a été réalisée à nombre de puissances critiques constant, donc à énergie laser croissante avec la longueur d'onde. Des filaments plus importants sont ainsi créés à des longueurs d'onde laser dans le lointain infrarouge, conduisant à des énergie THz de plusieurs mJ se propageant dans un cône d'angle plus faible. Enfin, la dernière section a montré l'importance de la constance des paramètres laser dans les lois de croissance, et notamment de la phase entre les deux couleurs qui peut être modifiée par le cristal doubleur. Le déphasage induit par ce cristal

conditionne la performance de conversion laser-THz pour une longueur d'onde fondamentale donnée et pour une position fixe du cristal BBO. Nous avons démontré que, pour des ensembles de tailles transverses et durées d'impulsion FH donnés, la phase relative acquise à la sortie du cristal doubleur conditionnait la courbe en énergie THz obtenue. Celle-ci ne se réduit pas à une simple loi d'échelle en λ_0^α , mais présente des points d'inflexion (maxima et minima) qui dépendent de l'angle de phase réalisé en zone plasma, conditionné par le déphasage induit par le cristal doubleur à une longueur d'onde fondamentale λ_0 .

Cette thèse a porté sur la génération de rayonnement térahertz (THz) produit par interaction entre des impulsions laser femtosecondes à deux couleurs et un plasma d'air. L'étude des ondes THz est motivée par le fait que les molécules complexes émettent préférentiellement dans cette gamme de fréquences, caractéristiques des mouvements "lents" induits par les groupements chimiques fonctionnels au sein de macro-molécules. Chaque molécule possède un paysage unique de signatures spectrales dans ce domaine, ce qui est très utile non seulement en spectroscopie moléculaire, mais aussi pour l'imagerie médicale, la détection de matériaux suspects en sécurité ou pour l'héritage culturel. Cependant, disposer de champs THz utilisables pour ces applications nécessite que ceux-ci soient suffisamment intenses pour ne pas être complètement absorbés par les molécules d'eau présentes dans l'air. Ils doivent aussi présenter une bande suffisamment large afin d'avoir la plus large caractérisation possible des molécules analysées. Toutefois, la gamme THz étant à la frontière entre les domaines électronique et photonique, peu de technologies permettent de générer de tels rayonnements. Les dispositifs électroniques peinent à excéder la gamme du THz. Les sources relevant du domaine de la photonique conduisent, en revanche, à des champs rayonnés plus intenses et à plus large bande. Les sources laser-plasma ont en outre l'avantage de ne pas être sujettes à un seuil de dommages et délivrent des spectres très large-bande, au delà de 100 THz, avec des rendements plutôt élevés, proches de 10^{-4} .

La production de rayonnement THz par interaction laser-plasma permet donc de répondre aux deux problématiques d'émission de champs THz intenses et à large bande. Le système générant ainsi de telles ondes THz est composé dans sa configuration la plus simple d'une impulsion laser femtoseconde se propageant à travers un cristal doubleur produisant un second harmonique qui, couplé au fondamental, va créer un plasma à un foyer nonlinéaire dans l'air. Ce plasma, via le mécanisme des photocourants, va émettre du rayonnement secondaire THz par conversion nonlinéaire de fréquences. Ce mécanisme

a été étudié tout au long de ce manuscrit, avec différentes configurations initiales de champ laser et l'influence de divers paramètres, notamment la longueur d'onde laser et des configurations de multi-impulsions contenant une dérive de fréquence.

Cette thèse a été effectuée au Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives dans le cadre du projet ANR/ASTRID ALTESSE ("Air-Laser based TERAhertz SpectroScopy of Explosives"). Si l'objectif de ce projet était d'étudier expérimentalement la spectroscopie THz d'explosifs à distance par interaction laser-plasma, ce mémoire s'est plutôt concentré sur les études théoriques et numériques des sources émettrices. Plus particulièrement, mon travail de thèse avait pour objectifs d'optimiser numériquement les spectres THz à partir de paramètres laser caractérisant des impulsions ultra-brèves et multi-couleurs, de dimensionner l'étape de propagation laser, que ce soit en régime focalisé ou en régime de filamentation, d'optimiser la création de plasma et la génération de rayonnement THz pour le projet, et enfin de proposer de nouveaux scénarios ouvrant de nouvelles perspectives dans l'ingénierie THz par lasers intenses (impulsions multiples, utilisation de futurs laser à CO₂, etc).

Le premier chapitre de cette thèse s'est donc attaché à en introduire le contexte et à présenter dès le départ les résultats principaux de spectroscopie obtenus durant le projet ALTESSE. Les mesures expérimentales de ce projet constituent les premiers résultats originaux de cette thèse. Ainsi, des spectres large bande d'explosifs et de produits simulants ont pu être obtenus jusqu'à 60 THz, cette étendue spectrale exploitée en spectroscopie THz dans le domaine temporel étant une première à notre connaissance. Des spectres d'explosifs ont aussi pu être acquis à grande distance à l'aide du laser de puissance TRIDENT, c'est-à-dire après une propagation du faisceau pompe sur 12 m, avant la partie génération et détection des champs THz. Et ce, en dépit des fortes instabilités subies par le laser dues à l'environnement bruité, donc réaliste, dans lequel il était placé. Ces spectres à grande distance ont été validés par comparaison avec des mesures de spectroscopie THz réalisées sur des distances plus courtes et dans des conditions contrôlées de laboratoire. Des tests de filamentation laser sur plusieurs mètres à une et deux couleurs ont aussi été réalisés, et des champs THz ont été détectés, même s'ils n'ont pas été traités et utilisés. Ces résultats sont un premier pas pour la spectroscopie THz d'explosifs à grande distance. Ils démontrent la fiabilité de la méthode de détection ABCD et la faisabilité d'un détecteur opérationnel dans des conditions réelles d'utilisation.

Le second chapitre a abordé les principes physiques intervenant dans la génération de rayonnement THz par interaction laser-plasma. Le champ laser se propageant dans l'air est ainsi régi par les équations de Maxwell, dans lesquelles interviennent des termes nonlinéaires dus, d'une part, à l'effet Kerr (instantané et retardé), correspondant à la réponse des électrons liés des atomes de l'air lors du passage du champ laser, et, d'autre

part, à l'ionisation, à l'origine d'un courant transverse des électrons libérés par le champ laser et produisant le plasma d'air. Ces deux mécanismes nonlinéaires convertissent une onde laser en ondes THz, mais ni dans les mêmes conditions, ni dans la même mesure. En effet, à basse intensité laser ($< 10^{13}$ W/cm²), en-dessous du seuil d'ionisation, seul l'effet Kerr intervient dans la production de rayonnement THz par mélange à quatre ondes, avec des rendements relativement faibles ($\sim 10^{-7}$). Lorsque le seuil d'ionisation est dépassé ($> 10^{13}$ W/cm²), le mécanisme des photocourants domine. Des rendements de conversion augmentent alors d'environ trois décades ($\sim 10^{-4}$). Le courant créé par le mouvement transverse des électrons libérés par ionisation comporte ainsi une composante basse-fréquence dans le domaine THz favorisé par l'asymétrie temporelle du champ laser. Cette asymétrie est présente pour des impulsions courtes et elle est naturellement renforcée par la présence de deux couleurs, d'autant plus si leur phase relative est bien ajustée, c'est-à-dire proche de la valeur $\pi/2$. Les photocourants peuvent notamment être approchés grâce à un modèle appelé "local current" (LC) basé sur l'hypothèse que, pour un petit volume de plasma, les champs THz émis sont proportionnels à la composante THz du courant électronique dans le plasma. Ce modèle local, qui ne fournit pas d'évaluation quantitative de l'énergie THz, permet néanmoins de comparer les performances possibles des configurations laser entre elles et reproduit les spectres et champs rayonnés pour de faibles distances de propagation où le champ laser n'est pas fortement modifié par les effets nonlinéaires.

Par ailleurs, pour des puissances laser crêtes supérieures à une valeur seuil, l'effet Kerr provoque l'auto-focalisation du faisceau laser à distance finie, saturée par la défocalisation plasma. Ainsi, en combinant plusieurs séquences d'auto-focalisation Kerr et de défocalisation plasma, un filament de lumière peut être créé et maintenu sur de longues distances de propagation. Les filaments pouvant créer un canal plasma sur plusieurs mètres, ils sont donc intéressants pour produire du rayonnement THz à distance.

La dernière partie du chapitre 2 a permis d'introduire les équations du modèle utilisé tout au long de ce manuscrit, le modèle UPPE ("Unidirectional Pulse Propagation Equation"). Ce modèle résout uniquement la composante du champ électrique laser et de ses rayonnements secondaires se propageant vers l'avant, pour des angles de propagation relativement proches de l'axe optique. Le modèle UPPE, résolu numériquement avec une méthode "split-step Fourier", est beaucoup moins coûteux en temps de calcul que la résolution directe des équations de Maxwell complètes. Il permet donc de simuler des distances de propagation de plusieurs mètres correspondant aux échelles expérimentales, pour des nombres d'heures de calcul raisonnables. Rappelons que le modèle UPPE a été validé de nombreuses fois par comparaison avec des expériences.

Le troisième chapitre nous a permis d'examiner l'influence d'une dérive en fréquence

(“chirp”) et de la combinaison d’impulsions laser sur les champs THz produits. L’objectif était alors de moduler les spectres THz créés par des impulsions laser à deux couleurs composées de plusieurs sous-impulsions, en jouant sur les valeurs du coefficient de chirp et le retard entre les sous-impulsions. En faisant varier ces deux paramètres, trois configurations ont été choisies, optimisées préalablement grâce au modèle LC dans le cas de deux sous-impulsions. La configuration émettant localement le plus de rayonnement THz correspond au cas de deux sous-impulsions superposées et non chirpées ayant la durée à mi-hauteur la plus petite (et la puissance crête la plus élevée). En revanche, si un chirp est appliqué aux sous-impulsions, la configuration maximisant le rendement THz est celle où les sous-impulsions sont retardées, ce retard étant un nombre entier de cycles optiques (environ une demi-durée d’impulsion si le coefficient de chirp appliqué est de 4, soit un élargissement en durée à mi-hauteur de 40 à 165 fs). Ces configurations de multi-impulsions chirpées (ou non) ont ensuite été simulées avec le modèle UPPE en trois dimensions, en géométrie focalisée et en régime de filamentation. Les résultats obtenus en géométrie focalisée coïncident avec ceux obtenus avec le modèle LC. Cependant, en régime de filamentation, les cas où un chirp est appliqué permettent de générer plus de rayonnement THz en raison du meilleur couplage sur de grandes distances (de l’ordre du mètre) entre les deux couleurs dont les durées d’impulsions sont plus longues. Encore une fois, le cas où les deux sous-impulsions sont séparées est plus favorable à la génération de rayonnement THz par rapport au cas où elles sont superposées, en raison d’un meilleur couplage entre les deux couleurs et d’un spectre initial plus performant. Enfin, diverses configurations de chirp/retard d’impulsions ont aussi été étudiées en régime de filamentation. Nous avons comparé l’influence d’un chirp positif avec celle d’un chirp négatif sur le rendement THz. Un chirp positif devrait permettre d’obtenir des champs THz plus élevés, en raison d’une phase relative entre les deux couleurs plus proche de la valeur optimale $\pi/2$ à la distance de production maximale de rayonnement THz dans le plasma. Cette propriété a récemment été rapportée expérimentalement [54]. L’influence de la combinaison de plusieurs sous-impulsions complètement séparées a en outre été examinée, révélant que les spectres THz peuvent être piqués à différentes fréquences jusqu’à 200 THz. Cette étude montre donc que grâce à deux paramètres, la dérive de fréquence (chirp) et le retard d’impulsions qui peuvent être facilement implémentés expérimentalement, les spectres et champs THz peuvent être modulés, ce qui peut être très utile pour des applications en spectroscopie.

Enfin, le quatrième chapitre a été dédié aux conséquences de l’augmentation de la longueur d’onde laser fondamentale dans la génération de rayonnement THz. Des études numériques et expérimentales antérieures ayant montré une forte croissance de l’énergie THz émise lorsque la longueur d’onde laser est augmentée, il était d’autant plus intéres-

sant de comprendre cette propriété que des longueurs d’ondes laser s’éloignant du proche infrarouge correspondent à une gamme attendue être plus “sécure” pour l’œil. La première partie de ce chapitre est une étude concentrée sur les longueurs d’ondes laser en deçà de $2 \mu\text{m}$. Des calculs analytiques montrent que l’évolution du rendement THz ne plaide pas en faveur d’une loi d’échelle universelle en λ^α traduisant l’accroissement de l’énergie THz : un tel “scaling” est en effet en λ^2 ou en λ^4 , en fonction de la phase relative entre les deux couleurs. Si celles-ci sont séparées d’une phase de $\pi/2$, ce qui permet une génération maximale d’énergie THz, alors l’énergie THz devrait croître en λ^2 . Ces évaluations sont valables en géométrie focalisée. En régime de filamentation, cependant, de telles évolutions dépendent de la puissance initiale du faisceau. Si celle-ci n’est pas largement supérieure à la puissance critique d’autofocalisation, alors l’impulsion faiblement autofocalisée conduira à une ionisation peu importante et donc à une génération de rayonnement THz faible. Si l’énergie du faisceau est maintenue constante, alors l’augmentation de la longueur d’onde laser conduit à une diminution du rapport de sa puissance initiale sur la puissance critique, qui peut s’approcher de 1 et donc mener à une faible production de plasma, donc de champ THz. Dans la seconde étude de ce chapitre, le rapport entre puissance initiale et puissance critique a donc été gardé constant lors de l’augmentation de la longueur d’onde laser, ce qui implique d’accroître l’énergie initiale laser en proportion. Dans cette partie, nous avons étudié des longueurs d’ondes typiques de lasers en cours d’amélioration, en termes d’énergie et de durée : les lasers OPCPA opérant à $3.9 \mu\text{m}$, qui peuvent actuellement délivrer des impulsions de quelques dizaines de mJ et de durée < 100 fs, et les lasers à CO_2 à $10.6 \mu\text{m}$, permettant d’atteindre la centaine de mJ pour une durée de quelques picosecondes. Nous avons montré qu’à rapport de puissance initiale sur puissance critique constant, l’augmentation de l’énergie THz avec la longueur d’onde laser en régime de filamentation peut atteindre un facteur λ^4 grâce à des filaments plus longs et plus larges transversalement que pour une longueur d’onde laser opérant dans le proche infrarouge. Le régime de filamentation a donc un intérêt important dans la création de champs THz forts à grande longueur d’onde laser, ceux-ci pouvant contenir une énergie de plusieurs mJ pour une énergie incidente de 100 mJ transportée par des impulsions de 100 fs à $10.6 \mu\text{m}$. Ces comportements ont récemment été validés par des lasers opérant à $3.9 \mu\text{m}$ dans le moyen infrarouge ($\simeq 1\%$ de conversion, 0.05 mJ d’énergie THz à intensité laser modérée). Ils restent à être prouvés pour des lasers à CO_2 ultrabrefs, ces lasers opérant avec de tels paramètres n’étant attendus que dans les prochaines années.

La dernière section du quatrième chapitre a concerné l’explication des résultats obtenus expérimentalement durant le projet ALTESSE lorsque la longueur d’onde laser est variée de 1.2 à $2.6 \mu\text{m}$ à partir de systèmes OPA. Nous nous sommes plus précisément concentrés sur leur déviation aux lois d’échelle précédentes. Les différentes campagnes

réalisées au CELIA et à DTU ont en effet mis en évidence des gains en λ^{5-14} , non prévus par des simulations préliminaires qui attendent une évolution au maximum en λ^4 si tous les autres paramètres sont conservés constants. Les paramètres laser tels que la durée de l'impulsion, la taille transverse du faisceau et l'inclinaison du cristal doubleur ne sont pas généralement constants sur les systèmes OPA lorsque l'on augmente la longueur d'onde du fondamental. Nous avons donc réalisé des simulations prenant en compte les variations de ces paramètres, notamment grâce à un modèle 1D de génération de second harmonique. Le paramètre crucial dans la génération de rayonnement THz est la phase relative entre les deux couleurs. Or celle-ci n'est pas constante expérimentalement pour toutes les longueurs d'onde examinées car elle varie avec l'intensité incidente du fondamental, la disposition des angles du cristal BBO et la position de ce dernier par rapport au plasma. Nous avons ainsi dû justifier et simuler les valeurs de cette phase relative afin de reproduire et d'expliquer les croissances de l'énergie THz avec la longueur d'onde laser. Cette étude montre l'importance du contrôle précis des paramètres laser, en particulier la différence de phase à la sortie du cristal BBO, pour une génération optimale de rayonnement THz. Elle résout une problématique vieille de cinq ans et d'une importance cruciale. Augmenter la longueur d'onde laser est donc une voie prometteuse pour faire croître le rendement THz, mais cela doit se faire en compromis avec les longueurs d'onde et les énergies laser actuellement disponibles. Pour une installation laser donnée, il devrait ainsi y avoir des longueurs d'onde fondamentales optimales conciliant ces deux points. C'est ce que prouvent nos courbes de croissance THz qui ne se réduisent pas à une simple loi en λ^α , mais mettent aussi en avant des points de fonctionnement nominaux à certaines longueurs d'onde.

Pour conclure, les résultats de cette thèse nous ont permis de comprendre l'influence de nombreux paramètres dans la génération de rayonnement THz par interaction laser-plasma pour réaliser une spectroscopie moléculaire à distance. Celle-ci pourrait donc tirer parti de l'augmentation de la longueur d'onde laser afin d'avoir des champs secondaires plus intenses mais aussi des filaments plus longs, et de la modulation d'impulsions laser amplifiant certaines fréquences THz selon les produits à analyser. Par ailleurs, l'avènement de lasers à CO₂ à plus courte durée d'impulsion et plus haute énergie permettrait d'obtenir des rendements de conversion de plusieurs pourcents et des énergies rayonnées de plusieurs mJ. Nul ne sait à ce jour ce qu'un tel rayonnement peut engendrer sur l'homme et son environnement, et donc les contraintes de sécurité qui pourraient s'imposer lors de sa production et de son utilisation. Enfin, il nous reste à entrevoir une suite pour le projet ALTESSE. Logiquement, celle-ci devrait chercher à contrôler le rayonnement THz issu d'un filament multi-couleurs de quelques dizaines de centimètres de long formé dans l'air au voisinage d'un matériau à analyser. Des études futures devraient chercher à calibrer

les spectres THz émis par de tels filaments pour rendre possible une spectroscopie directe, générique et robuste, sur de longues distances.

Bibliographie

- [1] *CASTEP*, <http://www.castep.org/>
- [2] *Ligne AILES du synchrotron SOLEIL*, <https://www.synchrotron-soleil.fr/fr/lignes-de-lumiere/ailes>
- [3] *Wikipédia*, https://fr.wikipedia.org/wiki/Scanner_corporel_à_ondes_millimétriques
- [4] “IEEE standard for safety levels with respect to human exposure to radio frequency electromagnetic fields, 3 kHz to 300 GHz”, *IEEE Std C95.1-2005 (Revision of IEEE Std C95.1-1991)* 1–238 (2006)
- [5] *Hitran on the Web* (2017), <http://hitran.iao.ru/>
- [6] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, San Diego, 2001), third edition
- [7] American National Standards Institute, “Safe use of lasers”, *Laser Institute of America Z136* (2014)
- [8] M. V. Ammosov, N. B. Delone and V. P. Kraїnov, “Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field”, *Sov. Phys. JETP* **64**, 1191 (1986)
- [9] D. Anderson and M. Lisak, “Nonlinear asymmetric self-phase modulation and self-steepening of pulses in long optical waveguides”, *Phys. Rev. A* **27**, 1393 (1983)
- [10] J. Andreasen and M. Kolesik, “Nonlinear propagation of light in structured media : Generalized unidirectional pulse propagation equations”, *Phys. Rev. E* **86**, 036706 (2012)
- [11] V. A. Andreeva, M. Esaulkov, N. Panov, P. Solyakin, V. Makarov, D. Shipilo, A. Shkurinov, O. Kosareva and S. L. Chin, “Conferences on lasers and electro-optics”, (OSA 2016), p. JW2A.47

- [12] V. A. Andreeva *et al.*, “Ultrabroad terahertz spectrum generation from an air-based filament plasma”, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 063902 (2016)
- [13] I. Babushkin, W. Kuehn, C. Koehler, S. Skupin, L. Bergé, K. Reimann, M. Woerner, J. Herrmann and T. Elsaesser, “Ultrafast spatiotemporal dynamics of terahertz generation by ionizing two-color femtosecond pulses in gases”, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 053903 (2010)
- [14] I. Babushkin, S. Skupin, A. Husakou, C. Köhler, E. Cabrera-Granado, L. Bergé and J. Herrmann, “Tailoring terahertz radiation by controlling tunnel photoionization events in gases”, *New J. Phys.* **13**, 123029 (2011)
- [15] L. Bergé, “Self-compression of 2 μm laser filaments”, *Opt. Express* **16**, 21529 (2008)
- [16] L. Bergé, J. Rolle and C. Köhler, “Enhanced self-compression of mid-infrared laser filaments in argon”, *Phys. Rev. A* **88**, 023816 (2013)
- [17] L. Bergé, S. Skupin, C. Köhler, I. Babushkin and J. Herrmann, “3D numerical simulations of THz generation by two-color laser filaments”, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 073901 (2013)
- [18] L. Bergé, S. Skupin, R. Nuter, J. Kasparian and J. P. Wolf, “Optical ultrashort filaments in weakly-ionized, optically-transparent media”, *Rep. Prog. Phys.* **70**, 1633 (2007)
- [19] L. Bergé, S. Skupin and G. Steinmeyer, “Self-recompression of laser filaments exiting a gas cell”, *Phys. Rev. A* **79**, 033838 (2009)
- [20] R. W. Boyd, editor, *Nonlinear Optics* (Academic Press, San Diego, 1992)
- [21] T. Brabec and F. Krausz, “Nonlinear optical pulse propagation in the single-cycle regime”, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3282 (1997)
- [22] F. Brunel, “Harmonic generation due to plasma effects in a gas undergoing multi-photon ionization in the high-intensity limit”, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 521 (1990)
- [23] N. M. Burford and M. O. El-Shenawee, “Review of terahertz photoconductive antenna technology”, *Optical Engineering* **56**, 010901 (2017)
- [24] S. Butterworth, “On the theory of filter amplifiers”, *Experimental Wireless and the Wireless Engineer* **7**, 536 (1930)
- [25] S. Champeaux and L. Bergé, “Postionization regimes of femtosecond laser pulses self-channeling in air”, *Phys. Rev. E* **71**, 046604 (2005)
- [26] S. Champeaux, L. Bergé, D. Gordon, A. Ting, J. Peñano and P. Sprangle, “(3+1)-dimensional numerical simulations of femtosecond laser filaments in air : Toward a quantitative agreement with experiments”, *Phys. Rev. E* **77**, 036406 (2008)

-
- [27] W. L. Chan, J. Deibel and D. M. Mittleman, “Imaging with terahertz radiation”, *Reports on Progress in Physics* **70**, 1325 (2007)
- [28] P. A. Cherenkov, “Visible emission of clean liquids by action of γ radiation”, *Doklady Akademii Nauk SSSR* **2**, 451+ (1934)
- [29] I. P. Christov, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, C.-P. Huang and J. Zhou, “Space-time focusing of femtosecond pulses in a Ti:sapphire laser”, *Opt. Lett.* **20**, 309 (1995)
- [30] M. Clerici, “Private communication”, *Private Communication* (2018)
- [31] M. Clerici *et al.*, “Wavelength scaling of terahertz generation by gas ionization”, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 253901 (2013)
- [32] J. Dai, X. Xie and X.-C. Zhang, “Detection of broadband terahertz waves with a laser-induced plasma in gases”, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 103903 (2006)
- [33] J.-F. Daigle *et al.*, “Remote THz generation from two-color filamentation : long distance dependence”, *Opt. Express* **20**, 6825 (2012)
- [34] J. Déchard, A. Nguyen, P. G. de Alaiza Martínez, I. Thiele, S. Skupin and L. Bergé, “Validity of the unidirectional propagation model : application to laser-driven terahertz emission”, *Journal of Physics Communications* **1**, 055009 (2017)
- [35] D. Eimerl, L. Davis, S. Velsko, E. K. Graham and A. Zalkin, “Optical, mechanical, and thermal properties of barium borate”, *J. Appl. Phys.* **62**, 1968 (1987)
- [36] W. Ettoumi, Y. Petit, J. Kasparian and J. P. Wolf, “Generalized miller formulae”, *Opt. Express* **18**, 6613 (2010)
- [37] Y. E. Geints and A. A. Zemlyanov, “Dynamics of CO₂ laser pulse filamentation in air influenced by spectrally selective molecular absorption”, *Appl. Opt.* **53**, 5641 (2014)
- [38] Y. E. Geints and A. A. Zemlyanov, “Near- and mid-IR ultrashort laser pulse filamentation in a molecular atmosphere : a comparative analysis”, *Appl. Opt.* 1397 (2017)
- [39] P. González de Alaiza Martínez, I. Babushkin, L. Bergé, S. Skupin, E. Cabrera-Granado, C. Köhler, U. Morgner, A. Husakou and J. Herrmann, “Boosting Terahertz Generation in Laser-Field Ionized Gases Using a Sawtooth Wave Shape”, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 183901 (2015)
- [40] P. González de Alaiza Martínez and L. Bergé, “Influence of multiple ionization in laser filamentation”, *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **47**, 204017 (2014)
- [41] P. González de Alaiza Martínez, X. Davoine, A. Debayle, L. Gremillet and L. Bergé, “Terahertz radiation driven by two-color laser pulses at near-relativistic intensities :
-

- Competition between photoionization and wakefield effects”, *Scientific Reports* **6**, 26743 (2016)
- [42] H. A. Hafez, X. Chai, A. Ibrahim, S. Mondal, D. Férachou, X. Ropagnol and T. Ozaki, “Intense terahertz radiation and their applications”, *Journal of Optics* **18**, 093004 (2016)
- [43] K. Ishigaki, M. Shiraishi, S. Suzuki, M. Asada, N. Nishiyama and S. Arai, “Direct intensity modulation and wireless data transmission characteristics of terahertz-oscillating resonant tunnelling diodes”, *Electronics Letters* **48**, 582 (2012)
- [44] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics* (Wiley, New York, 1975)
- [45] O. D. Jefimenko, *Electricity and Magnetism : An Introduction to the Theory of Electric and Magnetic Fields* (Appleton-Century-Crofts, New York, 1966)
- [46] N. Karpowicz *et al.*, “Coherent heterodyne time-domain spectrometry covering the entire "terahertz gap"”, *Applied Physics Letters* **92**, 011131 (2008)
- [47] N. Karpowicz, H. Zhong, C. Zhang, K.-I. Lin, J.-S. Hwang, J. Xu and X.-C. Zhang, “Compact continuous-wave subterahertz system for inspection applications”, *Applied Physics Letters* **86**, 054105 (2005)
- [48] D. Kartashov, S. Ališauskas, A. Pugžlys, A. Voronin, A. Zheltikov, M. Petrarca, P. Béjot, J. Kasparian, J.-P. Wolf and A. Baltuška, “White light generation over three octaves by femtosecond filament at 3.9 μm in argon”, *Opt. Lett.* **16**, 3456 (2012)
- [49] L. V. Keldysh, “Ionization in the field of a strong electromagnetic wave”, *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965)
- [50] P. K. Kennedy, “A first-order model for computation of laser-induced breakdown thresholds in ocular and aqueous media : Part I - Theory”, *IEEE J. Quant. Electron.* **31**, 2241 (1995)
- [51] K. Y. Kim, A. J. Taylor, J. H. Glowina and G. Rodriguez, “Coherent control of terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser-gas interactions”, *Nature Photon.* **2**, 605 (2008)
- [52] M. Kolesik and J. V. Moloney, “Nonlinear optical pulse propagation simulation : From Maxwell’s to unidirectional equations”, *Phys. Rev. E* **70**, 036604 (2004)
- [53] M. Kolesik, J. V. Moloney and M. Mlejnek, “Unidirectional optical pulse propagation equation”, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 283902 (2002)
- [54] O. G. Kosareva, N. A. Panov, V. A. Andreeva, D. E. Shipilo, Y. Chen, S. L. Chin, I. Babushkin, U. Morgner and A. B. Savel’ev, “Effect of initial pulse chirp

-
- on THz generation from two-color femtosecond filaments”, in “Laser Physics Workshop (LPHYS 2017)”, (2017)
- [55] O. G. Kosareva *et al.*, “Analysis of dual frequency interaction in the filament with the purpose of efficiency control of THz pulse generation”, *J. Infrared Milli. Terahz. Waves* **32**, 1157 (2011)
- [56] A. D. Koulouklidis, C. Gollner, V. Shumakova, V. Y. Fedorov, A. Pugžlys, A. Baltuška and S. Tzortzakis, “Observation of strong THz fields from mid-infrared two-color laser filaments”, in “Conference on Lasers and Electro-Optics”, FF1E.2 (Optical Society of America, 2018)
- [57] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Quantum Mechanics* (Pergamon, New-York, 1965)
- [58] M. Li, W. Li, Y. Shi, P. Lu, H. Pan and H. Zeng, “Verification of the physical mechanism of THz generation by dual-color ultrashort laser pulses”, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 161104 (2012)
- [59] J. Liu, J. Dai, S. L. Chin and X.-C. Zhang, “Broadband terahertz wave remote sensing using coherent manipulation of fluorescence from asymmetrically ionized gases”, *Nature Photon.* **4**, 627 (2010)
- [60] A. Lofthus and P. H. Krupenie, “The spectrum of molecular nitrogen”, *Journal of Physical and Chemical Reference Data* **6**, 113 (1977)
- [61] V. Lorient, E. Hertz, O. Faucher and B. Lavorel, “Measurement of high order Kerr refractive index of major air components”, *Opt. Express* **17**, 13429 (2009)
- [62] N. S. Makarov, M. Drobizhev and A. Rebane, “Two-photon absorption standards in the 550-1600 nm excitation wavelength range”, *Opt. Express* **16**, 4029 (2008)
- [63] J. H. Marburger, “Self-focusing : Theory”, *Prog. Quantum Electron.* **4**, 35 (1975)
- [64] R. J. Mathar, “Refractive index of humid air in the infrared : model fits”, *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics* **9**, 470 (2007)
- [65] M. Mlejnek, E. M. Wright and J. V. Moloney, “Femtosecond pulse propagation in argon - A pressure dependence study”, *Phys. Rev. E* **58**, 4903 (1998)
- [66] E. A. Nanni, W. R. Huang, K.-H. Hong, K. Ravi, A. Fallahi, G. Moriena, R. J. Dwayne Miller and F. X. Kärtner, “Terahertz-driven linear electron acceleration”, *Nature Communications* **6** (2015)
- [67] A. Nguyen, P. González de Alaiza Martínez, J. Déchard, I. Thiele, I. Babushkin, S. Skupin and L. Bergé, “Spectral dynamics of THz pulses generated by two-color laser filaments in air : the role of Kerr nonlinearities and pump wavelength”, *Opt. Express* **25**, 4720 (2017)
-

- [68] D. R. Nicholson, editor, *Introduction to Plasma Theory* (John Wiley & Sons, New York, 1983)
- [69] B. Nodland and C. J. McKinstrie, “Propagation of a short laser pulse in a plasma”, *Phys. Rev. E* **56**, 7174 (1997)
- [70] R. Nuter and L. Bergé, “Pulse chirping and ionization of O₂ molecules for the filamentation of femtosecond laser pulses in air”, *J. Opt. Soc. Am. B* **23**, 874 (2006)
- [71] R. Nuter, L. Gremillet, E. Lefebvre, A. Lévy, T. Ceccotti and P. Martin, “Field ionization model implemented in particle in cell code and applied to laser-accelerated carbon ions”, *Phys. Plasmas* **18**, 033107 (2011)
- [72] N. A. Panov, D. E. Shipilo, V. A. Andreeva, O. G. Kosareva, A. M. Saletsky, H. Xu and P. Polynkin, “Supercontinuum of a 3.9 – μm filament in air : Formation of a two-octave plateau and nonlinearly enhanced linear absorption”, *Phys. Rev. A* **94**, 041801 (2016)
- [73] G. Pastorelli, T. Trafela, P. F. Taday, A. Portieri, D. Lowe, K. Fukunaga and M. Strlič, “Characterisation of historic plastics using terahertz time-domain spectroscopy and pulsed imaging”, *Analytical and Bioanalytical Chemistry* **403**, 1405 (2012)
- [74] E. R. Peck and K. Reeder, “Dispersion of air”, *J. Opt. Soc. Am. A* **62**, 958 (1972)
- [75] J. R. Peñano, P. Sprangle, P. Serafim, B. Hafizi and A. Ting, “Stimulated Raman scattering of intense laser pulses in air”, *Phys. Rev. E* **68**, 056502 (2003)
- [76] A. M. Perelomov, V. S. Popov and M. V. Terent’ev, “Ionization of atoms in an alternating electric field”, *Sov. Phys. JETP* **23**, 924 (1966)
- [77] J. J. Pigeon, S. Y. Tochitsky, E. C. Welch and C. Joshi, “Measurements of the nonlinear refractive index of air, N₂, and O₂ at 10 μm using four-wave mixing”, *Opt. Lett.* **41**, 3924 (2016)
- [78] T. A. Pitts, T. S. Luk, J. K. Gruetzner, T. R. Nelson, A. McPherson, S. M. Cameron and A. C. Bernstein, “Propagation of self-focusing laser pulses in atmosphere : experiment versus numerical simulation”, *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 2008 (2004)
- [79] I. V. Pogorelsky, M. Babzien, I. Ben-Zvi, J. Skaritka and M. N. Polyansky, “BESTIA - the next generation ultra-fast CO₂ laser for advanced accelerator research”, *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A* **829**, 432 (2016)
- [80] S. C. Rae and K. Burnett, “Detailed simulations of plasma-induced spectral blue-shifting”, *Phys. Rev. A* **46**, 1084 (1992)
- [81] K. Ravi, D. N. Schimpf and F. X. Kärtner, “Pulse sequences for efficient multi-cycle terahertz generation in periodically poled lithium niobate”, *Opt. Express* **24**, 25582 (2016)

-
- [82] E. W. Rosenthal, J. P. Palastro, N. Jhajj, S. Zahedpour, J. K. Wahlstrand and H. M. Milchberg, “Sensitivity of propagation and energy deposition in femtosecond filamentation to the nonlinear refractive index”, *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **48**, 094011 (2015)
- [83] L. S. Rothman *et al.*, “The HITRAN2012 molecular spectroscopic database”, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **130**, 4 (2013), HITRAN2012 special issue
- [84] K. L. Ryan, J. A. D’Andrea, J. R. Jauchem and P. A. Mason, “Radio frequency radiation of millimeter wave length : Potential occupational safety issues relating to surface heating”, *Health Physics* **78**, 170 (2000)
- [85] K. Schuh, J. Hader, J. V. Moloney and S. W. Koch, “Influence of many-body interactions during the ionization of gases by short intense optical pulses”, *Phys. Rev. E* **89**, 033103 (2014)
- [86] K. Schuh, M. Kolesik, E. M. Wright, J. V. Moloney and S. W. Koch, “Self-channeling of high-power long-wave infrared pulses in atomic gases”, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 063901 (2017)
- [87] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics* (John Wiley & Sons, New-York, 1984)
- [88] P. Sprangle, E. Esarey and J. Krall, “Self-guiding and stability of intense optical beams in gases undergoing ionization”, *Phys. Rev. E* **54**, 4211 (1996)
- [89] P. Sprangle, J. R. Peñano and B. Hafizi, “Propagation of intense short laser pulses in the atmosphere”, *Phys. Rev. E* **66**, 046418 (2002)
- [90] D. Strickland and G. Mourou, “Compression of amplified chirped optical pulses”, *Optics Communications* **56**, 219 (1985)
- [91] A. Talebpour, J. Yang and S. L. Chin, “Semi-empirical model for the rate of tunnel ionization of N₂ and O₂ molecule in an intense Ti:sapphire laser pulse”, *Opt. Commun.* **163**, 29 (1999)
- [92] G. Tamosauškas, G. Beresnevičius, D. Gadonas and A. Dubietis, “Transmittance and phase matching of BBO crystal in the 3–5 μm range and its application for the characterization of mid-infrared laser pulses”, *Opt. Materials Express* **6**, 1410 (2018)
- [93] I. Thiele, P. González de Alaiza Martínez, R. Nuter, A. Nguyen, L. Bergé and S. Skupin, “Broadband terahertz emission from two-color femtosecond-laser-induced microplasmas”, *Phys. Rev. A* **96**, 053814 (2017)
- [94] I. Thiele, R. Nuter, B. Bousquet, V. Tikhonchuk, S. Skupin, X. Davoine, L. Gremillet and L. Bergé, “Theory of terahertz emission from femtosecond-laser-induced microplasmas”, *Phys. Rev. E* **94**, 063202 (2016)
-

- [95] I. Thiele *et al.*, “Terahertz emission from laser-driven gas-plasmas : a plasmonic point of view”, *ArXiv e-prints* (2018)
- [96] L. V. Titova, A. K. Ayesheshim, A. Golubov, D. Fogen, R. Rodriguez-Juarez, F. A. Hegmann and O. Kovalchuk, “Intense THz pulses cause H2AX phosphorylation and activate DNA damage response in human skin tissue”, *Biomed. Opt. Express* **4**, 559 (2013)
- [97] S. Y. Tochitsky, J. J. Pigeon, D. J. Haberberger, C. Gong and C. Joshi, “Amplification of multi-gigawatt 3 ps pulses in an atmospheric CO₂ laser using ac stark effect”, *Opt. Express* **20**, 13762 (2012)
- [98] M. Tonouchi, “Cutting-edge terahertz technology”, *Nature Photon.* **1**, 97 (2007)
- [99] S. Tzortzakis, B. Lamouroux, A. Chiron, S. D. Moustazis, D. Anglos, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, “Femtosecond and picosecond ultraviolet laser filaments in air : experiments and simulations”, *Opt. Commun.* **197**, 131 (2001)
- [100] C. Vicario, B. Monoszalai and C. P. Hauri, “GV/m single-cycle terahertz fields from a laser-driven large-size partitioned organic crystal”, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 213901 (2014)
- [101] C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, O. V. Chefonov and C. P. Hauri, “Multi-octave spectrally tunable strong-field terahertz laser”, *arXiv* 1608.05319 (2016)
- [102] J. K. Wahlstrand, Y. H. Cheng and H. M. Milchberg, “Absolute measurement of the transient optical nonlinearity in N₂, O₂, N₂O, and Ar”, *Phys. Rev. A* **85**, 043820 (2012)
- [103] G. C. Walker, J. W. Bowen, W. Matthews, S. Roychowdhury, J. Labaune, G. Mourou, M. Menu, I. Hodder and J. B. Jackson, “Sub-surface terahertz imaging through uneven surfaces : visualizing neolithic wall paintings in Çatalhöyük”, *Opt. Express* **21**, 8126 (2013)
- [104] T. Wang, K. Iwaszczuk, E. A. Wrisberg, E. V. Denning and P. U. Jepsen, “Linearity of air-biased coherent detection for terahertz time-domain spectroscopy”, *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves* **37**, 592 (2016)
- [105] W. M. Wang, Z. M. Sheng, H. C. Wu, M. Chen, C. Li, J. Zhang and K. Mima, “Strong terahertz pulse generation by chirped laser pulses in tenuous gases”, *Opt. Express* **16**, 16999 (2008)
- [106] T.-J. Wang *et al.*, “Toward remote high energy terahertz generation”, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 111108 (2010)
- [107] T.-J. Wang *et al.*, “High energy terahertz emission from two-color laser-induced filamentation in air with pump pulse duration control”, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 131108 (2009)

-
- [108] B. S. Williams, “Terahertz quantum-cascade lasers”, *Nature Photon.* **1**, 517 (2007)
- [109] R. M. Woodward, V. P. Wallace, D. D. Arnone, E. H. Linfield and M. Pepper, “Terahertz pulsed imaging of skin cancer in the time and frequency domain”, *Journal of Biological Physics* **29**, 257 (2003)
- [110] X. Xie, J. Dai and X. C. Zhang, “Coherent control of THz wave generation in ambient air”, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 075005 (2006)
- [111] Y. Yao, A. J. Hoffman and C. F. Gmachl, “Mid-infrared quantum cascade lasers”, *Nature Photon.* **6**, 432 (2012)
- [112] S. Zahedpour, J. K. Wahlstrand and H. M. Milchberg, “Measurement of the nonlinear refractive index of air constituents at mid-infrared wavelengths”, *Opt. Lett.* **40**, 5794 (2015)
- [113] M. Zhadobov, N. Chahat, R. Sauleau, C. Le Quement and Y. Le Drian, “Millimeter-wave interactions with the human body : state of knowledge and recent advances”, *International Journal of Microwave and Wireless Technologies* **3**, 237 (2011)
- [114] D. Zhang *et al.*, “Segmented terahertz electron accelerator and manipulator (steam)”, *Nature Photon.* **12**, 336 (2018)
- [115] H. Zhao, L. Zhang, S. Huang, S. Zhang and C. Zhang, “Terahertz wave generation from noble gas plasmas induced by a wavelength-tunable femtosecond laser”, *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology* **8**, 299 (2018)

Annexes

A Calcul de la polarisation Raman

L'objectif de cette annexe est d'obtenir une formulation de la polarisation induite par la diffraction Raman stimulée rotationnelle caractérisant les molécules de l'air. Il s'agit d'un processus de transitions quantiques basé sur un modèle de molécule ayant 3 niveaux d'énergie W_1 , W_2 et W_3 . Les deux premiers sont des niveaux d'énergie rotationnels qui peuvent être excités via la diffusion Stokes ou anti-Stokes. Le troisième niveau est le niveau électronique situé loin des deux premiers niveaux ($W_3 \gg W_2 - W_1$) comme montré en figure 2.4. Les calculs présentés dans cette annexe sont basés sur les travaux de Peñano *et al* [75].

Les fréquences associées aux trois états sont notées Ω_n , $n = 1, 2, 3$, et les différences entre deux fréquences $\Omega_{nm} = \Omega_n - \Omega_m$. Le champ laser incident a une fréquence ω_0 qui ne permet pas d'exciter le niveau 3, et telle que $\Omega_{21} \ll \omega_0 \ll \Omega_{32}$.

Les éléments de matrice du moment dipolaire sont notés μ_{nm} . L'opérateur dipolaire étant pair, pour que les transitions μ_{13} et μ_{32} soient non nulles, on doit avoir $\mu_{12} = 0$, signifiant que la transition directe de 1 à 2 est interdite.

La fonction d'onde moléculaire $\psi(\mathbf{r}, t)$ vérifie l'équation de Schrödinger

$$(H_0 + V)\psi = i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t}, \quad (\text{A.1})$$

où $H_0 = -\hbar^2/2m\nabla^2$ est l'opérateur Hamiltonien statique non perturbé, $V(\mathbf{r}, t) = \mu \cdot \mathbf{E}$ est l'opérateur de perturbation avec $\mu = -e\mathbf{r}$ l'opérateur dipolaire électrique et \mathbf{E} le champ électrique.

On décompose $\psi(\mathbf{r}, t)$ selon les états propres $u_n(\mathbf{r})$ de H_0 , soit

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_n c_n(\mathbf{r}, t) e^{-i\Omega_n t} u_n(\mathbf{r}) \quad (\text{A.2})$$

où $H_0 u_n = W_n u_n$. En substituant l'expression (A.2) dans l'équation (A.1), on obtient une relation sur les coefficients c_n

$$\frac{\partial c_n}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} \sum_{m=1}^3 c_m \mu_{nm} e^{-i\Omega_{mn} t} E(\mathbf{r}, t) \quad (\text{A.3})$$

où $\mu_{mn} = \int u_m^*(\mathbf{r})(\mu \cdot \mathbf{e}_x) u_n(\mathbf{r}) d^3r$, \mathbf{e}_x est le vecteur unité définissant la direction de la polarisation du champ laser. La polarisation du champ s'écrit alors $\mathbf{P} = P \mathbf{e}_x$, avec

$$P(t) = N \int \psi^*(\mathbf{r}, t)(\mu \cdot \mathbf{e}_x) \psi(\mathbf{r}, t) d^3r = N \sum_{m,n=1}^3 \mu_{mn} \rho_{nm} e^{i\Omega_{mn} t} \quad (\text{A.4})$$

où N est la densité des molécules et $\rho_{nm} = c_m^* c_n$ sont les éléments de la matrice densité. Avec cette définition de ρ_{nm} et l'équation (A.3), on a

$$\frac{\partial \rho_{nm}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} \sum_{l=1}^3 [\mu_{nl} \rho_{lm} e^{-i\Omega_{nl}t} - \mu_{lm} \rho_{nl} e^{-i\Omega_{lm}t}] E(\mathbf{r}, t) \quad (\text{A.5})$$

avec $\rho_{nm} = \rho_{mn}^*$ et $\mu_{nm} = \mu_{mn}^*$. Par conservation, on a $\rho_{11} + \rho_{22} + \rho_{33} = 1$. Comme l'état 3 est supposé non peuplé par le laser, il résulte $\rho_{33} = 0$. Pour que les transitions Stokes et anti-Stokes soient possibles, le système doit posséder une symétrie d'inversion rendant les états d'énergie pairs ou impairs et l'opérateur dipolaire μ pair. D'où $\mu_{11} = \mu_{22} = \mu_{33} = 0$. Avec ces hypothèses, on trouve les expressions

$$\rho_{13} \simeq \frac{\mu \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\hbar \Omega_{31}} [\rho_{11} e^{-i\Omega_{31}t} + \rho_{12} e^{-i\Omega_{32}t}], \quad (\text{A.6})$$

$$\rho_{32} \simeq \frac{\mu \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\hbar \Omega_{31}} [\rho_{22} e^{-i\Omega_{32}t} + \rho_{12} e^{i\Omega_{31}t}]. \quad (\text{A.7})$$

La polarisation devient donc

$$P(t) = N\mu[\rho_{31} e^{-i\Omega_{31}t} + \rho_{32} e^{-i\Omega_{32}t}] + cc, \quad (\text{A.8})$$

où $\mu_{13} \simeq \mu_{23} = \mu$ est considéré réel. En posant $\chi^{(1)} = 2N\mu^2/(\hbar\Omega_{31})$, la polarisation Raman s'écrit $P_R = \chi^{(1)}(\rho_{12} e^{i\Omega_{12}t} + cc)E(\mathbf{r}, t)$ avec ρ_{12} qui vérifie

$$\frac{\partial \rho_{12}}{\partial t} = \frac{i\mu^2 E(\mathbf{r}, t)^2}{\hbar^2 \Omega_{31}} [\rho_{22} e^{-i\Omega_{12}t} - \rho_{11} e^{-2i\Omega_{31}t - i\Omega_{12}t} + \rho_{12} (e^{2i\Omega_{31}t} - e^{-2i\Omega_{32}t})]. \quad (\text{A.9})$$

En ne conservant que les fréquences de l'ordre de ω_0 ou moins, c'est-à-dire en négligeant les battements à Ω_{31}, Ω_{32} , et en introduisant les constantes rotationnelles et de déphasage dipolaire $\bar{\tau}_1 = 1/\Omega_{12}$ et $\bar{\tau}_2$ respectivement, on simplifie l'équation (A.9) en

$$\frac{\partial \rho_{12}}{\partial t} \simeq -\frac{\rho_{12}}{\bar{\tau}_2} - \frac{i\mu^2 E(\mathbf{r}, t)^2}{\hbar^2 \Omega_{31}} e^{-i\frac{t}{\bar{\tau}_1}}, \quad (\text{A.10})$$

où, comme $\rho_{33} = 0$, $\rho_{22} - \rho_{11}$ se réduit à $1 - 2\rho_{11} \simeq -1$ si l'on considère que l'état 2 reste peu peuplé par rapport à l'état 1. En résolvant l'équation différentielle simplifiée (A.10) par la méthode de variation de la constante, on trouve

$$\rho_{12} = -\frac{i\mu^2}{\hbar^2 \Omega_{31}} \int_{-\infty}^t E(\mathbf{r}, t')^2 e^{-i\frac{t'}{\bar{\tau}_1}} e^{\frac{t'-t}{\bar{\tau}_2}} dt'. \quad (\text{A.11})$$

La polarisation Raman s'écrit donc finalement

$$P_{\text{Raman}}(t) = \frac{2\chi^{(1)}\mu^2}{\hbar^2\Omega_{31}} E(\mathbf{r}, t) \int_{-\infty}^t E(\mathbf{r}, t')^2 \sin\left(\frac{t-t'}{\bar{\tau}_1}\right) e^{\frac{t'-t}{\bar{\tau}_2}} dt'. \quad (\text{A.12})$$

Une analyse de stabilité montre que le gain de l'effet Raman introduit par auto-modulation de phase s'écrit [89]

$$g = \frac{\chi^{(1)}\mu^2\bar{\tau}_2}{c\epsilon_0^2 n_0^2 \hbar^2 \Omega_{31}}. \quad (\text{A.13})$$

La polarisation Raman s'écrit alors avec la susceptibilité $\chi^{(3)}$:

$$P_{\text{Raman}}(t) = g \frac{3}{2\bar{\tau}_2} \epsilon_0 \chi^{(3)} E(\mathbf{r}, t) \int_{-\infty}^t E(\mathbf{r}, t')^2 \sin\left(\frac{t-t'}{\bar{\tau}_1}\right) e^{\frac{t'-t}{\bar{\tau}_2}} dt'. \quad (\text{A.14})$$

De plus,

$$\int_{-\infty}^t \sin\left(\frac{t-t'}{\bar{\tau}_1}\right) e^{\frac{t'-t}{\bar{\tau}_2}} dt' = \frac{\bar{\tau}_1 \bar{\tau}_2}{\bar{\tau}_1^2 + \bar{\tau}_2^2}. \quad (\text{A.15})$$

Si l'on considère que le gain maximum est normalisé sous la forme

$$g = x_K \frac{\bar{\tau}_1 \bar{\tau}_2}{\bar{\tau}_1^2 + \bar{\tau}_2^2}, \quad (\text{A.16})$$

la polarisation Raman devient donc, avec cette normalisation

$$P_{\text{Raman}}(t) = x_K \frac{3}{2} \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t) \int_0^{+\infty} \frac{\bar{\tau}_1^2 + \bar{\tau}_2^2}{\bar{\tau}_1 \bar{\tau}_2^2} e^{-\tau/\bar{\tau}_2} \sin\left(\frac{\tau}{\bar{\tau}_1}\right) E^2(t-\tau) d\tau. \quad (\text{A.17})$$

B Calcul des instants d'ionisation

Cette annexe a pour but de calculer les instants d'ionisation pour un champ laser E_L donné par l'équation (2.1), en négligeant l'influence des enveloppes. L'ionisation ayant lieu aux maxima du champ laser, les instants t_n vérifient

$$\frac{dE_L}{dt}(t_n) = 0. \quad (\text{B.1})$$

Si le champ laser est à une couleur uniquement, les instants d'ionisation sont donné pour un entier relatif n par

$$t_n = \frac{n\pi}{\omega_0}. \quad (\text{B.2})$$

Si le champ laser comporte deux couleurs, avec un rapport en énergie de second harmonique $r \ll 1$ et une phase relative $\phi = \phi_2$ ($\phi_1 = 0$), les instants d'ionisation vérifient

$$\sqrt{1-r} \sin(\omega_0 t_n) + 2\sqrt{r} \sin(2\omega_0 t_n + \phi) = 0. \quad (\text{B.3})$$

L'influence de la seconde couleur sur les instants d'ionisation étant supposée faible en raison du faible rapport r en énergie introduit, les instants d'ionisation pour deux couleurs sont donnés par

$$\omega_0 t_n = n\pi + \epsilon_n, \quad (\text{B.4})$$

où $|\epsilon_n| \ll 1$. En injectant dans l'équation (B.3), nous trouvons

$$\sqrt{1-r} \cos(n\pi) \sin(\epsilon_n) + 2\sqrt{r} [\sin(\phi) \cos(2\epsilon_n) + \cos(\phi) \sin(2\epsilon_n)] = 0. \quad (\text{B.5})$$

D'où, avec l'hypothèse $|\epsilon_n| \ll 1$ et en négligeant le terme en $\sqrt{r}\epsilon_n$, nous obtenons

$$\epsilon_n = -2 \frac{\sqrt{r}}{\sqrt{1-r}} (-1)^n \sin(\phi), \quad (\text{B.6})$$

qui justifie l'équation (4.7).

Une expression plus précise des instants t_n peut être obtenue en considérant la phase relative égale à $\pi/2$. L'équation à résoudre se simplifie en $\sqrt{1-r} \sin(\omega_0 t_n) + 2\sqrt{r} \cos(2\omega_0 t_n) = 0$, soit $\sqrt{1-r} \sin(\omega_0 t_n) + 2\sqrt{r} [1 - 2 \sin(\omega_0 t_n)^2] = 0$. La solution à l'ordre 2 en $\sqrt{r}/\sqrt{1-r}$ localisant les maxima de l'onde plane est alors complétée ainsi

$$\omega_0 t_n = n\pi - \frac{\sqrt{1 + 32 \frac{r}{1-r}} - 1}{8 \frac{\sqrt{r}}{\sqrt{1-r}}} (-1)^n. \quad (\text{B.7})$$

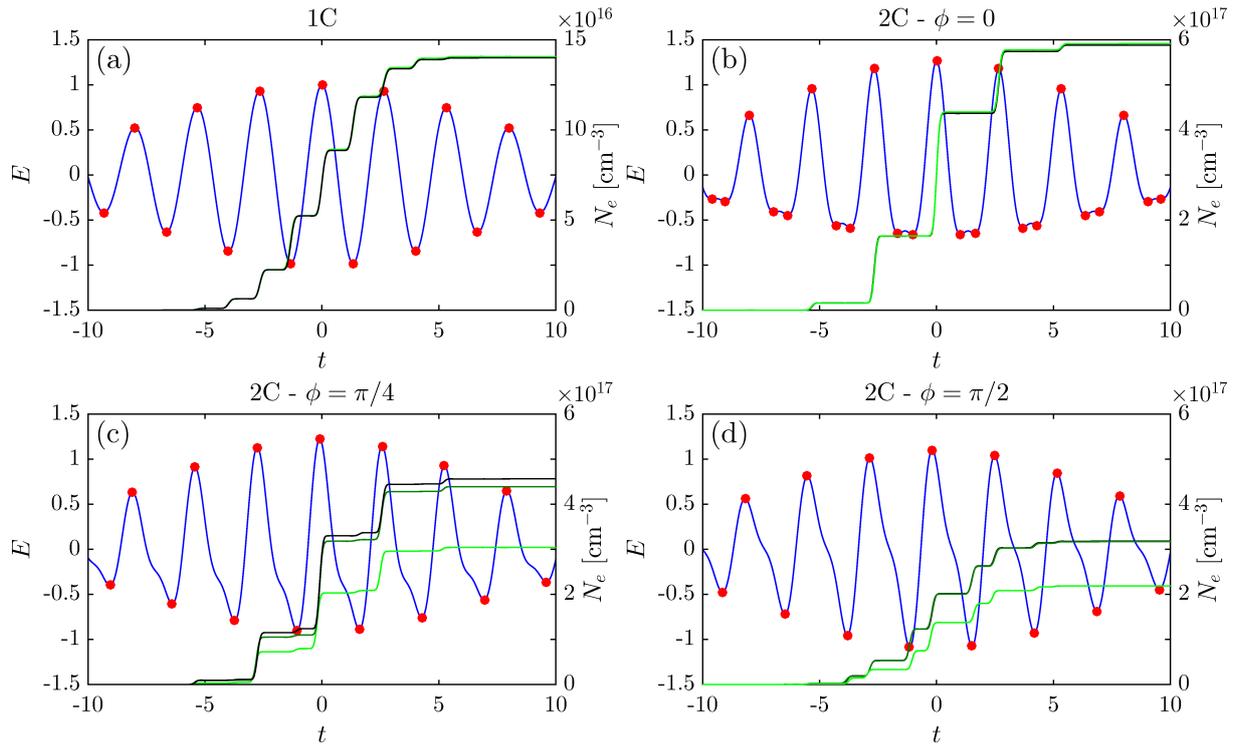


FIGURE B.1 – Détail de champs laser (courbes bleues) à deux couleurs. Les points rouges localisent les extrema du champ laser. Les courbes noires et vertes indiquent la densité électronique calculée numériquement avec le taux d’ionisation QST appliqué à O_2 (courbes noires), ou analytiquement avec ce même taux d’ionisation aux instants t_n calculés avec les équations (4.7) (courbes vert clair) ou (B.8) (courbes vert foncé). (a) Une couleur. (b) Deux couleurs avec une phase relative nulle. (c) Deux couleurs avec une phase relative de $\pi/4$. (d) Deux couleurs avec une phase relative de $\pi/2$.

On peut noter qu’à partir d’une expression plus générale

$$\omega_0 t_n = n\pi - \frac{\sqrt{1 + 32 \frac{r}{1-r}} - 1}{8 \frac{\sqrt{r}}{\sqrt{1-r}}} (-1)^n \sin \phi, \quad (\text{B.8})$$

en faisant un développement limité au premier ordre en $r/(1-r)$, on retrouve l’équation (4.7). L’expression (B.8) fournit une meilleure approximation de t_n que l’équation (4.7), comme le montrent les densités électroniques qui en découlent sur la figure B.1.

Dans le cas de K sous-impulsions chirpées à deux couleurs, les instants d’ionisations peuvent se calculer en séparant la contribution de la deuxième couleur ϵ_n/ω_0 de la première et en la supposant faible, c’est-à-dire en posant t_n sous la forme :

$$t_n = t_n^{1C} - \frac{\epsilon_n}{\omega_0}, \quad (\text{B.9})$$

où t_n^{1C} désigne l’instant des extrema pour des impulsions à une seule couleur. On a na-

tuellement $t_n^{1C} = n\pi/\omega_0$ si l'impulsion n'est pas chirpée et si les sous-impulsions sont retardées par un multiple de π/ω_0 . Si $C \neq 0$ et si t_n^{1C} est localisé dans la sous-impulsion $k = 0, \dots, K - 1$, alors, la résolution de $d_t E_L(t_n) = 0$, soit

$$\sin \left[\omega_0(t_n^{1C} - k\Delta t) + C \frac{(t_n^{1C} - k\Delta t)^2}{T^2} \right] = 0 \quad (\text{B.10})$$

donne

$$t_n^{1C} = \frac{\omega_0 T^2}{2C} \left(\sqrt{1 + n'\pi \frac{4C}{\omega_0^2 T^2}} - 1 \right) + k\Delta t, \quad (\text{B.11})$$

où $T = \tau/\sqrt{2 \ln 2}$ et

$$n' = \lceil n - \frac{k\omega_0 \Delta t}{\pi} \sqrt{1 + n\pi \frac{4C}{\omega_0^2 T^2}} + \frac{C(k\Delta t)^2}{\pi T^2} \rceil, \quad (\text{B.12})$$

prend en compte des variations plus fines avec le décalage Δt entre les sous-impulsions. Si l'impulsion est longue, soit $\omega_0 T \gg 1$, on retrouve $t_n^{1C} \simeq \frac{n'\pi}{\omega_0} + k\Delta t$, avec $n' \simeq \lceil n - k\omega_0 \Delta t/\pi + C(k\Delta t)^2/\pi T^2 \rceil$, soit $t_n^{1C} = n\pi/\omega_0$ si $C = 0$ et $k\omega_0 \Delta t/\pi$ est un entier. Le terme prenant en compte l'effet de la deuxième couleur s'écrit

$$\epsilon_n = \sin(\omega_0 t_n^{1C} - k\omega_0 \Delta t + \phi) \frac{\sqrt{1 + 32r'^2} - 1}{8r'}, \quad (\text{B.13})$$

où $r' = \sqrt{r}/\sqrt{1-r}$ est le ratio en amplitude entre les deux couleurs. En supposant $r \ll 1$ et $\omega_0 T \gg 1$, on a donc

$$\epsilon_n \simeq 2r'(-1)^{n'} \sin(\phi), \quad (\text{B.14})$$

soit

$$t_n \simeq \frac{n'\pi}{\omega_0} + k\Delta t - 2r'(-1)^{n'} \sin(\phi). \quad (\text{B.15})$$

De plus, si le décalage entre les impulsions est un nombre entier de cycles optiques, on a

$$t_n \simeq \frac{n''\pi}{\omega_0} - 2r'(-1)^{n''} \sin(\phi), \quad (\text{B.16})$$

où $n'' = \lceil n + C(k\Delta t)^2/\pi T^2 \rceil$. Cette expression est donc identique à celle dans le cas simple d'une impulsion à deux couleurs, et la prise en compte des effets combinés du chirp et du retard d'impulsions s'effectue simplement en remplaçant l'indice n par n'' .

C Implémentation numérique

Cette annexe présente l'implémentation numérique de l'équation UPPE introduite dans le chapitre 2, dans un code appelé CUP3D. Les performances de ce code sont détaillées en fin d'annexe.

Afin d'implémenter numériquement l'équation UPPE, la normalisation suivante est effectuée sur le champ E :

$$E = \sqrt{c_1}(\mathcal{E} + \mathcal{E}^*), \mathcal{E}(t) = \frac{1}{\sqrt{c_1}} \int \Theta(\omega) \widehat{E}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega, \quad (\text{C.1})$$

où $\Theta(\omega)$ est la fonction de Heaviside. \mathcal{E} est la transformée de Fourier inverse de \widehat{E} uniquement pour les fréquences positives, à la constante $c_1 = \mu_0 \omega_0 / 2k(\omega_0)$ près. Cette constante permet d'exprimer l'intensité en unités physiques (W/cm^2) directement par $I(t) = |\mathcal{E}(t)|^2$.

Pour sa résolution numérique, l'équation UPPE est réexprimée en unités adimensionnées $\mathcal{E}/\sqrt{c_2}$, en utilisant une seconde constante $c_2 = \lambda_0^2 / 8\pi^2 n_0 n_2 w_0^2$. Cette constante est homogène à une intensité, et on a $c_2 = P_{\text{cr}} / 4\pi w_0^2$. Les variables spatiales transverses (x, y) sont normalisées par w_0 , la variable de propagation z par $4z_0$, et le temps t par $\tau_0 / \sqrt{2 \log 2}$. La densité électronique est normalisée par $n_0^2 N_c / 2z_0 k_0$ où N_c est la densité critique plasma définie par l'équation (2.71). Les courants subissent cette même normalisation et celle du champ. Avec ces normalisations et par transformation de Fourier dans le plan transverse, l'équation UPPE (2.123) devient :

$$\frac{\partial \widehat{\mathcal{E}}}{\partial z} = i \sqrt{k(\omega)^2 - \left(\frac{4z_0}{w_0}\right)^2} k_{\perp}^2 \widehat{\mathcal{E}} + i(1 - x_K) \widehat{\mathcal{E}}^3 + i(\widehat{R}|\widehat{\mathcal{E}}|^2) * \widehat{\mathcal{E}} - \Theta(\omega)(\widehat{J} + \widehat{J}_{\text{loss}}), \quad (\text{C.2})$$

où

$$R(t) = (1 - x_K) \delta(t) + x_K \Theta(t) \frac{\bar{\tau}_1^2 + \bar{\tau}_2^2}{\bar{\tau}_1 \bar{\tau}_2} e^{-t/\bar{\tau}_2} \sin(t/\bar{\tau}_1) \quad (\text{C.3})$$

est la fonction associée aux électrons liés du milieu incluant la réponse Kerr instantannée et la diffusion Raman en rapport x_K .

Pour implémenter l'équation UPPE, on utilise une méthode "split-step spectrale" de décomposition du pas et utilisant la transformée de Fourier. Cette méthode consiste à séparer les termes linéaires et nonlinéaires dans l'équation de propagation. Les termes linéaires sont traités en fréquentiel, alors que les termes nonlinéaires sont traités en temporel, comme le montre la figure C.1.

Le schéma de résolution consiste à intégrer l'équation UPPE s'exprimant sous la forme [6]

$$\frac{\partial A}{\partial z} = (\widetilde{D} + \widetilde{N})A, \quad (\text{C.4})$$

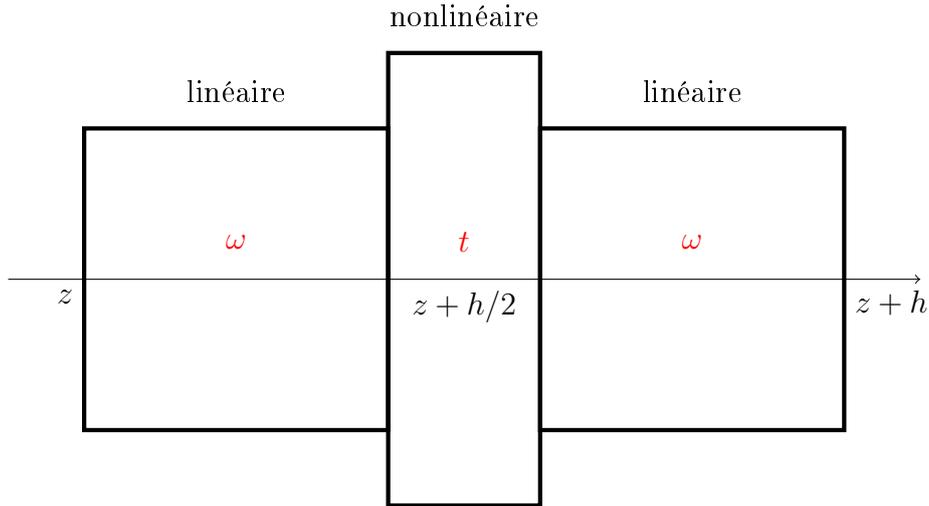


FIGURE C.1 – Schéma de la décomposition “split-step Fourier”. Sur chaque pas en z de largeur h , les termes linéaires sont calculés en Fourier sur l’intervalle $z + h/2$, puis les termes nonlinéaires sont introduits en temporel à la moitié du pas, et enfin on résout les termes linéaires en variable de Fourier sur la deuxième moitié du pas.

où l’opérateur \tilde{D} correspond aux termes linéaires regroupant la dispersion et la diffraction et \tilde{N} aux termes nonlinéaires regroupant les photocourants, les courants de perte et l’effet Kerr. En théorie, les termes linéaires et nonlinéaires agissent simultanément le long de la propagation. Le principe de la méthode split-step en Fourier s’appuie sur le schéma suivant : si h est la largeur du pas en z , les termes linéaires sont résolus de z à $z + h/2$ en Fourier, puis les termes nonlinéaires sont inclus à la moitié du segment en $z + h/2$. Enfin, une fois les effets nonlinéaires intégrés, on traite à nouveau en Fourier une propagation linéaire sur la deuxième moitié du pas. Plus précisément, la solution de l’équation (C.4) s’écrit [6] :

$$A(z + h, t) = e^{\frac{h}{2}\tilde{D}} e^{\int_z^{z+h} \tilde{N}(z') dz'} e^{\frac{h}{2}\tilde{D}} A(z, t), \quad (\text{C.5})$$

où l’intégrale des termes nonlinéaires est résolue par une méthode de Runge-Kutta d’ordre 2. Afin de pouvoir réaliser des simulations sur de grandes distances, le pas h est adaptatif et est évalué par la phase nonlinéaire associée à l’auto-focalisation Kerr. Plus la phase des termes nonlinéaires est élevée, plus le pas est réduit. À l’inverse, le pas s’élargit lorsque les nonlinéarités sont faibles, ce qui permet d’accélérer le calcul numérique.

Le code utilisé pour la résolution de l’équation UPPE est CUP3D. Il a été initialement écrit par S. Skupin en 2005, et est en amélioration constante depuis. Il est écrit en Fortran90 et utilise la librairie FFTW3. En 2016, le code a été restructuré et sa parallélisation a été augmentée du MPI (Message Passing Interface protocole) pur à MPI/OpenMP (Open Multi-Processing protocole), dans le but de réaliser des simulations plus volumineuses opérant sur des dizaines de milliers de cœurs.

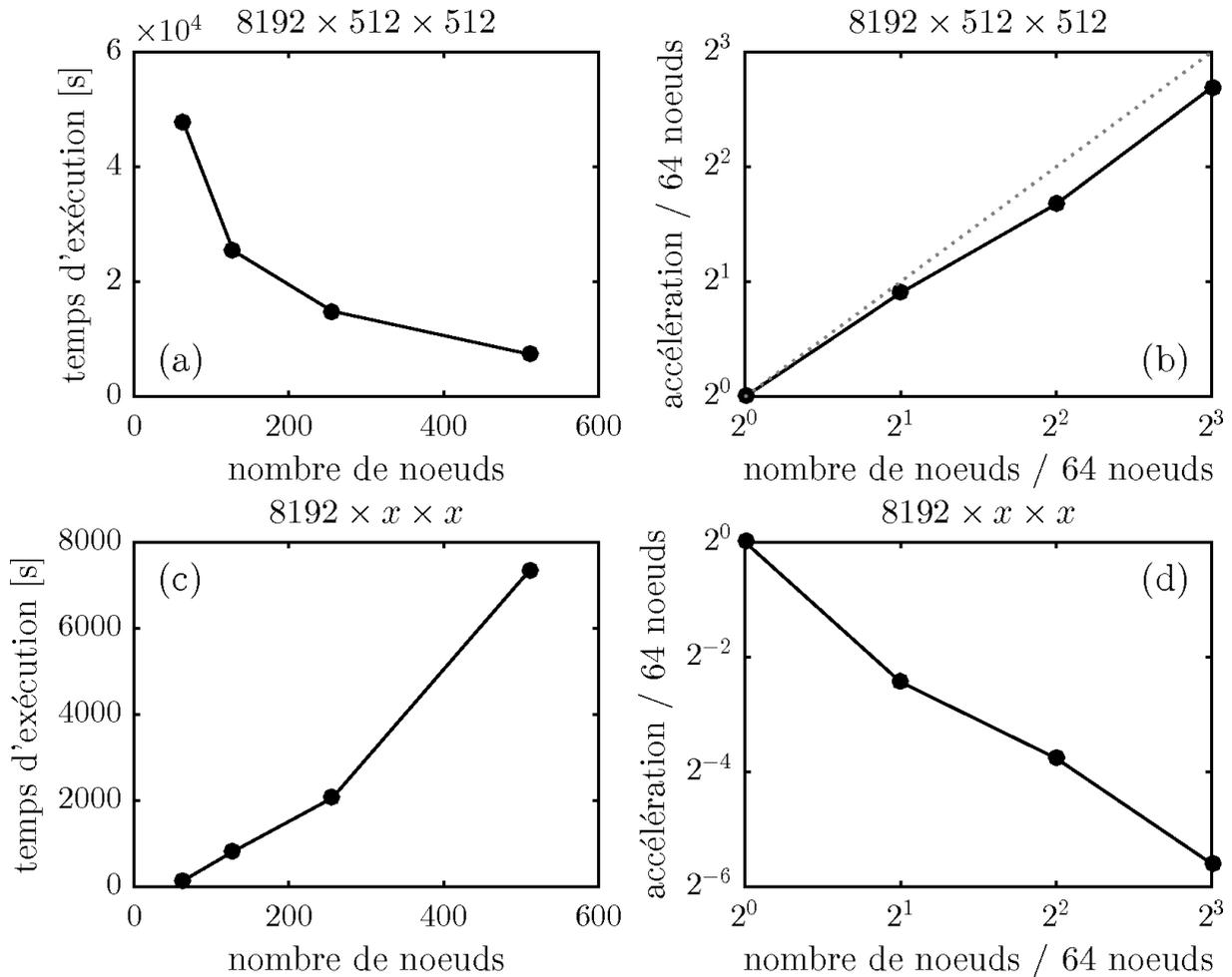


FIGURE C.2 – Rapidité d'exécution du code CUP3D parallélisé hybride MPI/OpenMP sur la machine Occigen. Les simulations testées ont 8192 points en temps, et 64 à 512 points dans chaque dimension spatiale transverse. La référence est prise à 64 nœuds, qui contiennent chacun 24 cœurs. Le nombre de nœuds est ensuite augmenté à 128, 256 et 512. (a) Temps d'exécution des simulations ayant 512 points transverses en fonction du nombre de nœuds et (b) accélération correspondante par rapport au cas à 64 nœuds. (c) Temps d'exécution des simulations ayant un nombre de points transverses identiques au nombre de nœuds utilisés et (d) accélération correspondante par rapport au cas à 64 nœuds.

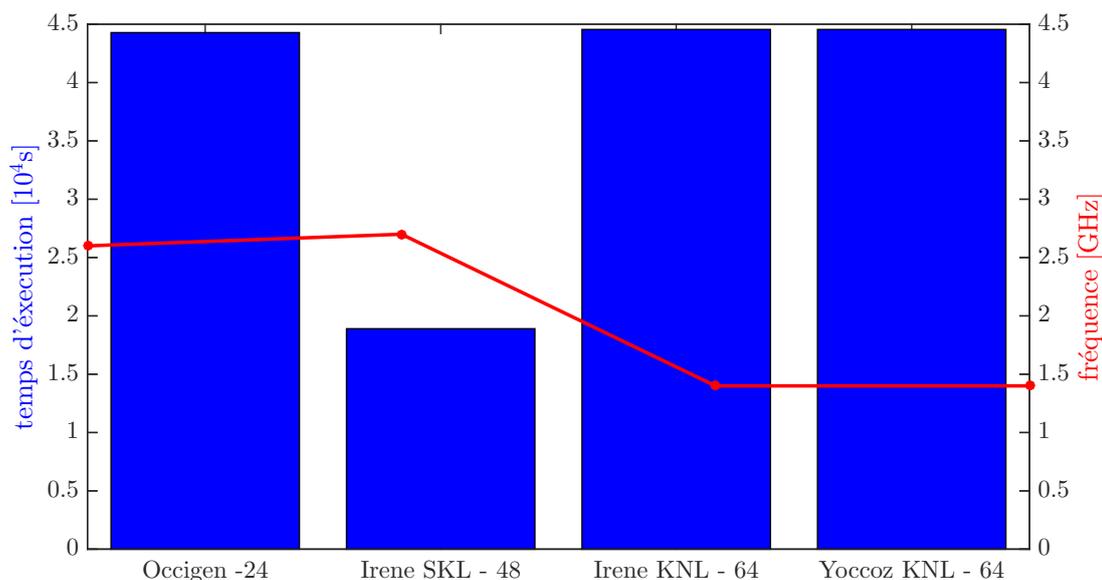


FIGURE C.3 – Temps d'exécution d'une simulation typique CUP3D sur différentes machines, avec 64 nœuds. Le nombre de cœurs par nœud pour chaque machine est indiqué juste après son nom. La courbe rouge montre la fréquence de calcul de chaque machine.

Un processus MPI est utilisé pour chaque sous-domaine spatial selon l'axe y . En général, le nombre de sous-domaines en y correspond au nombre de points en y , mais il peut être choisi inférieur. Avant le passage à l'hybridation MPI/OpenMP, un processus MPI était lancé sur un cœur. Désormais, chaque processus MPI tourne sur un nœud, en générant autant de threads¹ qu'il y a de cœurs par nœuds. Grâce à ces améliorations, nous sommes désormais capables d'utiliser jusqu'à 1024 nœuds sur la machine CURIE du CCRT et 512 nœuds sur la machine Occigen du CINES. Chaque processus MPI crée alors 16 (resp. 24) threads pour traiter la dimension temporelle et l'autre dimension spatiale x sur chaque sous-domaine spatial en y . Nous pouvons donc utiliser un nombre de cœurs 16 (resp. 24) fois plus grand sur CURIE (resp. Occigen).

L'échelle de rapidité du nouveau code est plutôt bonne car presque linéaire, comme le montre les résultats de la figure C.2.

Le code CUP3D est aussi vectorisé, c'est-à-dire que les variables ne sont pas traitées sous forme scalaire mais sous forme matricielle de taille $N_x N_y N_t$, où N_a est le nombre de points selon a . Les boucles sur x , y et t se font ainsi de manière optimale. L'optimisation automatique utilisée de la vectorisation est O3².

1. Un thread représente l'exécution d'un ensemble d'instructions du langage machine d'un processeur (ou cœur).

2. Option d'auto-vectorisation correspondant au niveau de vectorisation le plus élevé. Ces options vont de O0 (sans vectorisation) à O3.

Le nombre de cœurs par nœud peut aller jusqu'à 68 pour la machine Yoccoz du CEA. La consommation d'une simulation très bien résolue peut être de 1Mh CPU, pour un temps de restitution de 2 à 3 jours, comme montré par le graphe C.3.

D Liste complète des publications et présentations

Publications

Publications en première auteure

- A. Nguyen, K. J. Kaltenecker, J.-C. Delagnes, B. Zhou, E. Cormier, N. Fedorov, R. Bouillaud, D. Descamps, I. Thiele, S. Skupin, P. U. Jepsen, L. Bergé, “Wavelength scaling of THz pulse energies delivered by two-color air plasmas”, soumis à la revue Optics Letters
- A. Nguyen, P. González de Alaiza Martínez, I. Thiele, S. Skupin, L. Bergé, “Broadband THz radiation from two-color mid- and far-infrared laser filaments in air”, Phys. Rev. A **97**, 063839 (2018)
- A. Nguyen, P. González de Alaiza Martínez, I. Thiele, S. Skupin, L. Bergé, “THz field engineering in two-color femtosecond filaments using chirped and delayed laser pulses”, New J. Phys. **20**, 033026 (2018)
- A. Nguyen, P. González de Alaiza Martínez, J. Déchard, I. Thiele, I. Babushkin, S. Skupin, L. Bergé, “Spectral dynamics of THz pulses generated by two-color laser filaments in air : the role of Kerr nonlinearities and pump wavelength”, Opt. Express **25**, 4720 (2017)

Publications en co-auteure

- I. Thiele, B. Zhou, A. Nguyen, E. Smetanina, R. Nuter, K. J. Kaltenecker, P. González de Alaiza Martínez, J. Déchard, L. Bergé, P. U. Jepsen, S. Skupin, “Terahertz emission from laser-driven gas-plasmas : a plasmonic point of view”, Optica **5**, 1617 (2018)
- I. Thiele, P. González de Alaiza Martínez, R. Nuter, A. Nguyen, L. Bergé, S. Skupin, “Broadband terahertz emission from two-color femtosecond-laser-induced microplasmas”, Phys. Rev. A **96**, 053814 (2017)
- J. Déchard, A. Nguyen, P. González de Alaiza Martínez, I. Thiele, S. Skupin, L. Bergé, “Validity of the unidirectional propagation model : application to laser-driven terahertz emission”, J. Phys. Commun. **1**, 055009 (2017)

Présentations

Présentations orales

- A. Nguyen, L. Bergé, P. González de Alaiza Martínez, I. Thiele, S. Skupin, “Production of THz Radiation from Mid- and Far-Infrared Two-Color Femtosecond Pulses

- in Air”, LPHYS’18, Nottingham, United Kingdom, 2018
- A. Nguyen, P. González de Alaiza Martínez, J. Déchard, I. Thiele, I. Babushkin, S. Skupin, L. Bergé, “Impact of the pump wavelength in THz emissions by two-color femtosecond laser filaments in air”, CLEO/Europe-EQEC, Munich, Germany, 2017
 - A. Nguyen, “Action of Kerr nonlinearities and pump wavelength in atmospheric THz emission by two-color femtosecond laser pulses”, Workshop on Nonlinear Phenomena in Strong Fields, Leibniz Universität Hannover, Germany, 2017
 - A. Nguyen, P. González de Alaiza Martínez, J. Déchard, I. Thiele, I. Babushkin, S. Skupin, L. Bergé, “Spectral dynamics of THz radiation produced by two-color femtosecond pulses in air”, 3rd International Symposium on Advances in Nonlinear Photonics, Minsk, Belarus, 2016
 - A. Nguyen, “Contrôle de rayonnements THz intenses produits par lasers femtosecondes et applications à la détection de molécules” (sujet phare CEA), Entretien à mi-thèse avec Monsieur le Haut-Commissaire à l’Énergie Atomique, Saclay, France, 2017
 - A. Nguyen, “Contrôle de rayonnements THz intenses produits par lasers femtosecondes et applications à la détection de molécules”, Journée des Doctorants CEA-DGA, Palaiseau, France, 2018
 - A. Nguyen, “Contrôle de rayonnements THz intenses produits par lasers femtosecondes et applications à la détection de molécules”, Journée de tous les Doctorants et Post doctorants de la DIF, Arpajon, France, 2018
 - A. Nguyen, “Control of intense THz radiations produced by two-color femtosecond lasers and applications to molecules detection”, Journée des Doctorants de l’EDOM, Palaiseau, France, 2017
 - Exposés lors des Technical Meetings semestriels du projet ALTESSE (Bordeaux, Lyon, Saint-Louis), 2016-2018

Posters

- A. Nguyen, L. Bergé, P. González de Alaiza Martínez, I. Thiele, S. Skupin, “THz Emissions from Air-Plasmas Created by Mid- and Far-Infrared Two-Color Femtosecond Pulses”, CLEO, San Jose, USA, 2018
- A. Nguyen, L. Bergé et projet ALTESSE, “Contrôle de rayonnements THz intenses produits par lasers femtosecondes et applications à la détection de molécules”, Journée de tous les Doctorants et Post doctorants de la DIF, Arpajon, France, 2017
- A. Nguyen, L. Bergé et projet ALTESSE, “Contrôle de rayonnements THz intenses produits par lasers femtosecondes et applications à la détection de molécules”,

Journée de rentrée de l'EDOM, Orsay, France, 2017

Titre : Contrôle de rayonnements térahertz intenses produits par lasers femtosecondes et applications à la détection de molécules

Mots clés : Sources térahertz intenses, Interaction laser-matière, Optique nonlinéaire

Résumé : Les ondes térahertz (THz), situées entre l'infrarouge et les micro-ondes dans le spectre électromagnétique, correspondent aux fréquences caractéristiques de nombreux mouvements moléculaires et permettent ainsi de caractériser des molécules complexes par spectroscopie dans le domaine temporel. Cette thèse a pour objectif d'étudier les champs THz émis par une source constituée d'une impulsion laser à deux couleurs générant un plasma par ionisation de l'air. En raison de l'asymétrie temporelle du champ laser, un courant électronique présentant une composante basse-fréquence dans la gamme THz est formé dans le plasma par conversion nonlinéaire et produit un champ secondaire comprenant une composante THz. Les effets nonlinéaires intervenant dans la génération du rayonnement THz sont l'effet Kerr à basse intensité ($< 10^{13}$ W/cm²) et les photocourants à plus haute intensité ($> 10^{13}$ W/cm²), au-dessus du seuil d'ionisation. Ce dernier mécanisme, qui génère le plus de rayonnement THz, est principalement étudié dans ce manuscrit. Si la puissance crête de l'impulsion laser est suffisamment élevée, des filaments de lumière peuvent être formés par combinaison de l'effet Kerr focalisant et de la formation d'un plasma défocalisant. Le phénomène de filamentation laser permet ainsi de créer des ondes THz à distance. En modulant l'impulsion laser, il est aussi possible de modifier les champs et spectres THz associés. En particulier, nous étudions les effets d'une dérive de fréquence et de la combinaison de multi-impulsions sur l'efficacité de conversion laser-THz. Nous consacrons en outre une large part de nos études à l'influence de l'augmentation de la longueur d'onde laser sur le rendement en énergie de l'émission THz.

Title : Control of intense terahertz radiations produced by femtosecond lasers and applications to the detection of molecules

Keywords : Intense terahertz sources, Laser-matter interaction, Nonlinear optics

Abstract : The terahertz waves (THz), located between the infrared and the microwaves in the electromagnetic spectrum, correspond to the characteristic frequencies of numerous molecular motions and thus make it possible to characterize complex molecules by time-domain spectroscopy. This thesis aims to study the THz fields emitted by a source formed by a two-color laser pulse generating a plasma by air ionization. Due to the time asymmetry of the laser field, an electric current having a low-frequency component in the THz range is formed in the plasma by nonlinear conversion, generating a secondary field including a THz component. The nonlinear effects involved in the generation of THz radiation are the Kerr effect at low intensity ($< 10^{13}$ W/cm²) and the photocurrents at higher intensity ($> 10^{13}$ W/cm²), above the ionization threshold. This latter mechanism, which generates the most THz radiation, is mainly studied in this manuscript. If the peak power of the laser pulse is sufficiently high, light filaments can be created by combining the focusing Kerr effect and the defocusing action of the plasma. So, the filamentation process can produce THz waves remotely. By modulating the laser pulse, it is possible to modify the associated THz fields and spectra. In particular, we study the effects of pulse chirping and multi-pulse combination. We also devote a large part of our studies to the influence of increasing the laser wavelength on the THz energy yield.

